

N° d'ordre : 3599

THESE

En vue de l'obtention du : **DOCTORAT**

Centre de Recherche: Centre de Recherche en Energie

Structure de Recherche : Équipe d'Énergétique et Physique des Réacteurs,
Sécurité Nucléaire et Environnement (PRESN)

Discipline : Physique

Spécialité : Physique Nucléaire

Présentée et soutenue le 26/02/2022 par :

Hamid AMSIL

Mise au point des techniques d'analyse par Activation Neutronique au
CNESTEN : Méthodes d'Analyses, Validations et Applications

JURY

Hamid EZ-ZAHRAOUI	PES, Faculté des Sciences, Université Mohammed V –Rabat	Président
El Mahjoub CHAKIR	PES, Faculté des Sciences, Université Ibn Tofail –Kenitra	Rapporteur/ Examineur
Abdelmajid SAIDI	PES, Faculté des Sciences, Université Mohammed V –Rabat	Rapporteur/ Examineur
Rachid AHL LAAMARA	PH, Faculté des Sciences, Université Mohammed V –Rabat	Rapporteur/ Examineur
Moussa BOUNAKHLA	Expert, Docteur d'état, CNESTEN – Rabat	Examineur
Khalid LARAKI	Expert, Ingénieur, Docteur, CNESTEN –Rabat	Examineur
Hamid MARAH	Expert, Docteur, CNESTEN –Rabat	Examineur
Hamid BOUNOUIRA	Expert, Docteur, CNESTEN – Rabat	Co-Directeur de Thèse
Abdelouahed CHETAINE	PES, Faculté des Sciences, Université Mohammed V –Rabat	Directeur de Thèse

Année Universitaire: 2021/2022

Dédicace

Au Dieu tout puissant mon créateur,

A mon très cher père que Dieu repose son âme

Merci pour tes sacrifices et pour les peines que tu t'es données pour nous offrir ce qui est de meilleur. C'est pour ton hommage que ce travail a été accompli.

A ma très chère mère, Merci pour ton soutien, ton amour et tes sacrifices depuis que tu m'as donné naissance.

A ma très chère épouse Dalal pour vos encouragements, ton amour, tes prières et tes efforts inestimables.

A mon frère unique Younes

*A mes très chères sœurs Fatima, Fatiha, Mina, Maryama et Boushra
Pour vos encouragements, vos soutiens et vos sacrifices*

A mes aimables neveux Sabir, Youssef, Qays et Amine

*A mes aimables nièces Hanae, Maya, Aicha, Selma, Manel, Hayna, Oumnia et Amina
Pour vos sourires et la joie que vous apportez au monde*

A toute ma grande famille en particulier mes oncles

A mes chers amis, Rachid, Abdelfattah, Mhamed, Younes, Nacer, Slimani

A tous mes collègues, A toutes les personnes qui m'ont inspirées, A toutes les personnes qui m'ont encouragées. A toute personne qui m'est chère

A tous ceux qui m'aiment

Hamid AMSIL

Remerciement

Ce travail de thèse s'est déroulé au sein de la Structure de Recherche de l'Équipe d'Énergétique et Physique des Réacteurs, Sécurité Nucléaire et Environnement (**PRESN**), Centre de Recherche en Énergie de la Faculté des Sciences, Université Mohammed V de Rabat, sous la Direction de Monsieur **Abdelouhed CHETAINE** Professeur de l'Enseignement Supérieur.

L'intégralité du volet pratique de ce travail de thèse est réalisée au sein du Laboratoire d'Analyse par Activation Neutronique, Unité d'Analyses Élémentaires et Radiométriques, Division Exploitation des Laboratoires, Direction Études et Recherche Scientifique du Centre Nationale de l'Énergie des Sciences et des Techniques Nucléaires (**CNESTEN**), sous la co-direction de Monsieur **Hamid BOUNOUIRA** Docteur Chargé de Recherche.

Je tiens à remercier vivement Monsieur **Abdelouhed CHETAINE**, Professeur de l'Enseignement Supérieur à la Faculté des Sciences de Rabat, Directeur de thèse, pour la confiance qu'il m'a témoignée en acceptant la direction scientifique de mes travaux. Je lui suis reconnaissant de m'avoir fait bénéficier tout au long de ce travail de sa grande compétence, de sa rigueur intellectuelle, de son dynamisme, et de son efficacité certaine.

Je remercie profondément Monsieur **Hamid BOUNOUIRA**, Docteur Chargé de Recherche au Centre National de l'Énergie, des Sciences et des Techniques Nucléaires (**CNESTEN**) d'avoir accepté de co-diriger ce travail de thèse. Je le remercie pour son partage continu et pour les conseils scientifiques qu'il a apportés pour mener à bien ces travaux.

Je suis très honoré de la présence à mon jury de thèse et je tiens à remercier :

Monsieur **Hamid EZ-ZAHRAOUI**, Professeur de l'Enseignement Supérieur à la Faculté des Sciences de Rabat, pour l'honneur qu'il m'a fait en acceptant d'être le président de soutenance de ma thèse. Je tiens à l'assurer de ma profonde reconnaissance pour l'intérêt qu'il porte à ce travail.

Monsieur **Elmahjoub CHAKIR**, Professeur de l'Enseignement Supérieur à la Faculté des Sciences de Kénitra, pour sa participation à mon jury de thèse en qualité de rapporteur et pour toutes remarques intéressantes qu'il m'a faites. Je le remercie également pour l'énergie qu'il me transfère par ses encouragements tout au long de ma thèse.

Monsieur **Abdelmajid SAIDI**, Professeur de l'Enseignement Supérieur à Faculté des Sciences

de Rabat, pour l'honneur qu'il m'a fait pour sa participation à mon jury de thèse en qualité de rapporteur et examinateur de mon travail, pour le temps consacré à la lecture de cette thèse, et pour les suggestions et les remarques judicieuses qu'il m'a indiquées.

Monsieur **Rachid AHL LAAMAR**, Professeur Habilité à la Faculté des Sciences de Rabat, pour l'honneur qu'il m'a fait pour sa participation à mon jury de thèse en qualité de rapporteur, pour le temps consacré à l'examen et la lecture de cette thèse, et pour les suggestions et les remarques pertinentes pour améliorer la qualité du rapport.

Monsieur **Moussa BOUNAKHLA**, Directeur de recherche au Centre National de l'Energie, des Sciences et des Techniques Nucléaires (CNESTEN), qui a bien voulu juger ce travail en tant qu'examinateur. Je le remercie pour le temps consacré à la lecture de ce travail ainsi que pour les commentaires m'ayant permis de l'améliorer.

Monsieur **Khalid LARAKI**, le Chef de la Division Exploitation des Laboratoires au Centre National de l'Energie, des Sciences et des Techniques Nucléaires (CNESTEN), pour l'intérêt qu'il a manifesté à ce travail et d'avoir accepté que ce travail soit réalisé au sein de sa division.

Monsieur **Hamid MARAH**, le Directeur de la Direction Etudes et Recherche Scientifique au Centre National de l'Energie, des Sciences et des Techniques Nucléaires (CNESTEN), pour l'honneur qu'il nous a fait d'avoir assister à la soutenance de ce travail.

Je tiens à exprimer ma gratitude à Monsieur **Khalid EMBARCH**, qui fut le premier à me faire découvrir le sujet, pour le temps qu'il a consacré à m'apporter les outils méthodologiques indispensables à la conduite de cette recherche.

Je tiens à préciser l'importance du soutien financier de l'**AIEA** pour réussir ce projet. C'est avec son support et suivi continu que ce travail a abouti.

Enfin, j'aimerais exprimer ma gratitude à tous les chercheurs et spécialistes, trop nombreux pour les citer, qui ont pris le temps de discuter de mon sujet. Chacun de ces échanges m'a aidé à faire avancer mon analyse.

Résumé

Ce travail de thèse décrit les aspects fondamentaux de la technique AAN ainsi que les différentes méthodes utilisées. Il s'agit des aspects qui couvrent la théorie fondamentale derrière les techniques d'activation et ceux liés aux protocoles d'analyse depuis la préparation des échantillons jusqu'à la génération des résultats d'analyse. Comme première étape, une caractérisation intégrale des instruments a été effectuée pour le système de détection et pour les positions d'irradiations. Ensuite, en se basant sur le protocole d'analyse suivis par les analystes, toutes les sources d'incertitudes significatives, associées à chaque étape du processus ont été identifiées et étudiées avec une évaluation approfondie de leur impact sur les résultats finaux. Ces derniers ont été soumis à d'autres tests afin d'évaluer les performances du laboratoire. Cette évaluation a été effectuée au niveau interne par l'analyse d'un nombre de MSR de différentes matrices et au niveau externe par la participation aux tests d'inter-comparaisons avec des laboratoires internationaux. Cette participation a permis l'identification des sources d'erreurs liées aux protocoles d'analyse et de catégoriser la gamme analytique du laboratoire. D'autre part, et afin d'élargir la gamme analytique, en incluant les éléments légers tels H, B, C, N, Si, P, S et le Cl et d'éléments lourds tels que le Cd, Sm, Gd, et le Hg, du laboratoire d'AAN, le CNESTEN a décidé d'implémenter un nouvel instrument baptisé Analyse par Activation Neutronique par les Gammas Prompts (PGAA) qui a fait partie des vocations de ce travail de thèse. Un design conceptuel de tous les composants de cet instrument avec un planning des réalisations a été réalisé. L'installation est prévue dans un futur proche en plusieurs phases.

Mots- clés : Activation Neutronique, MCNP, Triga Mark II, PGAA, Neutron, Spectrométrie Gamma

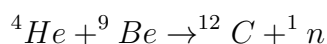
Abstract

This thesis describes the fundamental aspects of the AAN technique as well as the different methods used. These aspects cover the fundamental theory behind activation techniques and those related to analysis protocols from sample preparation to generation of analysis results. As a first step, a full characterization of the instruments was carried out for the detection system and for the irradiation facilities. Then, based on the analysis protocol followed by analysts, all significant sources of uncertainty associated with each step of the process have been identified and investigated with a thorough assessment of their impact on the end results. These are subjected to further tests to assess the performance of the laboratory. This assessment was carried out internally by analyzing a number of MSRs of different matrices in different applications and externally by participating in inter-comparison tests with international laboratories. This participation made it possible to identify the sources of errors related to the analysis protocols and to categorize the analytical range of the laboratory. On the other hand, and in order to broaden the analytical range, by including light elements such as H, B, C, N, Si, P, S and Cl and heavy elements such as Cd, Sm, Gd, and the Hg, within the NAA laboratory, CNESTEN decided to implement a new instrument called Prompt Gamma Neutron Activation Analysis (PGAA) which is part of the vocations of this thesis work. A conceptual design of all the components of this instrument with a schedule of acquisitions and achievements has been made. Installation is planned for the near future under several stages.

Key Words : Neutron Activation, MCNP, Triga Mark II, PGAA, Neutron, Gamma Spectrometry

Histoire

Après la découverte du neutron par Chadwick en 1932, Frédéric et Irène Joliot Curie ont découvert en 1934 la radioactivité induite. Enrico Fermi a été l'un des premiers, dans les années 30, à utiliser des neutrons pour produire des isotopes radioactifs artificiels. George de Hevesy a suivi cette direction des études de recherche sur les éléments des terres-rares. Les résultats de ces expériences sur l'action des neutrons sur les éléments des terres-rares de George de Hevesy et Hilde Levi en 1935 ont marqué le début de l'analyse par activation neutronique. Ils ont fabriqué leur propre source de neutrons en pulvérisant à la main le béryllium dans un mortier en agate et en le mélangeant dans une ampoule de verre contenant ^{222}Rn (demi-vie de 3,8 jours) à partir d'une solution de sel de radium disponible à l'hôpital anticancéreux de Copenhague [1]. Les particules α (noyaux ^4He), émises par ^{222}Rn , provoquent une réaction nucléaire au béryllium avec émission de neutrons :



Après avoir observé les grandes différences de radioactivité induite entre les divers lanthanides (purs), et en particulier la très haute radioactivité induite du dysprosium, De Hevesy s'est rendu compte que même la plus petite quantité de dysprosium pouvait être détectée en tant qu'impureté dans n'importe lequel des autres éléments de terres-rares. La preuve de principe a été donnée dans leur publication de 1936 [3] en démontrant l'aptitude à déterminer la teneur en dysprosium des préparations d'yttrium. Cela a été suivi, selon Levi [1], de l'expérience analytique réellement décisive consistant à déterminer les impuretés d'euporium dans des échantillons de gadolinium [3]. George De Hevesy et Hilde Levi a déclaré dans sa première publication [2] :

«... Comme on le sait, les méthodes d'analyse chimiques habituelles échouent pour la plupart des terres-rares et doivent être remplacées par des méthodes spectroscopiques, à rayons X et magnétiques. Ces dernières méthodes peuvent maintenant être complétées par l'application de neutrons à des problèmes analytiques en utilisant la radioactivité artificielle et le grand pouvoir absorbant de certains éléments des terres-rares pour les neutrons lents... ».

En 1949, Boyd [4] suggéra de qualifier la procédure “... la méthode d'analyse de la radioactivation...” ou, plus succinctement, “... analyse d'activation...” et il discuta de l'utilisation de “... pile à réaction en chaîne...” comme source des neutrons et un exemple d'analyse a été donné. La même année, Brown et Goldberg [5] donnèrent une nouvelle impulsion à cette méthode en démontrant qu'avec la «... pile à neutrons (réacteur nucléaire)... des activités spécifiques très élevées...» pouvaient être obtenues - par rapport aux sources de neutrons isotopiques utilisées jusqu'à présent - prolongeant ainsi les capacités de l'AAN. Kohman signalait déjà éga-

lement en 1949 des erreurs dans la mesure de la radioactivité [6], identifiant des problèmes tels que l'absorption de l'échantillon et les géométries de mesure.

Les potentiels de la méthode d'AAN ont été explorés dans les années 1950 et 1960, initialement par l'analyse de la dégradation et des caractéristiques d'absorption du rayonnement émis et/ou les séparations radiochimiques.

La spectrométrie gamma avec des détecteurs à scintillation a donné une grande impulsion à l'amélioration du radionucléide - et donc l'élément - la sélectivité de la technique. La séparation chimique du mélange de radioactivités était encore nécessaire ces années-là dans de nombreuses applications pour la détermination sélective du ou des éléments d'intérêt.

L'introduction du détecteur à semi-conducteurs au début des années 60 a accru la sélectivité de la spectrométrie gamma avec des ordres de grandeur et à un point tel que les différents radionucléides pouvaient être identifiés directement dans un mélange de radioactivités, sans nécessiter de séparations chimiques. Elle a marqué le début de l'AANI en tant que principale forme d'analyse par activation neutronique, dont le développement a été stimulé par la disponibilité d'analyseurs multicanaux de l'amplitude d'impulsions et d'ordinateurs de laboratoire.

Dans la revue bi-annuelle de 1956 «Nucleonics» [7] de la revue Analytical Chemistry, sont cités les premiers articles traitant des sources d'erreur dans l'analyse d'activation, dont certaines ont déjà été publiées en 1955 [8, 9, 10]. Les aspects de la perturbation du taux de fluence neutronique, des erreurs de géométrie, de l'efficacité du comptage sont discutés et il est décrit comment minimiser les erreurs. Les premières solutions pratiques pour, par exemple, les effets de l'autoprotection neutronique et l'auto-atténuation des rayons gamma sont venus aussi à l'ère des années 1958, par exemple, par l'introduction de la méthode standard interne par Leliart et al.[11]. En 1960, lors du Symposium sur l'analyse de la radioactivation à Vienne [12], Cook exposa, entre autres, de nombreuses sources d'erreur potentielles et la discussion documentée indiquait la prise de conscience déjà établie de l'assurance qualité.

”Erreurs dans l'analyse par activation” est l'un des chapitres du premier livre, publié en 1963, sur l'analyse par activation [2]. Environ une décennie plus tard, le livre le plus élaboré sur cette technique de De Soete, Gijbels et Hoste a été publié [13], avec un traitement très complet des erreurs systématiques dans l'analyse par activation.

L'utilisation de l'AAN pour le développement et la certification de matériaux de référence dans des organisations telles que l'ancien Bureau national des normes (NBS, aujourd'hui Institut national des normes et de la technologie, NIST) et l'Agence internationale de l'énergie atomique (AIEA) [14, 15] fortement contribué à la connaissance et à l'évaluation des sources

d'erreur, à la quantification de leur contribution et de leur impact, ainsi que le développement de méthodes pour minimiser leur apparition. Il n'est donc pas surprenant que la 3^{ème} conférence internationale sur les tendances modernes en analyse par activation, qui s'est tenue à la NBS en 1968, comportait déjà une session sur l'exactitude et la précision, prédécesseur des sessions actuelles de la conférence telles que le Control Qualité and l'Assurance Qualité. Ces termes sont devenus familiers à la communauté depuis la fin des années 1970, bien qu'ils aient été - et le sont toujours - souvent utilisés de manière vague dans leur définition. La prise de conscience d'une mise en œuvre structurée des pratiques d'assurance qualité aboutissant à la gestion de la qualité [16] a été introduite dans les années 90s et de nombreux laboratoires de l'AAN, certains soutenus par l'AIEA [17], ont mis en œuvre avec succès de tels systèmes de gestion.

Tous ces développements ont contribué à une compréhension très approfondie des principes de la AAN, de ses sources d'erreur et de ses conséquences méthodologies permettant de les comptabiliser et / ou de quantifier leurs contributions à l'incertitude de mesure. Ceci constitue la base de la capacité démontrée d'exploiter l'AAN au niveau métrologique le plus élevé, en tant que méthode de mesure du ratio primaire.

AANI a trouvé son utilisation dans de nombreux domaines scientifiques. Particulièrement on tire avantage du fait que les échantillons ne subissent aucun traitement chimique, ni avant ni après l'activation : AANI est «non destructive». En outre, les éléments à faible numéro atomique tels que *H, C, N, O, Si* qui dans de nombreux matériaux appartiennent aux composants majeurs de la matrice, ne produisent pas de produits radioactifs lors de l'activation des neutrons qui interfèrent avec la détermination des autres activités. Elle permet d'observer des oligo-éléments, souvent à des teneurs de l'ordre du microgramme au nanogramme, voire moins, dans des matrices composées des éléments à faible *Z*. La haute sélectivité de la spectrométrie gamma permet la détermination simultanée de nombreux radionucléides. Par conséquent, AANI est une technique de détermination multi-éléments.

Le caractère non destructif rend l'AANI attrayant pour une application, par exemple, géochimie et aux sciences connexes. En raison du nombre limité d'opérations de manipulation des échantillons, le risque de contamination est également réduit par rapport aux autres techniques de détermination d'éléments dans lesquelles l'échantillon doit être dissous. Cet avantage a été exploité dans de nombreuses applications biologiques de l'AANI et pour l'analyse de quantités de matériaux tels que les poussières atmosphériques et cosmiques.

Étant donné que les signaux dans l'AANI sont liés aux propriétés du noyau atomique, les résultats dans l'AANI ne sont pas affectés par l'état chimique et physique des éléments. La méthode décrite dans la loi physique et la spécificité est sans ambiguïté pour tous les éléments en raison de la combinaison des propriétés nucléaires :

1. constante de désintégration (souvent convertie en demi-vie, c'est-à-dire - pour un seul processus de désintégration radioactive, le temps requis pour que l'activité diminue à la moitié de sa valeur), et
2. les énergies et les intensités du rayonnement gamma, propres à chaque radionucléide.

Bien que de nombreuses formes d'AAN aient été identifiées par divers praticiens, dans ce document on se limitera aux formes standard de AANI et AANR pour les échantillons de taille normale (quelques grammes ou moins).

Table de Matières

Dédicace	2
Remerciement	3
Résumé	5
Abstract	6
Histoire	7
Table de Matières	11
Liste des Figures	15
Liste des Tableaux	17
Liste des Symboles	19
Nomenclature	22
Introduction Générale	24
1 Analyse par Activation Neutronique : Principes et caractéristiques analytiques	28
1.1 Introduction	28
1.2 Principes fondamentaux de l'analyse par activation neutronique	28
1.2.1 Activation	28
1.2.2 Désintégrations	31
1.2.3 La mesure	31
1.2.4 Mesurande	36
1.2.5 Pratique de l'AAN	36
1.3 Equation de mesure	38
1.3.1 Equation fondamentale	38
1.3.2 Décroissance et mesure	41
1.4 Métrologie	43
1.4.1 Réaction nucléaire	43
1.4.2 Désintégration nucléaire	43
1.4.3 Mesurande	43
1.4.4 Équation de mesure et traçabilité métrologique	44
1.4.5 Calibration (Étalonnage)	44
1.5 Caractéristiques analytiques	48
1.5.1 Analyse totale des échantillons	48
1.5.2 Effet de l'état chimique et de la forme physique de l'élément à déterminer	49
1.5.3 Caractérisation par auto-validation	50

1.5.4	Ajustement des paramètres expérimentaux pour l'optimisation de l'expérience	51
1.5.5	AAN convient pour la mesure de la masse totale de l'élément de l'ordre du ppm au ppb	52
1.6	Applicabilité de l'AAN	54
1.6.1	Conditions préférées pour la sélection de l'AAN	54
1.6.2	Echantillons particulièrement adaptés à l'AAN	54
1.6.3	Aspects supplémentaires de l'utilisation de l'AAN	56
1.7	Conclusion	57
2	Évaluation des incertitudes pour les mesures d'AAN en utilisant la méthode de standardisation	58
2.1	Introduction	58
2.2	Considérations générales relatives à l'installation d'irradiation et la spectrométrie gamma	59
2.2.1	Caractérisation Neutronique : gradients et spectre d'énergie	59
2.2.2	Caractérisation du système de spectrométrie Gamma : stabilité dans la gamme dynamique	61
2.3	Évaluation de l'incertitude : Préparation de l'échantillon	61
2.3.1	Composition élémentaire des comparateurs "stand."	61
2.3.2	Rapport de l'abondance isotopique de la cible (échan./stand.)	62
2.3.3	Détermination de la masse de base (ou autre base de l'échan.)	62
2.3.4	Échantillons de blanc	63
2.4	Évaluation de l'incertitude : Irradiation de l'échantillon	63
2.4.1	Différences d'exposition aux taux de fluence neutronique pour les échan. comparés aux stand.	63
2.5	Les interférences d'irradiation	68
2.5.1	Interférences à neutrons rapides	69
2.5.2	Les interférences de fission	71
2.6	Les différences de section efficace entre les échantillons et les standards	72
2.7	Évaluation de l'incertitude : Spectrométrie gamma	73
2.7.1	Statistiques de réplification de comptage pour les échantillons	73
2.7.2	Statistiques de réplification de comptage pour les standards	74
2.7.3	Corrections pour la désintégration radioactive (effets temporels et incertitudes des demi-vies)	74
2.7.4	Corrections et incertitudes pour les interférences gamma	80
2.7.5	Corrections et incertitudes concernant les différences d'efficacité de comptage	84
2.7.6	Biais et incertitude potentiels dus à la méthode d'intégration des pics	88
2.8	Méthodes d'évaluation des budgets complets d'incertitude pour AAN	89
2.8.1	Considérations générales sur l'approche manuelle	89
2.8.2	Approche de la Feuille de calcul de Kragten (pour un seul échantillon et un seul standard) Considérations générales	90
2.8.3	Approche par dérivées partielles (pour un échantillon et un standard)	90
2.8.4	L'approche Monte Carlo	92
2.9	Conclusion	93

3	Caractérisation de l'installation et validation	94
3.1	Introduction	94
3.2	Caractérisation du détecteur	94
3.2.1	Système de détection	94
3.2.2	Sources radioactives utilisées pour la calibration	95
3.2.3	Calibration en énergie et en efficacité	96
3.3	Caractérisation du Réacteur	103
3.3.1	Installations d'irradiations (PTS et RSR)	103
3.3.2	Paramètre α	104
3.3.3	Paramètre f	107
3.3.4	Flux Φ_{th} et $\Phi_{ép}$	107
3.4	Résultats et validation	109
3.4.1	Résultats	109
3.4.2	Validation et analyses des résultats	112
3.5	Conclusion	121
4	Performances du laboratoire d'AAN du CENM	123
4.1	Introduction	123
4.2	Description des échantillons d'essai	124
4.3	Détails de l'exercice	124
4.3.1	Protocole analytique	124
4.3.2	Détection : Calibration et mesures	125
4.3.3	Valeur attribuée et Ecart-type cible	125
4.4	Résultats et discussion	128
4.5	Conclusions	135
5	Étapes conceptuelles de mise en œuvre des instruments PGAA/NI marocains : ÉTAPE I & II	136
5.1	Résumé	136
5.2	Abstract	136
5.3	Introduction	136
5.4	PGAA/NI implementation stages	138
5.4.1	Stage I : Installation of the collimator plug and primary beam shutter	138
5.4.2	Stage II : PGAA related instruments installation	141
5.5	Conclusion	148
6	Caractérisation du flux neutronique des canaux latéraux du réacteur marocain TRIGA Mark II	149
6.1	Résumé	149
6.2	Abstract	149
6.3	Introduction	150
6.4	Materials And Methods	151
6.4.1	Triga research reactor description	151
6.4.2	Experimental device description	152
6.4.3	Activation and Measurement	153
6.5	Methods	154
6.6	Results And Discussion	156
6.7	Conclusion	163

Conclusion Générale	164
Appendice	167
Bibliographie	200

Table des figures

1.1	Schéma de désintégration du ^{60}Co	29
1.2	Distribution typique de flux des neutrons pour les réacteurs des recherche	30
1.3	Spectre des rayonnements Gamma du ^{60}Co mesuré avec un détecteur a semi-conducteur (<i>Ge</i>) photopic à 1173 et 1332 <i>keV</i> et le pic simple (SE) et double (DE) échappement.	34
1.4	Définition du rapport P/T du détecteur Ge(HP)	35
1.5	Spectre des Gamma, mesurer dans différente intervalle après activation neutronique.	37
1.6	Section efficace d'interaction en fonction de l'énergie des neutron.	39
3.1	Détecteur à <i>Ge</i> (HP) dans son château de plomb aligné par une feuille de cuivre. . . .	94
3.2	Exemple de courbe d'étalonnage en énergie.	98
3.3	Capture d'écran de la feuille de calcul représentant les différents paramètres utilisés pour le calcul de l'efficacité photoélectrique pour la source ^{152}Eu	99
3.4	La courbe d'efficacité photoélectrique pour la distance de référence 7K.	100
3.5	Exemple de courbe d'efficacité obtenue à l'aide du programme k_0 -IAEA; a : courbe d'efficacité photoélectrique; b : courbe du pic au total; c : courbe du taux du premier échappement, d : courbe du taux du deuxième échappement. . . .	101
3.6	Les valeurs de l'efficacité mesurées et les résultats d'interpolation (fit) obtenus par le k_0 -IAEA pour la position de référence 7K.	102
3.7	Les deux installations d'irradiations destinées à l'AAN au Réacteur TRIGA MARK II du CENM.	103
3.8	Représentation schématique de la distribution du flux $\phi(E)$ en fonction de E. . . .	104
3.9	Non idéalité du spectre épithermique.	104
3.10	Facteur de variation D1 pour le Sol-7	119
3.11	Facteur de variation D1 pour le Granite Gs-N.	119
3.12	Facteur de variation D1 pour le Bauxite BX-N.	120
3.13	Facteur de variation D1 pour le Basalte BE-N.	120
3.14	Facteur de variation D1 pour le Biotite mica -Fe.	121
4.1	Valeur relative de l'écart-type cible, RSD, en fonction de la fraction massique attribuée à l'analyte, X_A , calculée en utilisant la fonction Horwitz modifiée. . . .	126
4.2	Présentation graphique des z-scores pour les résultats de la plante terrestre	133
4.3	Présentation graphique des z-scores pour les résultats du matériaux siliceux. . . .	134
4.4	Présentation graphique des z-scores pour les résultats du sédiment marin. . . .	134
4.5	Présentation graphique des $z - scores$ pour les résultats du tissu animal. . . .	135
5.1	Horizontal cross-section of the TRIGA Mark II research reactor with radial beam ports, including stage I components.	137
5.2	Detailed vertical and horizontal cross-sections of the PGAA/NI components. . . .	137
5.3	Collimator plug detailed design.	139
5.4	Primary beam shutter detailed design.	140
5.5	Shutter beam stop and collimator aperture design and material composition. . . .	140

5.6	The detailed design of the stage II components (not in scale).	141
5.7	The vertical translation system for switching between the PGAA and NI modes.	141
5.8	Internal cross section of the neutron guide.	142
5.9	Design view of the integrated neutron protection for the guide.	142
5.10	Vacuum housing for the neutron guide, including outside dimensions.	143
5.11	Top and side view of the base platform, including the detection system and the associated shielding.	144
5.12	3D view of the biological shielding designed for the final configuration of the PGAA/NI combined system.	145
5.13	General view of the detection system, including the HpGe, annulus BGO, and BGO catchers detector with lead shielding.	145
5.14	Detailed design for the BGO annulus detection (back view on the right and lateral view on the left).	146
5.15	Detailed design for the BGO catcher's detector.	146
5.16	Detailed design for lead collimator.	147
5.17	The Lynx® DSA fully integrated DSP.	147
6.1	On the right PS with front sealed nine PE vials used to position activation detector foils, on the left the experimental assembly for the insertion of the PS inside the beam tube.	152
6.2	Top view of the TMR II reactor and irradiation positions (A position in NB1 and B position in NB2).	153
6.3	MCNP model for TMR II with calculation positions and particle source distribution.	155
6.4	MCNP6 model of the PE vials with the associated threshold monitors (scale is not respected).	155
6.5	Neutron Flux Distribution in the Nine Studied Positions Obtained for the Measured and Calculated Values in the NB1 Beam Tube for the Three Energy Groups.	160
6.6	Neutron Flux Distribution in the Nine Studied Positions Obtained for the Measured and Calculated Values in the NB2 Beam Tube for the Three Energy Group.	163

Liste des tableaux

1.1	Exemple typique des conditions expérimentale d'une procédure de AANI.	38
1.2	Les limites de détection en (ppm) dans des spécimens de plante et sol observées par l'AAN.	53
2.1	Liste des interférences relatives aux neutrons rapides dans l'AAN.	70
2.2	Interférences typiques de fission de l'uranium - μg apparent d'élément par μg d'uranium.	71
2.3	Différences dans les corrections pour insuffisance de l'extension du temps actif dans le cas de ^{28}Al	78
2.4	Corrections pour ^{28}Al dans des comptages multiples d'un échantillon de SRM 1633b (fly-ash) après une courte irradiation.	78
2.5	Validation des corrections relatives à l'empilement des impulsions et d'extension du temps actif. Données pour les comptages multiples d'un échantillon de SRM 1633b (fly ash) après une courte irradiation.	79
2.6	Erreurs typiques qui seraient observées dans trois matériaux de référence certifiés géologiques si les interférences n'étaient pas corrigées.	80
2.7	Interférences observées dans plusieurs matrices communes.	81
2.8	Facteurs de correction d'autoabsorption des rayons gamma calculés pour des pastilles de 2 mm d'épaisseur (avec $\rho = 1$) pour certaines matrices et pour des énergies typiques.	87
2.9	Comparaison des corrections d'auto-absorption calculées pour des pastilles de 2mm d'épaisseur de CH_2O , de densité $\rho = 1$ par rapport à des pastilles de 2 mm d'épaisseur de SiO_2 , $\rho = 2$	87
2.10	Inventaire des incertitudes standards calculées suivant leur distribution probables.	92
3.1	Principales caractéristiques des détecteurs utilisés.	95
3.2	Sources radioactives utilisées pour la calibration des détecteurs.	95
3.3	Les raies émises par la source d' ^{152}Eu et les numéros de canaux correspondants.	97
3.4	Les différents coefficients du polynôme reliant $Ln(\varepsilon)$ et $Ln(\gamma)$	101
3.5	Les paramètres ϕ_{th} , ϕ_{rap} , f et α mesurés pour le PTS	110
3.6	Les paramètres ϕ_{th} , ϕ_{rap} , f et α mesurés pour le RSR	111
3.7	Concentrations des éléments analysés dans le Sol-7.	113
3.8	Concentrations des éléments analysés dans le Granite GS-N.	114
3.9	Concentrations des éléments analysés dans le Bauxite BX-N.	115
3.10	Concentrations des éléments analysés dans le Basalte BE-N.	116
3.11	Concentrations des éléments analysés dans le Biotite mica-Fe.	117
4.1	Résumé des résultats obtenus avec les $z - scores$ et $u - scores$ calculés pour le matériau Plante terrestre.	129
4.2	Résumé des résultats obtenus avec les $z - scores$ et $u - scores$ calculés pour le Matériau siliceux.	129
4.3	Résumé des résultats obtenus avec les z -scores et u -scores calculés pour le matériau Sédiment marin.	131

4.4	Résumé des résultats obtenus avec les z-scores et u-scores calculés pour le matériau Tissu animal.	132
6.1	Flux monitors used in the experiment and specifications	153
6.2	Flux monitors used in the experiment and specifications	154
6.3	Reaction rates associated to each reaction used for measurements.	156
6.4	Measured and Calculated Neutron Flux at the NB1 Beam Tube for the Nine Positions for the Three Energy Groups Including the Total	159
6.5	Reaction rates associated to each reaction used for measurements.	161
6.6	Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de K0 (2015) [93]. . . .	168
6.7	Pics d'échappements.	191
6.8	Liste des éléments triés par leurs périodes.	195
6.9	Liste des interférences relatives aux neutron rapide.	198

Liste des Symboles

v	: Vitesse des neutrons.
$\sigma(v)$	: Section efficace d'interaction des neutrons de vitesse v .
$n(v)dv$	: Densité des neutrons de vitesse comprise entre v et $v + dv$.
n	: Densité de neutrons thermiques.
R	: Taux de réaction.
ϕ	: Taux de fluence neutronique.
V_0	: Vitesse neutronique la plus probable à 20°C : 2200 m s ⁻¹ .
t_r	: Temps de décroissance ou de refroidissement.
t_c	: Durée de la mesure.
t_i	: Temps d'irradiation.
t_L	: Temps actif de comptage (live time).
λ	: Constante de décroissance ($=\frac{\ln 2}{t_{1/2}}$).
C	: Nombre de coup net dans le pic de rayons γ d'énergie E_γ .
N_{Av}	: Nombre d'Avogadro, mol ⁻¹ .
θ	: Abondance isotopique.
m_x	: Masse de l'élément irradié, g.
M_a	: Masse atomique, g.mol ⁻¹ .
I_γ	: Facteur d'embranchement du rayon gamma.
ε	: Efficacité photoélectrique absolue .
E_γ	: Énergie du photon γ .
λ	: Constante de décroissance ($=\frac{\ln 2}{t_{1/2}}$).
σ_{eff}	: Section effective moyenne, m ² .
R_θ	: Rapport des abondances isotopiques pour l'échant. et le stand.
R_Φ	: Rapport des taux de fluence neutronique pour l'échant. et le stand.
R_σ	: Rapport des sections transversales efficaces.
R_ε	: Rapport des efficacités de comptage pour l'échant. et le stand.
D_L	: Limite de détection.

B	: Bruit de fond sous un pic de rayons gamma.
$m_{x(inc)}$	: Masse de l'élément x dans l'échantillon inconnu.
$m_{x(std)}$	: Masse de l'élément x dans le standard.
$m_{x(eta)}$	: Masse de l'élément x dans l'étalon.
$A_{0(inc)}$	: Activité induite corrigée dans l'échantillon inconnu.
$A_{0(std)}$	: Activité induite corrigée dans le comparateur.
$blanc$	: Masse de l'élément dans le blanc.
A_0	: Taux de décroissance corrigé.
f_p	: Correction pour l'empilement "Pileup Pulse".
f_{ltc}	: Correction de l'inadéquation de l'extension du temps actif.
f_φ	: Facteur de correction pour l'autoprotection des neutrons.
Σ_a	: Section efficace macroscopique d'absorption.
Σ_d	: Section efficace macroscopique de diffusion.
f_r	: Erreur de correction pour la désintégration.
F_P	: Correction du Pileup.
P	: Constante de pileup déterminée expérimentalement.
u_P	: Incertitude dans la détermination de la constante de pileup P .
$F_{ltc(c)}$	: Facteur de correction de l'inadéquation de la correction du temps réel.
I_{in} et I_{out}	: Intensités initiale et finale.
ρ	: Densité volumique.
μ	: Coefficient d'atténuation linéaire.
$w_{x(inc)}$ et $w_{x(std)}$	: Fractions de masse de l'élément x dans l'échantillon et le standard.
$u_c(y)$	: Incertitude standard combinée de y .
C	: Numéro de canal.
A	: Activité actuelle de la source.
$\overline{E}_{r,i}$	: Énergie de résonance effective pour l'isotope i .
$k_{0,Au}$	: Facteur k_0 pour l'isotope i par rapport à la référence Au .
$A_{sp,i}$	: Activité spécifique de l'isotope i .
$G_{e,i}$	: Paramètre d'autoprotection épithermique pour l'isotope i .

$G_{th,i}$	: Paramètre d'autoprotection thermique pour l'isotope i .
$Q_{0,i}(\alpha)$	: Intégrale de résonance de l'isotope i .
α	: Facteur de déviation par rapport à la loi $1/E$.
f	: Rapport du taux de fluence des neutrons thermiques et épithermiques.
ϕ_{th}	: Flux thermique.
$\phi_{ép}$	: Flux épithermique.
ϕ_{rap}	: Flux rapide.
N_0	: Nombre de noyaux cible.
$z - score$	: Score standard.
$u - score$	: Score de performance.
X_{lab}	: Valeur calculée.
X_{cer}	: Valeur certifiée.
$D1$	: Coefficient de variation.
C_i	: Correction pour un radionucléide individuel.
C_c	: Correction pour la constante du temps mort.

Nomenclature

AAN	: Analyse par Activation Neutronique
AANI	: Analyse par Activation Neutronique Instrumentale
AANR	: Analyse par Activation Neutronique Radiochimique
BGO	: Bismuth Germanate Oxide
CENM	: Centre d'Etudes Nucléaires de la Mâamora
CITAC	: Cooperation on International Traceability in Analytical Chemistry
CNESTEN	: Centre Nationale de l'Énergie, des Sciences et des Techniques Nucléaire
DSP	: Digital Signal Processor
DT	: Dead Time
FWHM	: Full Width at Half Maximum
Ge(HP)	: Germanium Hyper Pure
HDPE	: High Density Poly Ethylene
ICP	: Inductively Coupled Plasma
ILL	: Institut Laue–Langevin
IOS	: International Organization for Standardization
LEGe	: Low Energy Germanium
LIBS	: Laser-Induced Breakdown Spectroscopy
LWR	: Low Watter Reactor
MCA	: Multichannel Analyzer
MCNP	: Monte Carlo N-Particle
NB1	: Neutron Beam 1
ND	: Neutron Diffraction
NI	: Neutron Imaging
NIST	: National Institute of Standards and Technology
PGAA	: Prompt Gamma Activation Analysis
PIPS	: Passivated Implanted Planar Silicon
PT	: Proficiency Test
PMT	: Photomultiplier Tube

ppm	: Partie Par Million
PS	: Polyethylene Support
QA	: Quality Assurance
QC	: Quality Control
RSD	: Relative Standard Deviation
SINQ	: Swiss Spallation Neutron Source
PTS	: Système de Transfere Pneumatique
TRR	: Tehran Research Reactor
TRIGA,TMIIRR	: Training, Research, Isotopes, General Atomics
XRF	: X-ray Fluorescence

Introduction Générale

L'analyse par activation neutronique (AAN) est une méthode de détermination qualitative et quantitative des éléments basée sur la mesure du rayonnement caractéristique des radionucléides formés directement ou indirectement par irradiation neutronique du matériau. La source de neutrons la plus appropriée est généralement un réacteur nucléaire de recherche. Les caractéristiques de la méthode peuvent être résumées comme suit :

1. Limites de détection très basses pour 30 à 40 éléments,
2. Indépendance matricielle significative,
3. La possibilité d'une analyse non destructive (AAN instrumentale ou AANI),
4. L'utilisation de la séparation radiochimique pour surmonter les interférences dans les spectres gamma complexes (AAN radiochimique ou AANR),
5. Une capacité inhérente à des niveaux de précision élevés par rapport à d'autres techniques d'analyse des éléments traces.

En raison de sa sensibilité et de sa précision inhérentes, l'AAN peut être largement appliquée dans plusieurs domaines scientifiques, à savoir dans le contrôle et la surveillance de l'environnement, la recherche géo- et cosmo-chimique, dans les sciences de la vie (par exemple, la détermination des oligo-éléments essentiels et toxiques dans les organismes), la recherche archéologique, la recherche sur les matériaux et dans l'assurance qualité d'autres techniques d'analyse des éléments traces (analyses de contrôle, préparation et certification de matériaux de référence). Le contrôle et la surveillance de la pollution de l'environnement, en particulier la surveillance de la pollution de l'air, est un exemple typique d'application de l'AAN [18]. La surveillance de la pollution atmosphérique concerne la détermination de l'impact, la composition élémentaire et la taille des particules d'aérosol dans l'air ambiant ou intérieur, ou l'étude des paramètres ci-dessus dans les aérosols de combustion, qui sont la principale source de pollution de l'air [19]. L'AAN est également utilisée pour déterminer l'aluminium, le silicium et le magnésium dans les matrices géologiques [20] et les éléments de terres-rares dans les échantillons de sol [21]. Le rôle de AAN dans les études biomédicales, dans l'assurance qualité et dans la préparation de matériaux de référence semble être fermement établi ces dernières années.

Il est généralement admis que l'AAN est une technique mature. Les principes de la méthode sont bien compris et il n'y a presque pas d'aspects fondamentaux dans la méthode qui impliquent davantage de développement, d'innovation ou pour lesquels des percées technologiques sont prévues, qui changeraient radicalement le rôle de l'AAN.

Les méthodes utilisées pour déterminer la composition des éléments dans un échantillon inconnu sont la méthode relative, absolue et k_0 -AAN. En particulier, la méthode de normalisation k_0 transforme l'AAN en une méthode de détermination hautement efficace, gérable et compétitive. Pour cette raison, la normalisation k_0 dans l'AAN est de plus en plus utilisée dans de nombreux laboratoires du monde entier [20, 29, 55]. Cette méthode consiste en la préparation des échantillons, l'irradiation des échantillons, la mesure par spectrométrie gamma de l'activité des radionucléides formés et le calcul de la teneur en éléments sans aucun traitement chimique. C'est la manière la plus simple de réaliser l'AAN en utilisant les méthodes relatives et k_0 -AAN. La fiabilité et la crédibilité d'un résultat nécessitent l'instauration d'un processus bien maîtrisé qui ne se caractérise pas uniquement par un nombre de tests pacifiques liés à la fois aux installations et aux données statistiques.

La véracité des résultats d'un test de laboratoire peut être reconnue si le laboratoire possède un certificat d'évaluation des résultats de test ou a été accrédité. Cela garantit aux utilisateurs des services de laboratoire que les résultats des tests produits ont une bonne valeur en termes d'exactitude et de précision. Cette dernière est essentiellement soutenue par des installations bien caractérisées et des infrastructures de laboratoire étalonnées correctement; La méthode utilisée doit être validée par des standards confirmés utilisant des matériaux standards références (MSR). En addition, le système qualité de R&D doit être préparé et appliqué conformément aux lignes directrices de la série des normes ISO-9000 et ses équivalents ou Guide ISO/CEI 25 et ses standards dérivés national.

Afin de soutenir le programme d'assurance qualité et afin de générer les données d'essai souhaitées de manière cohérente, continue, planifiée, contrôlée et assurant efficacement l'amélioration de la qualité des opérations du laboratoire, il est nécessaire d'effectuer des tests d'inter-comparaison sur la méthode utilisée dans le laboratoire. En plus de cela, le test de comparaison vise à convaincre les utilisateurs des services du laboratoire que l'installation fonctionne correctement et que le résultat de l'évaluation est conforme à la réglementation applicable. Chaque méthode de test a un caractère différent. Cette distinction est celle qui sera comparée, de sorte que ces activités ne recherchent pas une bonne ou une mauvaise méthode. Quoiqu'il en soit, les données d'essai comparatives devraient être utilisées par les praticiens et les utilisateurs de ces services de méthodes d'analyse par activation neutronique (AAN) comme options de référence pour optimiser les objectifs à atteindre pour les méthodes d'essai comparatives utilisées pour satisfaire à l'une des clauses contenues dans l'ISO / CEI 17025-2008. C'est dans ce processus que le laboratoire d'Analyse par Activation Neutronique du CENM est lancé pour marquer ces treize (13ans) ans d'expérience accumulées appliquées dans diverses disciplines.

Le but des essais d'inter-comparaison est d'évaluer les performances du laboratoire dans l'analyse élémentaire, en particulier pour les paramètres qui sont appliqués dans l'essai d'apti-

tude. Le résultat de ces tests d'aptitude est très important dans l'évaluation de la performance globale d'un laboratoire et constitue un maillon fort à considérer par le comité national d'accréditation dans la fourniture et le maintien du statut d'accréditation. C'est dans ce contexte que ce travail de thèse contribue, en mettant l'accent sur les aspects de caractérisation des instruments, les contrôles de qualité pour la validation interne de la méthode et l'analyse des tests d'inter-comparaison.

Dans le cadre stratégique, lié à l'élargissement, par l'inclusion des éléments légers tels H, B, C, N, Si, P, S et le Cl d'une part et les éléments lourds tels que le Cd, Sm, Gd , et le Hg , de la gamme analytique du laboratoire d'AAN, le CNESTEN a décidé d'implémenter un nouvel instrument baptisé Analyse par Activation Neutronique par les Gammas Promptes (PGAA) qui a occupé une grande partie de ce travail de thèse, vu sa complexité pluridisciplinaire. Le design conceptuel intégrale de cet instrument (système) a été élaboré avec une stratégie d'implémentation optimisée respectant les standards et les normes de conception, de fabrication et de construction internationaux en particulier ceux relatifs à la sûreté et la sécurité nucléaire liées au système.

L'implémentation d'un tel système complexe auprès d'un canal du réacteur nécessite une caractérisation minutieuse du faisceau. Les paramètres de base du faisceau, y compris le flux de neutrons, ont été mesurés avec des détecteurs d'activation à seuil pour deux canaux latéraux. Les résultats ont été validés par un modèle de simulation de Monte Carlo et ont été utilisés pour l'optimisation du système PGAA.

La mise en page de cette thèse présente par le biais du chapitre 1 les aspects fondamentaux de la technique d'AAN, l'équation de mesure et la métrologie associées, et les caractéristiques analytiques et l'applicabilité de la technique [92].

Le deuxième chapitre décrit les aspects d'incertitude associés aux mesures effectuées par l'analyse par activation neutronique depuis la préparation jusqu'au calcul des concentrations [92].

D'autres aspects, indispensables à réaliser, sont la caractérisation de l'installation et la validation de la méthode d'essais qui font l'objet du chapitre 3. Le premier aspect, qui est implicitement hors intérêt des utilisateurs (end-user), consiste à mesurer les paramètres intrinsèques (caractérisation) des équipements utilisés tels les détecteurs et les installations d'irradiation. Le deuxième, permet de valider en interne la méthode utilisée en utilisant des matériaux standards de référence ou certifiés.

Le quatrième chapitre est une sorte de rapport d'évaluation des performances du laboratoire d'analyse par activation neutronique du CENM dans le cadre de tests d'inter-comparaison.

Le cinquième chapitre évoque une description d'un nouveau système d'analyse par activation neutronique par les gammas prompts (PGAA) qui a été développé auprès du réacteur TRIGA du CENM dans le cadre de ce travail de thèse.

Le chapitre six représente un travail de caractérisation du flux neutronique des canaux latéraux NB1 et NB2 du réacteur Triga en utilisant l'activation des détecteurs à seuils validé avec un modèle MCNP.

Analyse par Activation Neutronique : Principes et caractéristiques analytiques

1.1 Introduction

Le but de ce chapitre est de fournir au lecteur une compréhension des principes fondamentaux de base de l'analyse par activation neutronique et d'expliquer pourquoi et quand elle doit être utilisée, pourquoi elle fonctionne comme tel, ce qu'elle a à offrir et comment elle devrait être appliquée. D'autre par ce chapitre met en lumière les différentes étapes de la méthode ainsi que les aspects de métrologie et d'applicabilité de la technique.

1.2 Principes fondamentaux de l'analyse par activation neutronique

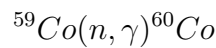
1.2.1 Activation

L'activation avec des neutrons est, lors de la préparation des échantillons, la première étape d'une procédure de l'analyse par Activation Neutronique Instrumentale (AANI). Son but est de convertir une partie des noyaux stables en noyaux radioactifs émettant des radiations qui peuvent être utilisées à des fins analytiques. Un aperçu des réactions qui peuvent avoir lieu lors de l'activation facilite l'identification de la relation entre le noyau radioactif observé, son noyau d'origine et élément associé. Un aperçu des taux de réaction est d'une importance pour l'analyse quantitative et des estimations à priori de la faisabilité d'une analyse. Chaque noyau atomique peut capturer des neutrons lors de l'irradiation. Ce qui entraîne une réaction nucléaire dans laquelle souvent les changements de masse nucléaires, immédiatement (typiquement $10^{-14}s$) après la capture, est manifesté par un excès d'énergie émis sous forme de photons et / ou de particules. Le noyau nouvellement formé peut être instable. Si instable après activation, il commence à se désintégrer à un état stable par l'émission d'un rayonnement à travers un ou plusieurs des processus suivants : désintégration α , désintégration β^- , capture électronique, désintégration β^+ , ou désintégration de transition interne. Dans la plupart des cas des rayonnements γ et seront également émis.

La capture d'un neutron par un noyau atomique et la réaction résultante peuvent être représentées, dans le cas d'un noyau cible de Cobalt, par :



Le noyau résultant ^{60}Co est radioactif et se désintègre (et ainsi convertit) par émission de rayonnement β^- à l'état excité du noyau stable ^{60}Ni , suivie par l'émission d'un rayonnement γ causé par la transition interne de ce noyau à partir de ses niveaux excités à son état fondamental ; voir figure 1.1 . Généralement, la réaction est écrite dans la notation abrégée en tant que :



dans laquelle γ se réfère au rayonnement prompt émis et non au rayonnement gamma qui suit la désintégration β^- .

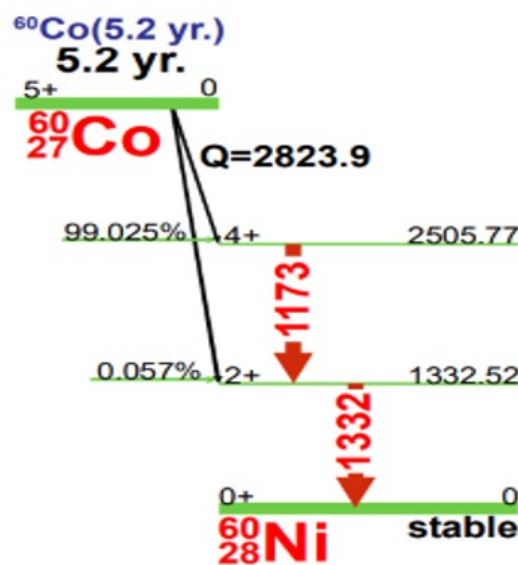


Figure 1.1 – Schéma de désintégration du ^{60}Co

La réaction la plus courante qui se produit dans l'AAN est la réaction (n, γ) , mais aussi des réactions telles que (n, p) , (n, α) , (n, n) et $(n, 2n)$ sont importantes.

La section efficace, σ , est une mesure de la probabilité qu'une réaction aura lieu, et peut être fortement différente suivant les types de réaction, les éléments et les distributions d'énergie des neutrons incidents. Certains noyaux, comme l' ^{235}U sont fissiles par capture de neutrons et la réaction est notée comme (n, f) , ce qui donne des produits de fission et des neutrons rapides (hautement énergétiques).

Les neutrons sont produits par :

1. Sources isotopiques de neutrons, comme $^{226}\text{Ra}(\text{Be})$, $^{124}\text{Sb}(\text{Be})$, $^{241}\text{Am}(\text{Be})$, ^{252}Cf : Les neutrons ont des distributions d'énergie avec un maximum de l'ordre de 3 à 4 MeV ; la

production totale est typiquement 10^5 - $10^7 \text{ s}^{-1} \text{ GBq}^{-1}$ ou pour ^{252}Cf , $2,2 \cdot 10^{12} \text{ s}^{-1} \text{ g}^{-1}$.

2. Les accélérateurs de particules ou les générateurs de neutrons : Les types les plus communs sont basés sur l'accélération des ions deutérium vers une cible de deutérium ou le tritium, ce qui entraîne les réactions $^2\text{H}(^2\text{H}, n)^3\text{H}$ et $^3\text{H}(^2\text{H}, n)^4\text{He}$, respectivement. La première réaction, souvent désignée par (D, D) , dont les rendements de neutrons mono-énergétiques de $2,5 \text{ MeV}$ est typiquement de l'ordre de $10^8 - 10^{10} \text{ s}^{-1}$; la deuxième réaction (D, T) se traduit par des neutrons mono-énergétiques de $14,7 \text{ MeV}$ et d'un rendement de $10^9 - 10^{11} \text{ s}^{-1}$.
3. Les réacteurs de recherche nucléaire : La distribution d'énergie des neutrons dépend de la conception du réacteur et ses installations d'irradiation. Un exemple d'une distribution d'énergie dans un réacteur à eau légère est donné à la Figure 1.2 à partir de laquelle on peut voir que la plus grande partie des neutrons a une répartition d'énergie beaucoup plus faible que celle des sources et générateurs isotopique de neutrons. La production des neutrons dans les réacteurs de recherche dans une installation d'irradiation est souvent citée comme le taux de fluence neutronique et varie en fonction de la conception du réacteur et la puissance du réacteur, entre 10^{15} et $10^{18} \text{ n.m}^{-2}\text{s}^{-1}$.

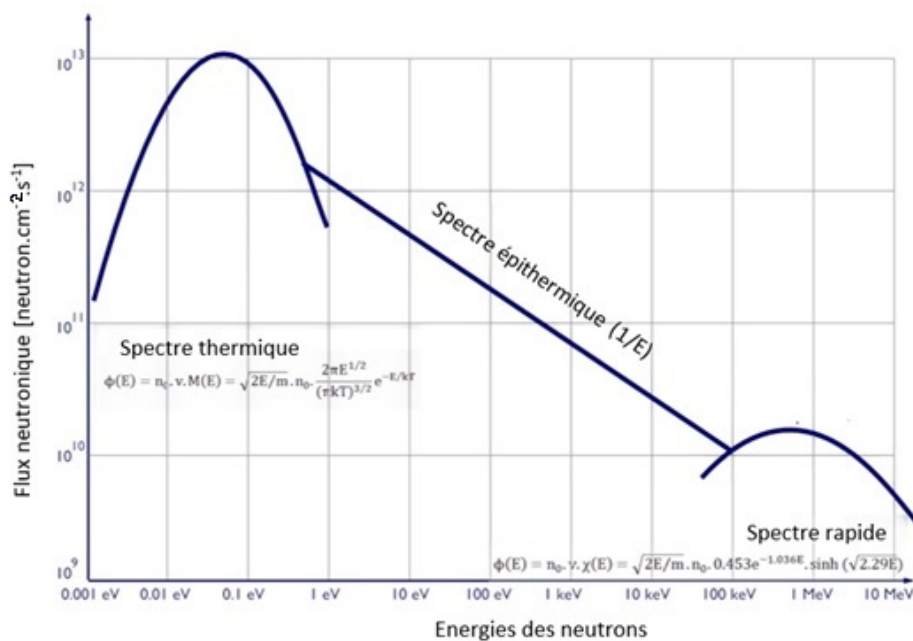


Figure 1.2 – Distribution typique de flux des neutrons pour les réacteurs des recherche

Dans la plupart des procédures d'AANI, des réacteurs à neutrons thermiques sont utilisés pour l'activation : les neutrons sont en équilibre thermique avec leur environnement. Parfois l'activation avec des neutrons épi-thermiques (neutrons du réacteur en processus de ralentissement après leur formation à partir de la fission de ^{235}U) est préférée pour favoriser l'activation des éléments qui ont un grand rapport entre la section efficace de résonance et celle de neutrons thermique par rapport aux éléments ayant un tel rapport faible.

En principe, les matériaux peuvent être activés dans un état physique quelconque, à savoir : solide, liquide ou gazeux. Il n'y a aucune nécessité fondamentale pour convertir un matériau solide en une solution avant l'activation ; l'AANI est essentiellement considérée comme une méthode non destructive, bien que dans certaines conditions des dégâts matériels peuvent survenir en raison de chauffage thermique, radiolyse et des traces de rayonnement causées par les fragments de fission et les particules α par exemple. Lors de l'activation, la matière est chauffée par principalement l'absorption des rayons gamma du réacteur (fission de l'uranium, les produits de fission et d'activation dans les matériaux de construction) d'une part et les rayons gamma prompts libérés lors de la capture de neutrons d'autre part. La radiolyse est un autre effet causé par les rayons gamma. H_2 , O_2 et H_2O_2 sont formés à partir, par exemple de l'eau hydratée, des protéines ou d'autres molécules organiques. Les fragments de fission et les particules α peuvent produire des petits trous dans des feuilles de plastique dédiés ; ces trous peuvent être rendues visibles au microscope après un traitement chimique.

1.2.2 Désintégrations

Les noyaux radioactifs sont instables et se désintègrent en un produit résultant de masse inférieure à celle de l'élément parent. La décroissance du noyau à l'état stable implique l'émission de divers types de rayonnements ionisants. La désintégration radioactive est un processus statistiquement aléatoire ; la probabilité pour qu'un noyau donné se désintègre dans un certain intervalle de temps ne dépend que du temps d'observation. Il est impossible de prédire quand un noyau donné se désintègre, mais les caractéristiques de décroissance peuvent être décrites par les lois physiques de la désintégration radioactive, qui sont comparables à la théorie de la cinétique chimique de premier ordre. Ce point est développé dans le paragraphe sur l'équation de mesure.

Les schémas de décroissance fournissent les détails de la désintégration des radionucléides, tels que, par exemple, les niveaux d'énergie et les demi-vies mise en jeu, les transitions, la multipolarité de spin et les rapports de branchement, les types de rayonnement émis, les intensités relatives et les coefficients de conversion [22]. Les données du schéma de désintégration sont basées sur des informations provenant directement de l'expérience avec l'introduction des références complètes de la littérature originale. Un exemple d'un tel schéma de désintégration est donné à la Figure 1.1.

1.2.3 La mesure

La radioactivité induite est mesurée par la détection du rayonnement émis lors de la désintégration du radionucléide. En principe, la particule β émise à partir de la transformation nucléaire et le rayonnement gamma souvent émis à la suite de la transition isomérique à l'état stable peuvent être utilisés à la fois ; à cet effet ; par ailleurs, le taux de désintégration du radionucléide peut être mesuré. Dans l'AAN, presque exclusivement l'énergie du rayonnement γ est

mesurée en raison du pouvoir de pénétration plus élevé de ce type de rayonnement, et la sélectivité qui peut être obtenue à partir des énergies distinctes de photons, différemment de l'émission de rayonnement β qui suit une distribution continue en énergie. L'interaction des rayons gamma et les rayons X avec la matière résulte, entre autres, à des processus d'ionisation et la génération subséquente de signaux électriques (courants) qui peuvent être détectés et enregistrés. Un détecteur de rayonnement est donc constitué d'un matériau absorbant, dans lequel au moins une partie de l'énergie de rayonnement est convertie en produits détectables, et un système pour la détection de ces produits.

Dans les détecteurs d'ionisation, tels que les détecteurs à gaz et les détecteurs à semiconducteurs, les ions ou les électrons sont collectés directement par l'application d'un champ électrique aux bornes du milieu absorbant et la collecte subséquente des porteurs de charge libres s'effectue au niveau des électrodes. Il y a deux grands avantages de l'utilisation d'un matériau solide au lieu d'un gaz pour la détection du rayonnement. Tout d'abord, le rayonnement est absorbé beaucoup plus efficacement au niveau d'un matériau solide que dans un gaz en raison de la densité très élevée du matériau. D'autre part, l'énergie nécessaire pour former une paire d'ions dans un solide est égal à l'énergie de la zone interdite qui se trouve entre la bande de valence et celle de conduction, qui est généralement beaucoup plus faible que le potentiel d'ionisation d'un atome de gaz isolé. Plusieurs paires d'ions sont formées de l'interaction et par conséquent la résolution en énergie est améliorée.

Les détecteurs à ionisation à l'état solide doivent avoir de très faible fuite de courant pour rendre les signaux de rayonnement ionisants détectable, et contiennent peu d'impuretés qui pourraient piéger les porteurs de charge avant la détection. Cristaux de matériaux semi-conducteurs en tant que tels répondent mieux à ces exigences. Les cristaux intrinsèques de silicium et de germanium sont les plus largement appliqués. Le détecteur est conçu de telle sorte qu'il agit en tant qu'un redresseur à diodes de sorte qu'une tension élevée peut être appliquée dans une direction sans courant de décharge. Refroidir les détecteurs à au moins -30°C , (Si) ou -173°C (Ge) réduit les fuites de courant.

Dans les détecteurs à scintillation, l'ionisation est mesurée indirectement par la détection secondaire de lumière de scintillation auquel ce matériau absorbant est transparent. La différence entre la détection directe et indirecte des produits d'ionisation se traduit directement par une différence considérable dans la distribution statistique des événements observés et donc des performances de la résolution en énergie des rayonnements.

Les détecteurs à semi-conducteurs en Si et particulièrement le Ge sont actuellement les plus utilisés dans l'AAN en raison de leur résolution en énergie, qui est supérieure à la résolution des détecteurs à scintillation. La performance des différents types de semi-conducteurs et détecteurs à scintillation en termes d'efficacité de détection et de la résolution en énergie dépend fortement de la taille et la construction du détecteur, et l'énergie du rayonnement à mesurer. Le résultat d'un détecteur de rayonnement est une impulsion de courant. La quantité d'énergie déposée par ionisation est reflétée par l'intégrale de cette impulsion en fonction du temps. Il

est généralement admis que la forme de l'impulsion de sortie d'un détecteur de rayonnement ne change pas d'un cas à l'autre. L'intégrale est directement proportionnelle à l'amplitude (ou de la hauteur) d'impulsion de sortie. La relation entre l'énergie du rayonnement incident, et la charge totale déposée dans le cristal du détecteur ou la hauteur d'impulsion du signal de sortie est désignée comme étant la réponse du détecteur. Pour les détecteurs à semi-conducteurs, la réponse est linéaire pour les différentes énergies.

La forme de la fonction de réponse ou le spectre du rayon gamma reflète les trois processus d'interaction de photons avec la matière : Effet Photoélectrique, la Diffusion Compton et la Production de Paires. Si une interaction entraîne l'effet photoélectrique, l'énergie totale E_γ du photon est transférée à un électron atomique. Ce photoélectron va perdre son énergie $E_\gamma - E_b$ dans l'absorbeur. Pendant le remplissage de la couche vacante créée par un autre électron, l'énergie E_b est libérée par émission de rayons X ou un électron Auger. L'énergie transportée par l'électron Auger de faible énergie sera transféré complètement vers l'absorbeur. À la suite de ce subséquent processus, l'énergie déposée dans l'absorbeur totalise $E_\gamma - E_b + E_b = E_\gamma$ qui devient visible dans le spectre des rayons gamma comme soi-disant photopic énergétique total. L'interaction Compton se traduit par l'émission d'un photoélectron et de la diffusion d'un photon Compton, ce qui peut interagir encore une fois par l'un des trois mécanismes d'interaction. Pendant ces diffusions successives, les rayons gamma diffusés contiennent de moins en moins d'énergie jusqu'à ce que toute l'absorption photoélectrique devienne inévitable. Dans ce cas, l'événement d'origine va contribuer de nouveau au photopic total. Cependant, il existe une probabilité distincte que le photon Compton diffusé s'échappe à partir du cristal, en prenant le reste d'énergie avec lui. Cette probabilité dépend de la taille du volume actif du cristal, la surface du détecteur et l'énergie des photons.

La réponse du détecteur aux photoélectrons diffusés par effet Compton se traduit seulement par un continuum Compton dans le spectre. Au-dessus d'un seuil de 1022 keV , le photon incident peut interagir avec le champ électrique du noyau atomique. Cette interaction se traduit par la conversion du photon en une paire électron-positron. Ce processus est appelé la création de paires. Le photon est complètement absorbé dans ce processus. L'énergie-seuil résulte de l'énergie nécessaire pour créer la paire électron-positron, ce qui équivaut à $2m_e C^2 = 1022 \text{ keV}$. L'excès d'énergie de $E_\gamma - 1022 \text{ keV}$ est emporté par la paire électron-positron sous forme d'énergie cinétique. Dans un premier temps, cette énergie est transférée à l'absorbeur. Lorsque le positron a perdu la totalité de son énergie cinétique, il s'annihile en rencontrant un électron, résultant en deux photons d'annihilation de 511 keV chacun. Ces photons peuvent échapper ou déposer leur énergie partiellement ou totalement dans l'absorbeur. L'énergie nette absorbée en conséquence de la production de paires est donc :

- si un photon d'annihilation échappe au détecteur : $E_\gamma - 511 \text{ keV}$
- si deux photons d'annihilation échappent au détecteur : $E_\gamma - 1022 \text{ keV}$
- si les deux photons d'annihilation interagissent par effet photoélectrique et s'absorbent

complètement dans le détecteur : $E_\gamma \text{ keV}$.

Les pics dans le spectre de rayons gamma résultant de l'échappement des photons d'annihilation sont désignés comme pic d'échappement simple et double, respectivement. Un spectre de rayons gamma illustrative mesuré avec un détecteur à semi-conducteur Ge est représenté sur la Figure 1.3, montrant les photopics résultants de l'absorption photoélectrique, le continuum Compton reflétant la distribution des énergies de photons déposées par effet Compton et dont le photon résultant a échappé au cristal, les pics d'échappement simples et doubles, qui reflètent l'énergie déposée dans le cristal après l'échappement d'un, ou des deux quanta de 511 keV après la production de paires. Étant donné que les probabilités des trois processus interactifs sont dépendantes de l'énergie des photons, l'efficacité de détection est également dépendante de l'énergie. L'appendice assemble tous les pics d'échappement simples et doubles susceptible d'être détecté dans la pratique de l'AAN.

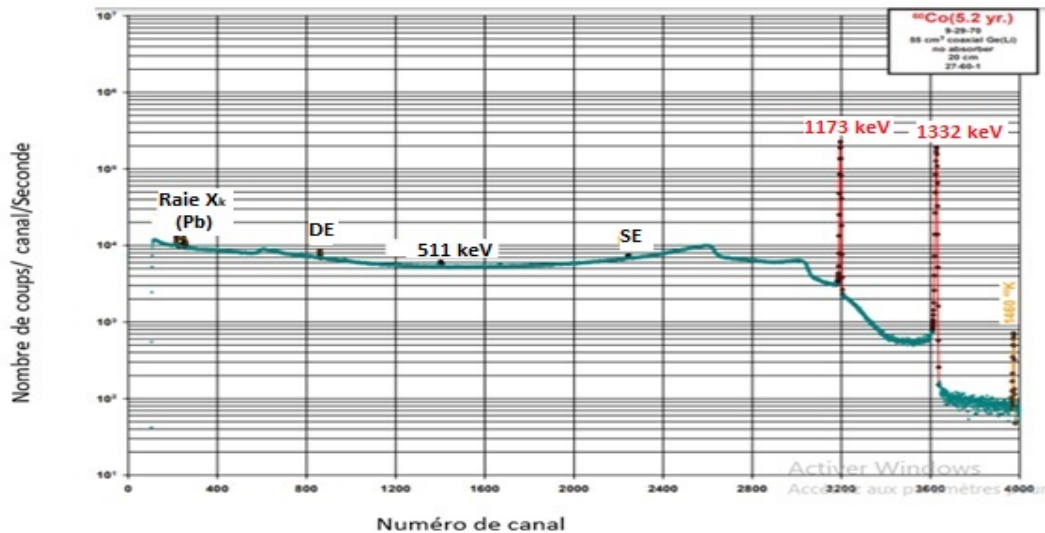


Figure 1.3 – Spectre des rayonnements Gamma du ^{60}Co mesuré avec un détecteur à semi-conducteur (Ge) photopic à 1173 et 1332 keV et le pic simple (SE) et double (DE) échappement.

L'efficacité de détection est la fraction de l'ensemble du rayonnement émis par une source qui produit un enregistrement (signale) dans le volume sensible du détecteur. L'efficacité de détection est composée des éléments principaux suivants :

- (I) L'efficacité de l'interaction, ϵ , qui est la fraction du rayonnement frappant le volume sensible du détecteur et qui induit l'enregistrement d'un événement.
- (II) Le facteur géométrique, G_f , qui est la fraction de l'ensemble des rayonnements émis en direction du détecteur. Ce facteur est lié à l'angle solide Ω : $G_f = \frac{\Omega}{4\pi}$.
- (III) Le Rapport Pic au Total, P_T , qui est la fraction des événements enregistrés dus à l'absorption de l'énergie total (photopic) du rayonnement émis.

La Figure 1.4 illustre un spectre mesuré de la source mono énergétique du ^{137}Cs qui est en générale utilisées pour déterminer ce rapport.

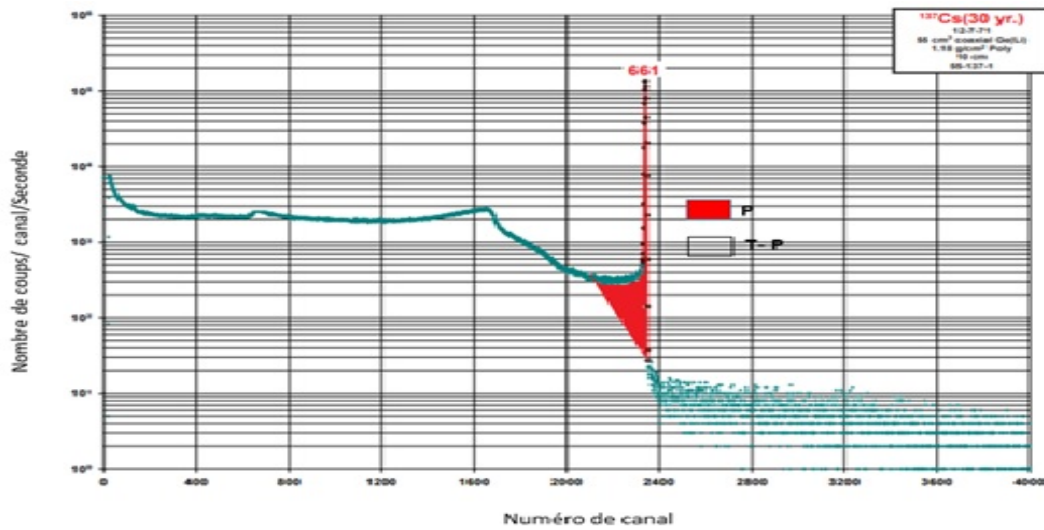


Figure 1.4 – Définition du rapport P/T du détecteur Ge(HP)

Dans les calculs de l'efficacité de détection, l'inclusion d'un facteur d'atténuation du rayonnement dans la source elle-même et dans les matériaux entre la source et le volume sensible du détecteur doit y avoir lieu.

Le produit de l'efficacité d'interaction et le facteur géométrique est noté efficacité totale ε_T : $\varepsilon_T = \varepsilon_i \cdot G_f$, tandis que le produit de l'efficacité totale et le rapport P_T est l'efficacité du pic photoélectrique (photopic) ε_P : $\varepsilon_P = \varepsilon_T P_T$.

La résolution en énergie d'un détecteur de rayons gamma est une fonction de l'énergie déposée dans le détecteur. Les fluctuations du nombre d'ionisations et excitations dans le détecteur provoquent le fait que les pics dans le spectre ont une largeur finie normalement considérée comme une distribution de Gausse. La probabilité qu'un rayonnement incident produise des paires électron-trou accompagnées des porteurs de charge est un processus, en une première approximation, où la loi statistique de Poisson peut être appliquée. La largeur effective des pics dans les spectres est déterminée par la résolution intrinsèque du détecteur - qui est déterminée par le nombre et la distribution statistique des porteurs de charge, créé dans le cristal lors de l'interaction du rayonnement gamma-, et la résolution extrinsèque qui est traduite, par le courant de fuite à travers ou autour du volume actif dans les détecteurs à semi-conducteur, ainsi que les effets d'élargissement provenant de tous les composants électroniques suivant le détecteur. La résolution intrinsèque est également liée à la taille et le type du cristal détecteur et sa température. En outre, la largeur réelle des pics dépend du type de rayonnement. Les niveaux nucléaires d'énergie impliqués dans l'émission des rayonnements gamma ont de très petites largeurs avec un impact négligeable sur la forme des pics dans le spectre, différemment des largeurs des pics naturelle des émissions de rayons X. La forme du pic de 511 keV dans le spectre qui résulte des

rayonnements d'annihilation est nommée élargissement Doppler.

Le spectre gamma est analysé afin d'identifier les radionucléides produits et leurs quantités de radioactivité afin d'en tirer les éléments cibles à partir desquels ils ont été produits et leurs masses dans l'échantillon activé. L'analyse du spectre commence premièrement par la détermination de l'emplacement des centroides des « ou de » pics. Deuxièmement, les pics sont traités pour obtenir leurs positions précises et leurs aires nettes. Les positions - souvent exprimées en numéros des canaux de la mémoire de l'analyseur multicanaux des hauteurs d'impulsion - peuvent être converties en énergies des rayonnements émis; ceci constitue la base de l'identification des noyaux radioactifs. La composition de l'élément (stable) est dérivée sur la base de la connaissance des réactions nucléaires possibles lors de l'activation par des neutrons. Les valeurs des aires de pics nettes peuvent être utilisées pour calculer les quantités de radioactivité des radionucléides à l'aide de l'efficacité photoélectrique totale, pour ces pics, du détecteur. Les quantités (masse) des éléments peuvent alors être déterminées si le taux de fluence des neutrons et les sections efficaces sont connus. Cependant, dans la pratique, les masses des éléments sont déterminées à partir des aires nettes des photopics par comparaison avec la radioactivité induite par la production « par activation neutronique » des mêmes radionucléides à partir des quantités connues de l'élément d'intérêt.

La combinaison d'énergie de rayonnement émis, d'intensités relatives (si des photons d'énergies différentes sont émis) et la demi-vie unique pour chaque radionucléide, constituent la base de l'information qualitative en AAN. La quantité de rayonnement est directement proportionnelle au nombre de noyaux radioactifs produits (en décroissance) et donc au nombre de noyaux de l'isotope stable qui a subi la réaction nucléaire. Elle fournit les informations quantitatives dans AAN.

1.2.4 Mesurande

Le mesurande en AAN (la quantité à mesurer) [23] est la masse totale d'un élément donné dans une portion test d'un échantillon d'une matrice donnée (échantillon) dans n'importe quels états physico-chimiques. La quantité à mesurer est le nombre de noyaux désintégrés d'un radionucléide. La mesure donne le nombre de comptages dans une période de temps donnée, à partir de laquelle on calcule le taux de désintégration et le nombre de noyaux désintégrés; Ce dernier nombre est directement proportionnel au nombre de noyaux de l'isotope stable soumis à la réaction nucléaire et donc au nombre de noyaux de l'élément qui fournit enfin des informations sur la masse et la quantité de substance de cet élément.

1.2.5 Pratique de l'AAN

Dans la pratique, une procédure d'AAN consiste en l'irradiation simultanée d'un échantillon inconnu et d'une quantité connue d'un comparateur du même élément servant de standard, et des

mesures séquentielles des radioactivités induites. Une procédure d'AANI comporte les étapes suivantes :

- Préparation (par exemple séchage) et pesée des échantillons et du comparateur ; Pas besoin de digestion ;
- L'encapsulation des échantillons, par exemple, film en plastique, capsules en plastique PE ou ampoules de quartz ;
- Activation par irradiation neutronique simultanée des échantillons et des comparateurs.
- Pas de séparation chimique, le matériau reste intact - Mesures séquentielles des radioactivités induites dans chaque échantillon et comparateur par spectrométrie gamma après une ou plusieurs périodes de décroissance. Ceci est illustré dans la Figure 1.5 qui montre les changements avec le temps de la forme du spectre gamma. Ainsi, des informations complémentaires sur divers éléments peuvent être obtenues.
- Interprétation des spectres gamma liées aux éléments et de leurs masses.

Comme toute autre méthode d'analyse, des parties d'essai de matériaux de contrôle de qualité internes (y compris des blancs) suivent les mêmes étapes que les échantillons et les comparateurs, et sont simultanément irradiées et mesurées séparément. Une procédure « Analyse par Activation Neutronique par Radiochimie » AANR diffère des étapes ci-dessus uniquement par les séparations chimiques de l'échantillon après l'irradiation : ainsi les différentes étapes sont :

- Préparation (par exemple séchage, broyage) et pesage des parties d'essai de l'échantillon et du comparateur ; Pas besoin de dissolution ;
- Encapsulation des portions d'essai, par exemple, film plastique, capsules en plastique PE ou ampoules de quartz ;
- Activation neutronique par irradiation simultanée des échantillons et comparateurs.

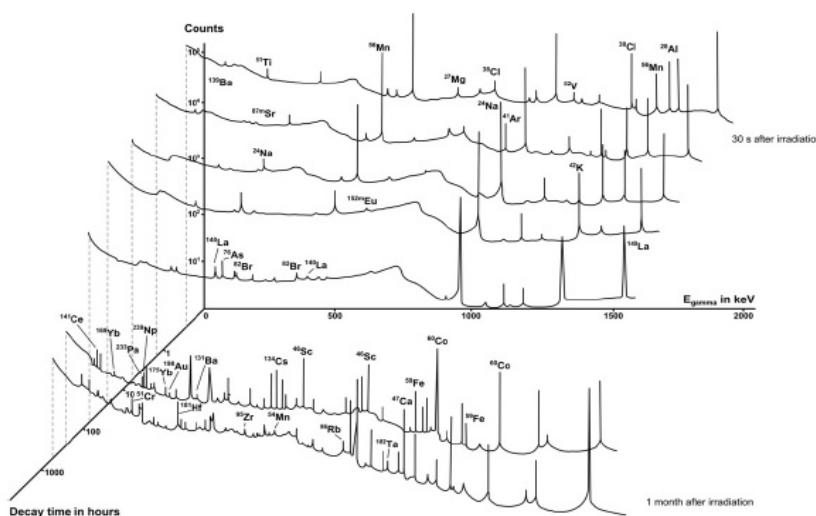


Figure 1.5 – Spectre des Gamma, mesurer dans différent intervalle après activation neutronique.

- Séparations chimiques des éléments d'intérêt (et des radionucléides apparentés) d'autres éléments dans l'échantillon; Le comparateur (par exemple dans le cas d'un standard à élément unique) peut être laissé intacte.
- Mesures séquentielles des radioactivités induites pour l'échantillon et le comparateur par spectrométrie gamma après une ou plusieurs périodes de décroissance.
- Interprétation des spectres gamma en termes d'éléments et de masses.

Un exemple de gammes typiques de conditions expérimentales est donné dans le Tableau 1.1

Tableau 1.1 – Exemple typique des conditions expérimentale d'une procédure de AANI.

Masse de l'échantillon : 5 – 500mg		
La fluence neutronique : $10^{16} - 10^{18} n.m^{-2}s^{-1}$		
Temps d'irradiation	Temps de refroidissement	Temps de mesure
5 – 30s	5 – 600s	15 – 300s
1 – 8h	3 – 5jour	1 – 4h
> 8h	1 – 16jour	1 – 16h

1.3 Equation de mesure

1.3.1 Equation fondamentale

Le taux de réaction de capture des neutrons R par nucléon est donné par :

$$R = \int_0^{\infty} n(v)v\sigma(v)dv \quad (1.1)$$

Avec :

v : vitesse des neutrons $m.s^{-1}$

$\sigma(v)$: section efficace d'interaction des neutrons de vitesse v , (m^2)

$n(v)dv$: la densité des neutrons de vitesse comprise entre v et $v + dv$ considérée constante en fonction du temps.

La section efficace et le taux de fluence neutronique dépendent de l'énergie des neutrons (Figure 1.6). Dans les réacteurs nucléaires de recherche - sources intenses de neutrons - on distingue trois types de neutrons (voir Figure 1.2) :

- Les neutrons de fission ou neutrons rapides libérés dans la fission de ^{235}U . Leur distribution d'énergie varie de 100 keV à 25 MeV avec une fraction maximale à 2MeV. Ces neutrons sont ralentis par interaction avec un modérateur, par ex. H_2O , afin d'augmenter la probabilité de provoquer une réaction en chaîne de fission dans l' ^{235}U .

- (ii) Les neutrons épithermiques, ce sont des neutrons dans le processus de ralentissement par collision avec les noyaux du modérateur. Les neutrons épithermiques ont des énergies entre approximativement $0,5\text{eV}$ et 100keV .
- (iii) Les neutrons thermiques, c'est-à-dire les neutrons en équilibre thermique avec les atomes du modérateur. La répartition de l'énergie des neutrons thermiques est Maxwellienne, avec la vitesse la plus probable V_0 de 2200m.s^{-1} à 20°C , correspondant à une énergie de $0,025\text{eV}$.

Typiquement, les taux de fluence des neutrons thermique dans un réacteur nucléaire de recherche sont de l'ordre de $10^{16} - 10^{18}\text{n.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$. Comme on peut le voir dans la Figure 1.2, les neutrons thermiques ont le taux de fluence le plus élevé. Les taux de fluence neutronique rapide et épithermique dépendent particulièrement de la configuration du réacteur, notamment sur le choix du modérateur. Le taux de fluence neutronique épithermique dans les installations d'irradiation dans des réacteurs modérés à l'eau légère est généralement un facteur 40-50 inférieur au taux de fluence des neutrons thermique.

Les réactions du type (n, γ) et (n, f) ont la plus haute section efficace (typiquement de l'ordre de $0,1$ à 100b) pour les neutrons thermiques alors que d'autres réactions (n, p) , (n, α) , (n, n') et $(n, 2n)$ se produisent principalement par des neutrons rapides à des sections efficaces inférieures de 2 ou 3 ordres de grandeur. Dans plusieurs cas, des réactions nucléaires résultent de la conversion d'un noyau stable en un autre noyau stable.

La section efficace des neutrons thermiques est souvent inversement proportionnelle à la vitesse du neutron; Dans la région épithermique, la section efficace neutronique peut être très élevée pour les neutrons d'une énergie discrète et la relation des sections efficace neutronique en fonction de l'énergie neutronique montre des pics de résonance (Figure 1.6).

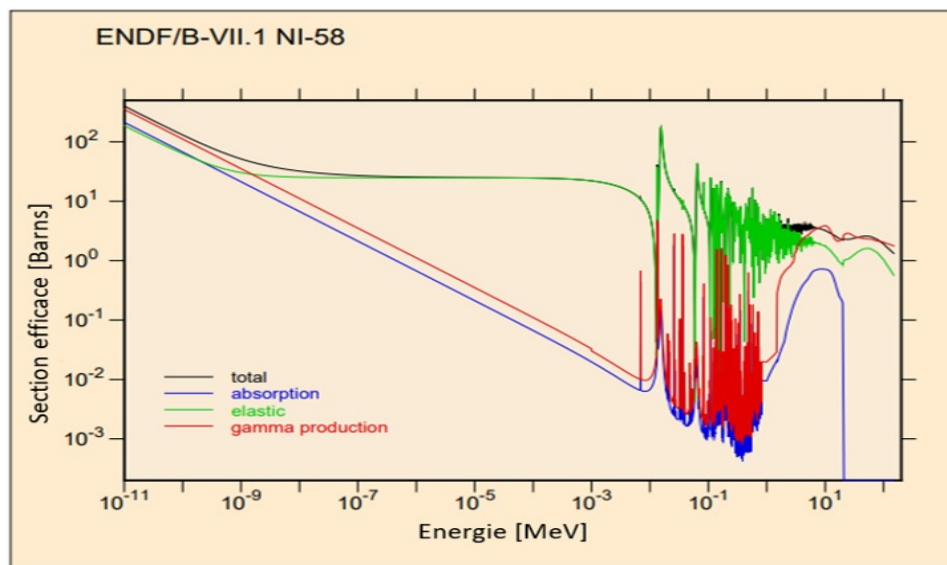


Figure 1.6 – Section efficace d'interaction en fonction de l'énergie des neutron.

La dépendance de la section efficace d'activation et du taux de fluence neutronique de l'énergie neutronique peut être prise en compte dans Eq (1.1) en divisant le spectre neutronique en un spectre thermique et un spectre épithermique ; La division est faite à $E_n = 0,55\text{eV}$ (énergie de coupure du Cadmium E_{Cd}). Cette approche est communément nommée : Convention de Høgdahl . L'intégrale de l'équation (1.1) peut alors être réécrit comme

$$R = \int_0^{V_{Cd}} n(v)v\sigma(v)dv + \int_{V_{Cd}}^{\infty} n(v)v\sigma(v)dv \quad (1.2)$$

avec

$$V_{Cd} = \sqrt{2E_{Cd}/m_n}$$

Le premier terme peut être écrit sous la forme :

$$R = \int_0^{V_{Cd}} n(v)v\sigma(v)dv = \sigma_0 V_0 \int_0^{V_{Cd}} n(v)dv = n\sigma_0 V_0 \quad (1.3)$$

avec

$$n = \int_0^{V_{Cd}} n(v)dv \quad (1.4)$$

n : est appelée densité de neutrons thermiques et avec $\phi_{th} = nV_0$

ϕ : le taux de fluence neutronique thermique «conventionnel», en $m^{-2}s^{-1}$, pour des énergies jusqu'à l'énergie de coupure du Cd de $0,55\text{eV}$.

σ_0 : la section d'activation des neutrons thermiques, en m^2 , à $0,025\text{eV}$.

V_0 : la vitesse neutronique la plus probable à 20°C : 2200m. s^{-1} .

Le deuxième terme est reformulé en fonction d'énergie neutronique plutôt que de la vitesse neutronique et l'intégrale de la résonance de dilution infinie I_0 , qui est effectivement aussi une section efficace (m^2), est introduite :

$$\int_{V_{Cd}}^{\infty} n(v)v\sigma(v)dv = \phi_{epi} \int_{E_{Cd}}^{E_{max}} \frac{\sigma(E)dE}{E} = \phi_{epi} I_0 \quad (1.5)$$

Avec

$$I_0 = \int_{E_{Cd}}^{E_{max}} \frac{\sigma(E)dE}{E} \quad (1.6)$$

ϕ_{epi} : le taux de fluence neutronique « classique » par unité d'intervalle d'énergie, à 1 eV .

A partir de cette définition de I_0 on peut voir qu'elle suppose que la dépendance énergétique du taux de fluence neutronique épithermique est proportionnelle à $1/E_n$. Cette exigence est satisfaite par une bonne approximation de la plupart des réactions (n, γ) .

Dans la pratique, dans les installations de réacteurs nucléaires, le taux de fluence neutronique épithermique ϕ_{epi} ne suit pas précisément la proportionnalité inverse de l'énergie neutronique ; une petite déviation par rapport à cette dernière peut être prise en compte par l'introduction d'un paramètre α (détaillé à la section 3.3.2) dans la distribution du taux de fluence épithermique :

$$I_0(\alpha) = (1eV)^\alpha \int_{E_{Cd}}^{E_{max}} \frac{\sigma(E)dE}{E^{1+\alpha}} \quad (1.7)$$

L'expression du taux de réaction peut ainsi être réécrite comme :

$$R = \phi_{th}\sigma_0 + \phi_{epi}I_0(\alpha) \quad (1.8)$$

En exprimant le rapport du taux de fluence des neutrons thermiques et celui des neutrons épithermiques tel $f = \frac{\phi_{th}}{\phi_{epi}}$ (détaillé à la section 3.3.3) et le rapport de l'intégrale de résonance et de la section efficace d'activation thermique comme $Q_0(\alpha) = \frac{I_0(\alpha)}{\sigma_0}$, une section efficace effective peut être définie :

$$\sigma_{eff} = \sigma_0 \left(1 + \frac{Q_0(\alpha)}{f}\right) \quad (1.9)$$

Cette écriture simplifie l'équation (1.8) pour le taux de réaction à

$$R = \phi_{th}\sigma_{eff} \quad (1.10)$$

Ce taux de réaction s'applique aux objets infiniment minces. Dans des objets de dimensions définies, la partie intérieure connaîtra un taux de fluence neutronique plus faible que la partie extérieure parce que les neutrons sont éliminés par absorption (effet d'autoprotection). Des corrections doivent être appliquées pour cette autoprotection des neutrons thermiques et épithermiques ; Cela est décrit plus en détail à la section 2.4.1 au chapitre 2.

1.3.2 Décroissance et mesure

Les transformations nucléaires sont établies par la mesure du nombre de désintégrations nucléaires. Le nombre de noyaux activés $N(t_i, t_r)$ présents au début de la mesure est donné par :

$$N(t_i, t_r) = \frac{RN_0}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_r} \quad (1.11)$$

Et le nombre de noyaux ΔN désintégrant au cours de la mesure est donné par

$$\Delta N(t_i, t_r, t_c) = \frac{RN_0}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_r} (1 - e^{-\lambda t_c}) \quad (1.12)$$

Dans lequel

t_r : temps de décroissance ou de refroidissement, c'est-à-dire le temps entre la fin de l'irradiation et le début de la mesure ;

t_c : durée de la mesure ;

t_i : temps d'irradiation ;

λ : Constante de décroissance ($= \frac{\ln 2}{t_{1/2}}$).

Une correction supplémentaire résultant du taux de comptage élevés peut être nécessaire en fonction du matériel du spectromètre gamma utilisé. Ceci est développé plus en détail à la (section 2.7.3). En remplaçant le nombre de noyaux cibles N_0 par $\frac{N_{Av} \cdot m}{M}$ et en utilisant l'équation (1.10) pour le taux de réaction, le dénombrement net résultant C dans un pic, dans le spectre, correspondant à une énergie de photon donnée est approximé par la «formule d'activation» :

$$C = \phi_{th} \sigma_{eff} \frac{N_{Av} m_x \theta}{M_a} (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_r} \frac{(1 - e^{-\lambda t_c})}{\lambda} \cdot I_\gamma \varepsilon \quad (1.13)$$

Avec

C : nombre de coup net dans le pic de rayons γ d'énergie E_γ

N_{Av} : le nombre d'Avogadro, mol^{-1}

θ : abondance isotopique de l'isotope cible

m_x : masse de l'élément irradié, g

M_a : masse atomique, $g \cdot mol^{-1}$

I_γ : facteur de branchement (ou d'embranchement) du rayon gamma ; C'est-à-dire la probabilité que le noyau désintégrant émet un photon de E_γ (désintégration $^{-1}$).

ε : efficacité photoélectrique absolue du détecteur correspondante à la raie gamma d'énergie E_γ ; C'est-à-dire la probabilité qu'un photon émis d'une énergie donnée E_γ soit détecté et contribue au photopique à la même énergie « E_γ » dans le spectre.

Bien que les photons émis aient des énergies allant des dizaines de keV à des MeV s et ont des pouvoirs de pénétration élevés, ils peuvent encore être absorbés ou dispersés dans l'échantillon lui-même en fonction de la taille de l'échantillon, de la composition et de l'énergie du photon. Cet

effet est appelé l'auto-atténuation des rayons gamma. De plus, deux photons ou plus peuvent être détectés simultanément à la résolution temporelle du détecteur ; Cet effet est appelé sommation. Les corrections à l'équation (1.13) pour l'auto-atténuation gamma et les effets de sommation sont décrites au (section 2.7.5).

Eq.(1.13) peut être simplement réécrite sous forme de l'équation de mesure de l'AAN, qui montre comment la masse d'un élément mesuré peut être dérivée de la surface nette C du pic :

$$m_x = C \frac{\lambda}{(1 - e^{-\lambda t_i})e^{-\lambda t_r}(1 - e^{-\lambda t_c})\phi_{th}\sigma_{eff}I_{\gamma}\cdot\varepsilon} \cdot \frac{M_a}{N_{Av}\theta} \quad (1.14)$$

1.4 Métrologie

1.4.1 Réaction nucléaire

Toutes les réactions nucléaires possibles peuvent être complètement énumérées par la connaissance des particules entrants en collision (neutrons thermiques, neutrons épithermiques et neutrons rapides), leur énergie et la charte des nucléides.

1.4.2 Désintégration nucléaire

Les schémas de désintégration des radionucléides sont bien établis et sans ambiguïté. Les énergies des rayons gamma, les intensités absolues d'émission et les demi-vies sont connues [22]. La combinaison du schéma de désintégration et de la demi-vie est une caractéristique unique de chaque radionucléide en décroissance.

Le processus de désintégration est une propriété du noyau atomique. La liaison électronique, les natures chimiques et la température n'influencent pas le processus de désintégration à l'exception de certains cas mineurs [24, 25, 26].

1.4.3 Mesurande

La surface d'un photopic est une mesure du transfert de courant dans le détecteur, résultant de l'interaction du rayonnement gamma de l'énergie correspondante dans le détecteur de rayonnement. Le courant est directement proportionnel au nombre de noyaux radioactifs en décroissance.

Le nombre de noyaux radioactifs en décroissance est directement proportionnel au nombre de noyaux stables de l'isotope qui a subi une réaction nucléaire.

Le nombre de noyaux stables de l'isotope est directement proportionnel au nombre total de noyaux de l'élément correspondant et, en se basant sur l'abondance donnée des isotopes stables, par conséquent à la masse totale de cet élément dans la proportion de test de l'échantillon.

1.4.4 Équation de mesure et traçabilité métrologique

La traçabilité métrologique des valeurs des masses obtenues par une procédure d'AAN peut être dérivée de l'équation de mesure Eq.(1.14). Les unités dimensionnelles des constantes physiques de cette équation sont :

- λ : Constante de décroissance $(=\frac{\ln 2}{t_{1/2}})s^{-1}$.
- σ_{eff} : Section effective moyenne, m^2 .
- I_γ : Fraction de décroissance produisant la raie γ d'énergie E_γ , sans dimension.
- N_{Av} : Le nombre d'Avogadro, mol^{-1} .
- θ : Abondance isotopique de l'isotope cible, sans dimension.
- M_a : Masse atomique, $g.mol^{-1}$.

Pour les paramètres expérimentaux sont :

- ϕ_{th} : Taux de fluence neutronique pendant l'irradiation, $m^{-2}.s^{-1}$.
- ε : Efficacité de détection pour la raie γ de E_γ , sans dimension.

Et des quantités mesurées :

- C : Nombre de coup net dans le pic de la raie γ de E_γ , sans dimension.
- t_i : Durée d'irradiation, s .
- t_r : Temps de décroissance avant le début du comptage, s .
- t_c : Durée de la mesure, s .
- m_x : Masse de l'élément irradié, g .

Par conséquent, les valeurs de toutes les constantes, paramètres et quantités mesurées dans l'équation de mesure ont le potentiel d'être métrologiquement traçables au Système International S.I.

1.4.5 Calibration (Étalonnage)

L'étalonnage est basé sur la détermination des facteurs de proportionnalité F qui relient les surfaces de pic net dans le spectre gamma aux quantités des éléments présents dans l'échantillon dans des conditions expérimentales données :

$$F = \frac{C}{m} \quad (1.15)$$

Ils existent des méthodes d'étalonnage absolues et relatives.

1.4.5.1 Calibration absolue

Les valeurs des paramètres physiques déterminant le facteur de proportionnalité θ , N_{Av} , M , σ_{eff} , I_γ , λ sont extraites de la littérature. Les paramètres σ_{eff} , I_γ et λ respectivement ne sont pas connus précisément pour de nombreuses réactions (n, γ) et nombreux radionucléides, et dans certains cas θ n'est pas connu avec précision. Étant donné que la détermination des différents paramètres était souvent atteinte par des méthodes indépendantes, leurs incertitudes individuelles s'ajouteront dans l'incertitude combinée de la mesure des compositions élémentaires, conduisant à une incertitude standard combinée relativement importante. De plus, la traçabilité métrologique des valeurs des constantes physiques n'est pas connue pour tous les radionucléides. Les autres paramètres C , m_x , Φ , ε , t_i , t_r , t_c sont déterminés, calculés ou mesurés pour des circonstances données et les incertitudes peuvent être établies.

1.4.5.2 Calibration relative

— *Méthode comparative directe*

L'échantillon inconnu est irradié avec un standard contenant une quantité connue du ou des éléments d'intérêt. Le standard est mesuré dans les mêmes conditions que l'échantillon (distance entre l'échantillon et le détecteur, la taille équivalente de l'échantillon et si possible la composition équivalente). A partir de la comparaison des aires nette de pic dans les deux spectres mesurés, on peut calculer la masse de l'élément d'intérêt :

$$m_{x(inc)} = m_{x(std)} \frac{\left(\frac{C}{t_c \cdot e^{-\lambda t_r} \cdot (1 - e^{-\lambda t_c})} \right)_{inc}}{\left(\frac{C}{t_c \cdot e^{-\lambda t_r} \cdot (1 - e^{-\lambda t_c})} \right)_{std}} \quad (1.16)$$

Dans laquelle $m_{x(inc)}$, $m_{x(std)}$ masse de l'élément d'intérêt, dans l'échantillon inconnu et dans le standard, respectivement en g .

Dans cette procédure, bon nombre des paramètres expérimentaux tels que le taux de fluence neutronique, la section efficace et l'efficacité photoélectrique sont annulées au calcul de la masse et les autres paramètres sont tous connus. Cette procédure d'étalonnage est utilisée si un degré de précision est requis.

L'étalonnage relatif sur la base des standards n'est pas immédiatement apprécié par les laboratoires qui visent à exploiter les pouvoirs de l'AANI par l'analyse multi élémentaire. Il faut des efforts considérables pour préparer les standards pour tous les 70 éléments mesurables via AAN avec des degrés de précision relativement proche en volume et en forme à ceux des échantillons.

L'AANI multiples-élémentaire sur la base de la méthode relative est réalisable selon les principes d'analyse à comparateur unique. En supposant la stabilité dans le temps de toutes les conditions expérimentales, les étalons (calibrateurs) pour tous les éléments sont co-irradiés chacun à son tour avec l'élément comparateur unique choisi. Une fois la sensibilité pour tous les éléments par rapport à l'élément comparateur est déterminée (exprimée sous le nom du facteur k , voir ci-dessous), seul l'élément comparateur doit être utilisé dans les mesures de routine au lieu des standards individuels pour chaque élément.

La méthode à comparateur unique pour l'AANI multi-élémentaire est basée sur le rapport des facteurs de proportionnalité de l'élément d'intérêt et de l'élément de comparaison après correction pour la saturation, la décroissance, le comptage et le poids des échantillons. Girardi et al. [27] ont défini le facteur k pour chaque élément i comme :

$$k_i = \frac{(M_a)_{i,eta} \gamma_{com} \varepsilon_{com} \theta_{com} \sigma_{eff,com}}{M_{a,com} \gamma_{i,eta} \varepsilon_{i,eta} \theta_{i,eta} (\sigma_{eff})_{i,eta}} \quad (1.17)$$

Avec les indices eta et com représentent inconnu et comparateur.

Les masses pour chaque élément i peuvent être calculées à partir de ces facteurs k_i ; pour un élément déterminé par un radionucléide produit directement, la masse $m_{x(inc)}$ résulte de la formule suivante :

$$m_{x(inc)} = m_{x(com)} \frac{\left(\frac{C}{t_c \cdot (1 - e^{-\lambda t_i}) \cdot e^{-\lambda t_r} \cdot (1 - e^{-\lambda t_c})} \right)_{inc}}{\left(\frac{C}{t_c \cdot (1 - e^{-\lambda t_i}) \cdot e^{-\lambda t_r} \cdot (1 - e^{-\lambda t_c})} \right)_{com}} \cdot k_i \quad (1.18)$$

avec

m_x : masse de l'élément en g .

Ces facteurs k déterminés expérimentalement sont souvent plus précis que lorsqu'ils sont calculés sur la base des données de la littérature comme dans la méthode d'étalonnage absolue. Cependant, les facteurs k ne sont valables que pour un détecteur spécifique, une géométrie de comptage spécifique et une installation d'irradiation, et restent valides tant que les paramètres de la fluence neutronique de l'installation d'irradiation restent stables.

La méthode du comparateur unique nécessite des étalonnages laborieux à l'avance et, en fin de compte, fournit relativement (par rapport à la méthode du comparateur direct) des incertitudes plus élevées des valeurs mesurées. De plus, elle nécessite une détermination expérimentale de l'efficacité photoélectrique du détecteur. La traçabilité métrologique des valeurs mesurées au S.I. peut être démontrée.

À l'Institut des sciences nucléaires de Gand, en Belgique, plusieurs tentatives pour définir des facteurs k qui devraient être indépendants des paramètres de la fluence de neutrons et des caractéristiques du spectromètre avaient lieu. Dans cette approche, le paramètre d'irradiation $(1 + \frac{Q_0(\alpha)}{f})$ (Eq.(1.9)) et l'efficacité de détection ε sont séparés dans l'expression (1.17) du facteur k , ce qui a entraîné la définition du facteur k_0 [28]

$$\begin{aligned} k_0 &= \frac{1}{k_i} \frac{1 + \frac{Q_{0,com}(\alpha)}{f}}{1 + \frac{Q_{0,eta}(\alpha)}{f}} \frac{\varepsilon_{com}}{\varepsilon_{eta}} \\ &= \frac{M_{com} \gamma_{eta} \theta_{eta} \sigma_{0,eta}}{M_{eta} \gamma_{com} \theta_{com} \sigma_{0,com}} \end{aligned} \quad (1.19)$$

Et la masse, encore une fois pour un élément déterminé, par un radionucléide produit directement, se trouve à partir de :

$$m_{x(inc)} = m_{x(com)} \frac{\left(\frac{C}{t_c \cdot (1 - e^{-\lambda t_i}) \cdot e^{-\lambda t_r} \cdot (1 - e^{-\lambda t_c})} \right)_{inc}}{\left(\frac{C}{t_c \cdot (1 - e^{-\lambda t_i}) \cdot e^{-\lambda t_r} \cdot (1 - e^{-\lambda t_c})} \right)_{com}} \cdot \frac{1 + \frac{Q_{0,com}(\alpha)}{f}}{1 + \frac{Q_{0,inc}(\alpha)}{f}} \frac{\varepsilon_{com}}{\varepsilon_{inc}} \frac{1}{k_0} \quad (1.20)$$

Tout ce qui précède est basé sur l'hypothèse que la section transversale dans la région d'énergie thermique varie avec l'inverse de l'énergie neutronique. Pour un petit groupe de réactions nucléaires ($^{151}\text{Eu}(n, \gamma)^{152,152m}\text{Eu}$, $^{168}\text{Yb}(n, \gamma)^{169}\text{Yb}$, $^{176}\text{Lu}(n, \gamma)^{177}\text{Lu}$), cette hypothèse entraîne des écarts importants, nécessitant l'utilisation du formalisme de **Westcott** au lieu de la Convention de **Høgdahl** pour décrire la relation entre la section transversale d'activation et l'énergie neutronique, introduisant ainsi la température de neutrons comme paramètre. L'impact des équations est bien documenté dans [29].

Le facteur k_0 est donc devenu un paramètre purement nucléaire pour le spectre de neutrons thermiques. Dans la convention- k_0 , l' Au est souvent proposé comme élément comparateur. Les valeurs k_0 et les paramètres associés tels que Q_0 sont tabulés [29] et basés sur les rapports des taux de réactions mesurés des éléments et l'élément comparateur, Au . Certaines de ces valeurs et paramètres sont toujours mises à jour régulièrement. Les paramètres du taux de fluence neutronique f (Rapport du taux de fluence thermique et épithermique) et α ne seront plus annulés dans les calculs de masse et doivent être mesurés dans chaque installation d'irradiation, de préférence même pour chaque irradiation et échantillons [30]. Au moins trois isotopes doivent être activés et mesurés pour déterminer ces paramètres. Un moniteur du taux de fluence composé contenant des quantités suffisantes d' Au et Zr convient à cet objectif; en une seule mesure, les activités induites de ^{198}Au , ^{95}Zr et ^{151}Eu peuvent être évaluées; récemment un ensemble alternatif de Mo , Cr et Au a été suggéré pour la caractérisation des installations bien thermalisées [31]. Dans cette situation, la méthode k_0 n'est pas à un seul comparateur mais par ex. une mé-

thode à triple comparateur (moniteur). L'efficacité photoélectrique du détecteur doit également être (expérimentalement) déterminée dans cette approche (chapitre 3).

La méthode k_0 nécessite des caractérisations fastidieuses des conditions d'irradiation et de mesures, comme la méthode à comparateur unique, sur tout que les incertitudes de la mesure des valeurs des masses sont relativement élevées. En outre, la traçabilité métrologique des valeurs k_0 actuellement existantes et les paramètres associés au S.I. ne sont pas encore transparents et probablement impossibles.

En résumant, la méthode relative par un comparateur direct, atteint les incertitudes les plus faibles des valeurs mesurées, et en plus, la traçabilité métrologique de ces valeurs au S.I. peut facilement être démontrée. En tant que tel, cette approche est souvent préférée d'un point de vue métrologique. L'équation de mesure peut être plus au moins simplifiée, en remplaçant

$$A_0 = \frac{\lambda C e^{\lambda t_r}}{(1 - e^{-\lambda t_c})(1 - e^{-\lambda t_i})} \quad (1.21)$$

dans

$$m_{inc} = m_{std} \frac{A_{0(inc)}}{A_{0(std)}} R_\theta R_\Phi R_\sigma R_\varepsilon \quad (1.22)$$

dans laquelle

R_θ : Rapport des abondances isotopiques pour l'échantillon inconnu et le standard.

R_Φ : Rapport des taux de fluence neutronique (y compris le gradient de fluence, l'autoprotection neutronique et la diffusion) pour l'échantillon inconnu et le standard .

R_σ : Rapport des sections transversales efficaces si la forme du spectre neutronique diffère de l'échantillon inconnu au standard .

R_ε : Rapport des efficacités de comptage (différences dues à la géométrie et à l'autoprotection γ) pour l'échantillon inconnu et le standard.

1.5 Caractéristiques analytiques

1.5.1 Analyse totale des échantillons

L'analyse par activation neutronique fournit des informations sur la masse totale d'éléments dans l'échantillon traité. Étant donné que l'AANI, initialement désignée comme « technique non destructive », ne nécessite pas la dissolution de l'échantillon, il n'y a en principe aucune perte par digestion incomplète, précipitation ou effets d'adsorption des parois ni la technique ne souffre des contaminations qui pourraient être introduites par les solvants utilisés. Il est bien connu que

des mesures spéciales doivent être prises pour prévenir les pertes par volatilisation de certains éléments pendant l'irradiation (par exemple, *Hg* et *Br*) ; Dans de tels cas, les ampoules à quartz souvent scellées sont préférées au lieu du polyéthylène. Le degré de volatilisation dépend si l'élément est lié à une matrice inorganique ou organique et aux conditions d'irradiation (fluences des neutrons et des gammas et la température).

Dans une procédure d'AANI, on détermine la masse de l'élément dans l'échantillon entier (en vrac), ce qui distingue la technique de l'analyse par fluorescence des rayons *X*, qui fournit uniquement des informations sur la composition de surface d'un échantillon.

Dans une procédure d'AANR, la dissolution a lieu après l'irradiation. La détermination du rendement chimique peut être effectuée avec un haut degré de précision en ajoutant une quantité (des) même (s) élément (s) non radioactif (s) à séparer, et / ou par quantification de la récupération d'un radiotraceur (même élément (s), produit séparément) ajouté après irradiation.

1.5.2 Effet de l'état chimique et de la forme physique de l'élément à déterminer

Tous les phénomènes (réaction nucléaire, désintégration et émission de rayonnement) sont liés aux propriétés du noyau atomique. Les électrons de valence sont à quelques exceptions près qui ne sont pas impliqués dans ces processus¹. Par conséquent, la détermination d'un élément par mesure de sa radioactivité induite est en principe indépendante de son état chimique ou de sa forme physique ; Il n'y a pas de différence si un élément est lié à un composé inorganique ou à un composé organique, ou si il est présent en tant que métal pur, à condition que les degrés d'auto-atténuation des rayons gamma dans l'échantillon et le standard soient équivalents et quantifiables (cf. Paramètre R_e dans l'équation (1.22)).

Les effets chimiques de matrice, connus comme sources importantes d'erreur dans certains autres types d'analyse chimique instrumentale, sont négligeables en AAN ou peuvent être quantifiés et corrigés.

Cette caractéristique implique que les standards (moniteur) en AAN ne doivent pas être identiques en composition que l'échantillon. Il permet l'utilisation de comparateurs à un seul élément de plus grande pureté et de la stœchiométrie connue (par exemple des feuilles métalliques) avec une contribution relativement faible à l'incertitude standard combinée de mesure.

1. Il y a quelques exceptions : la liaison chimique, dans la capture d'électrons et la décroissance de la conversion interne, peut avoir un effet sur la demi-vie du radionucléide puisque le taux de capture d'électrons est inversement proportionnel à la densité d'électrons au noyau, qui est presque entièrement déterminé par des électrons à l'état s. Si l'électron des couche périphérique arraché ou ajouté est dans l'état s, il y aura un effet sur le taux de capture. Cependant, les effets mesurés sur la constante de décroissance sont de l'ordre de 10 à 2% et ne sont mesurables que pour des espèces chimiques sélectionnées, métalliques ou cristallines. Deuxièmement, la liaison chimique peut également avoir un effet mesurable sur la désintégration nucléaire si cette désintégration - dans des conditions très spécifiques - comprend une cascade de rayons gamma le long d'un état intermédiaire de demi-vie nanoseconde. Différences de 1 à 2% dans les rapports d'intensité entre le picard de la cascade et les pics de les rayons gamma individuels ont été observés pour différentes espèces chimiques de ^{111}In . Ce phénomène fait également apparaître l'intensité des photopics à pleine énergie de certains radionucléides inférieure aux véritables intensités.

Les différences dans l'auto-absorption des rayons gamma, l'autoprotection des neutrons, l'irradiation et la géométrie de comptage entre les moniteurs et échantillons sont décrites par des paramètres physiques et peuvent être calculées et / ou déterminées expérimentalement.

1.5.3 Caractérisation par auto-validation

Les principes nucléaires physiques d'AAN offrent également de nombreuses opportunités de validation des résultats de mesure, contribuant ainsi favorablement au degré de précision. La plupart d'entre elles résulte dans le fait que de nombreux éléments ont des isotopes multiples stables à partir desquels plus d'un radionucléide peut être produit lors d'une irradiation par neutron (par exemple ^{122}Sb et ^{124}Sb). De plus, ces radionucléides multiples à partir d'un élément ont des demi-vies différentes (par exemple ^{122}Sb : 64 h et ^{124}Sb : 60 jour), et émettent plusieurs rayons gamma avec des énergies différentes avec des probabilités d'émission connues avec exactitude (rapports d'intensité), par exemple ^{124}Sb : 564 keV (63% de probabilité d'émission) et 693 keV (3,3%) et ^{124}Sb : 602,7 keV (98%), 723 keV (11%) et 1691 keV (52%).

La combinaison de la demi-vie et de l'énergie des rayons gamma confirme l'identité du radionucléide à 100% et la confirmation de l'identité de l'élément (sur la base des réactions nucléaires connues) dans la plupart des cas aussi 100%. En outre, les résultats quantitatifs dérivés des différentes aires de pique d'un radionucléide, ainsi que de différents radionucléides du même élément devraient être en accord. De même, les résultats du même radionucléide, enregistré après différents intervalles de désintégration, devraient être en accord.

Des interférences pendant l'irradiation peuvent se produire. À titre d'exemple, le radionucléide ^{28}Al peut résulter des réactions nucléaires $^{27}\text{Al}(n, \gamma)^{28}\text{Al}$, $^{28}\text{Si}(n, p)^{28}\text{Al}$ ou $^{31}\text{P}(n, \alpha)^{28}\text{Al}$. De telles interférences peuvent être identifiées, quantifiées et corrigées. De même, les interférences pendant la mesure peuvent se produire (par exemple, le rayon gamma de 320keV peut résulter soit de la désintégration de ^{51}Ti soit de ^{51}Cr), mais l'identification et la correction sont possibles en prenant avantage des différences dans les demi-vies des radionucléides (par exemple, ^{51}Ti : 5,8 m, ^{51}Cr : 27,7 jours) et / ou les informations obtenues à partir d'autres radionucléides formés à partir de l'élément d'intérêt et des rapports d'intensités des différentes raies gamma (par exemple, dans la désintégration de ^{51}Ti , des rayons gamma de 605 keV et 928 keV sont émis, ce qui ne se produit pas dans la désintégration de ^{51}Cr). Une liste des interférences rencontrées dans la pratique de l'AAN est présentée dans l'appendice.

L'impact de certaines de ces interférences dépend de la masse, mais de telles interférences peuvent facilement être identifiées et quantifiées par des mesures après différents intervalles de décroissance. Des mesures multiples après différents intervalles de décroissance servent également à évaluer les effets d'empilement (pile-up) et les corrections d'interférence, et à tester tous les comptages liés aux non-linéarités. Le degré d'auto-atténuation des rayons gamma peut être dérivé des rapports d'intensité des pics dans le spectre ou calculé après la détermination expérimentale de la transmission mesurée à travers l'échantillon d'un faisceau externe de rayonnement

gamma. Cela peut être évalué également par une modélisation Monte Carlo.

Les aires de pics peuvent être déterminés de plusieurs manières - par exemple, avec des routines d'ajustement ou via un comptage canal-par-canal et soustraction du bruit de fond- fournissant ainsi une validation supplémentaire de cette étape.

Enfin, comme cela sera démontré en détail dans le chapitre 2 (Evaluation des incertitudes pour les mesures d'AAN), les évaluations de type A contribuant à l'incertitude de mesure dépendent de la masse et peuvent être mesurées. La plupart des évaluations de type B contribuant à l'incertitude de la mesure ne sont pas dépendants de la masse, et affectent tous les éléments dans la même irradiation ou mesure dans le même lot.

1.5.4 Ajustement des paramètres expérimentaux pour l'optimisation de l'expérience

Une procédure d'AAN a de nombreux paramètres expérimentaux ajustables, ce qui est reflété par la mesure (Eq. 1.14). Ceux-ci peuvent être utilisés pour optimiser la conception de la procédure d'AAN par exemple minimisation de l'incertitude de mesure, minimisation d'effets d'interférents pendant l'irradiation et / ou la mesure, minimisation de la limite de détection ou de réduction de temps total d'analyse (délai d'exécution). La masse de l'échantillon et du moniteur de flux peuvent être optimisées pour, par exemple, la réduction des effets géométriques pendant l'irradiation et la mesure, pour la réduction de l'effet de l'auto-atténuation ou pour augmenter le rapport signal / bruit. Le temps d'irradiation et le taux de fluence des neutrons ont un effet sur la quantité de radioactivité du radionucléide d'intérêt mais le temps d'irradiation peut également être modifié pour changer le rapport de la radioactivité induite de ce radionucléide et ceux qui interfèrent. Les positions d'irradiation dotées de filtres au cadmium ou au bore éliminent les neutrons thermiques et donc change le spectre d'énergie des neutrons. Ceci est une approche bien établi pour l'activation sélective d'éléments avec les neutrons épithermiques et rapide du réacteur.

Il a déjà été illustré par la Figure 1.5 que l'information peut être obtenue à partir de mesures après différentes périodes de décroissance. C'est aussi une approche pour la réduction des interférences dans le spectre telles que des pics de rayons gamma rapprochés, ou pour l'amélioration de la limite de détection de petites quantités de radioactivité des radionucléides à longue demi-vie en présence de grandes quantités de radionucléides avec des demi-vies plus courtes. De plus, plusieurs mesures sont souvent préférées pour tirer pleinement parti des opportunités d'autovalidation des différents radionucléides produit à partir de l'activation d'un élément donné. Les éléments tels que *H, C, N, O* et *Si* n'affectent pas la détermination des autres éléments L'activation neutronique d'un certain nombre d'éléments à *Z* bas (*H, He, Be, Li, B, C, N* et *O*) qui appartiennent souvent aux plus abondants dans de nombreux matériaux) et de quelques éléments à *Z* élevés (*Bi, Tl* et *Pb*) est caractérisé par une ou une combinaison de (i) sections efficaces d'activation très faibles, (ii) produits d'activation avec des demi-vies très courtes (de l'ordre de

quelques secondes) et (iii) l'émission de rayonnement qui n'est pas enregistré dans le spectre des rayons gamma et n'interfère donc pas avec la mesure du rayonnement gamma émis par les autres produits d'activation. En tant que tels, ces éléments sont pratiquement absents dans la spectrométrie gamma dans l'AAN, rendant l'échantillon "transparent" pour les signaux provenant des radionucléides.

1.5.5 AAN convient pour la mesure de la masse totale de l'élément de l'ordre du ppm au ppb

La limite de détection dans l'AAN est basée sur le rapport signal / bruit, la sélectivité de déterminer, avec un certain degré de confiance, un pic dans le spectre des rayons gamma. Le photopic dans le spectre de l'émission gamma par le radionucléide d'intérêt est le « signal ». Le "bruit" résulte de la détection de photons du fond ambiant, du continuum de Compton dû à l'interaction de rayons gamma de plus haute énergie, ainsi que des interférences de spectre de rayons gamma provenant, par ex. le blanc du traitement pré-irradiation, des matériaux d'emballage et des pics se chevauchant (en partie). La limite de détection dépend de l'irradiation, de la décroissance et des conditions de comptage. Il est assez courant d'estimer la limite de détection en utilisant la formule de Currie [32] :

$$D_L = 2,71 + 4,65\sqrt{B} \quad (1.23)$$

où D_L est la limite de détection et B est le bruit de fond sous un pic de rayons gamma. Cette approche n'est valable que lorsque le bruit de fond (erreur statistique de comptage) est l'interfèrent majeure. Les limites de détection dépendent dans la pratique de l'AANI sur :

- La quantité de matériau à irradier et à être prise en compte : souvent mis en disponibilité, aspects d'encapsulation de l'échantillon et des limites de sécurité à la fois liées à l'irradiation et aux mesures, et peut-être à cause de l'autoprotection contre les neutrons et les effets d'auto absorption de rayons gamma. Pour ces raisons, dans la pratique de l'AANI, la masse de l'échantillon est souvent limitée à environ 250mg.

- Les taux de fluence des neutrons : fixés par les installations d'irradiation disponibles.

- La durée du temps d'irradiation : fixée par des aspects pratiques, tels que les limites de la dose totale d'irradiation des récipients en plastique à cause des dommages causés par les rayonnements, ou par les cycles de fonctionnement du réacteur .

- La radioactivité totale induite qui peut être mesurée est déterminée par l'état de l'art de l'équipement de comptage et de traitement du signal, avec des considérations de protection et de dose de rayonnement supplémentaires .

- La taille du détecteur, la géométrie de mesure et le bruit de fond du blindage.

Tous cela illustrent que la limite de détection pour un élément donné par AANI peut être différente pour chaque type de matériau et aux conditions d'analyse. Dans le tableau 1.2 sont indiquées, à titre indicatif, les limites de détection typiques dérivées de l'analyse d'une plante et d'un sol [33].

Conditions expérimentales : plante : $t_i = 4h$ à $5 \times 10^{16} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$, $t_r = 5 \text{ jours}$, $t_c = 0,5h$ au détecteur coaxial, suivi par un refroidissement de $t_d = 3 \text{ semaines}$ et $t_c = 2h$ détecteur de type puits ; taille de l'échantillon = 200mg ; sol : $t_i = 1,5h$ à $5 \times 10^{16} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$, $t_r = 5 \text{ jours}$, $t_c = 1h$ au détecteur coaxial, suivi par un refroidissement de $t_r = 3 \text{ semaines}$ et $t_c = 1 \text{ h}$ au détecteur de type puits ; taille de l'échantillon = 200mg.

Tableau 1.2 – Les limites de détection en (ppm) dans des spécimens de plante et sol observées par l'AAN.

Élément	Plante	Sol	Élément	Plante	Sol
Na	2	10	K	200	1500
Ca	700	4000	Sc	0,001	0,02
Cr	1	1	Fe	8	100
Co	0,02	0,3	Ni	2	30
Zn	0,4	6	Ga	2	10
As	0,2	0,8	Se	0,1	1
Br	0,3	0,8	Rb	0,4	6
Sr	5	60	Zr	5	80
Cs	0,02	0,3	Ba	10	40
La	0,1	0,3	Ce	0,2	1
Nd	0,7	8	Sm	0,01	0,03
Eu	0,006	0,05	Tb	0,008	0,1
Yb	0,03	0,2	Lu	0,004	0,02
Hf	0,01	0,1	Ta	0,01	0,2
W	0,3	1	Re	0,08	0,2
Os	0,1	0,6	Ir	0,0006	0,004
Au	0,003	0,01	Hg	0,05	0,4
Th	0,01	0,1	U	0,2	2

1.6 Applicabilité de l'AAN

L'analyse par activation neutronique, comme toute autre technique d'analyse des éléments traces, n'est pas une panacée pour la détermination des éléments traces dans tout type de matériau. Le choix de l'AAN comme méthode de choix peut être basé sur le fait que l'élément d'intérêt et le matériau de l'échantillon (matrice) doivent avoir des propriétés chimiques spécifiques, des formes physiques et caractéristiques physiques pour l'analyse par AAN.

1.6.1 Conditions préférées pour la sélection de l'AAN

Les propriétés nucléaires de l'élément d'intérêt sont importantes : le taux d'activation et les caractéristiques de désintégration des radionucléides produit comme la demi-vie et les énergies de l'émission de rayons gamma. Comme mentionné ci-dessus, les éléments à Z très bas (comme H , He , B , Be , C , N et O) ne sont donc pas adaptés à la détection par AAN, mais il est également impossible de déterminer quelques autres éléments (par ex., Tl et Bi) ou du moins pas à un niveau bas. L'activation du plomb (Pb), par exemple, ne donne que des quantités de milligrammes à des activités mesurables, ce qui est pour de nombreuses applications une sensibilité inadéquate.

La matrice de l'échantillon ne devrait pas avoir à la fois une forte densité (entraînant une forte auto-atténuation des rayons gamma), une masse atomique élevée (affectant également l'auto-atténuation des rayons gamma) et des propriétés d'absorption des neutrons extrêmement élevées. En ce qui concerne ce dernier, les fractions de masse élevées de B , Cd , Gd et Dy provoqueront une auto-absorption neutronique des neutrons thermiques à l'intérieur de l'échantillon, entraînant une distribution d'énergie neutronique différente de la distribution dans le standard. De plus, il peut provoquer une dépression du taux de fluence neutronique à l'extérieur de l'échantillon, affectant la fluence des neutrons dans les moniteurs de flux qui entourent l'échantillon. De grandes quantités d'éléments ayant de fortes propriétés d'absorption des neutrons sont également indésirables dans l'AAN si leur capture de neutrons entraîne l'émission de particules chargées telles que le rayonnement α (prompt ou retardé). Cela se produit principalement avec les éléments B , Li et U et peut provoquer un échauffement thermique excessif pendant l'irradiation.

1.6.2 Échantillons particulièrement adaptés à l'AAN

Les caractéristiques analytiques de l'Analyse par Activation Neutronique sont pleinement exploitées pour l'analyse de quatre grandes catégories de matériaux :

1. Matériaux solides difficiles à ingérer complètement dans une solution.
 - Exemples :

- ⇒ les sols, les roches, les minéraux, les minerais, les matériaux cosmiques, les particules d'air, les zéolithes et les nouveaux matériaux composites.
 - ⇒ les matériaux avec *C*, *H*, *N* et *O* comme éléments principaux : plantes et matériel biologique similaire, plastiques.
2. Matériaux solides qui sont faciles à contaminer pendant la préparation des échantillons, si par ex. la digestion serait nécessaire pour une technique analytique différente.
- Exemples :
 - ⇒ substances ultra-pures : matériau semi-conducteur tels le *Si* et fibres de carbones.
 - ⇒ ultra petites quantités : particules d'air et poussières cosmiques.
 - ⇒ tissus et liquides biologiques (sang, sérum et urine).
3. Matériaux solides qui sont uniques et doivent garder leur intégrité.
- Exemples :
 - ⇒ matériaux issus d'études médico-légales .
 - ⇒ objets archéologiques, culturels et artistique .
4. Matériaux solides dont la composition en masse doit être déterminée et pour lesquels des techniques de surface telles que XRF et des techniques de spectroscopie à l'état solide (par exemple LIBS et l'ICP à ablation laser) sont par conséquent inadéquates.
- Des exemples de tels échantillons, dans un groupe sélectionné de disciplines, sont :
 - ⇒ Archéologie - ambre, os, céramique, pièces de monnaie, lunettes, bijoux, objets et sculptures en métal, peintures, pigments, poteries, les sols et les argiles et les artefacts en pierre.
 - ⇒ Biomédecine - tissus animaux et humains, sang et composants de sang, os, drogues et médicaments, calculs biliaires, cheveux, corrosion implantaire, calculs rénaux et reins, plantes médicinales et les herbes, le lait, les ongles, le placenta, le venin de serpent, les dents, les soins dentaires mailles et obturations dentaires, urine et pierres urinaires.
 - ⇒ Sciences de l'environnement et domaines connexes - aérosols atmosphériques particules (fractionnée en taille), les combustibles fossiles et leurs cendres, animaux, oiseaux, insectes, poissons, biote aquatique et marin, algues, lichens, mousses, plantes, arbres, ménages et déchets municipaux, sols, sédiments et boues d'épuration.
 - ⇒ Forensiques - débris de bombe, plomb de balle, détection d'explosifs, verre des fragments, de la peinture, des cheveux, des écouvillons de résidus de balle et des plombs de fusil de chasse.
 - ⇒ Géologie et géochimie - amiante, échantillons de forage, charbon en vrac et produits de charbon, composants de charbon et de schiste bitumineux, huiles brutes, échantillons cosmo-chimiques, poussière cosmique, corail, diamants, exploration et biogéochimie, météorites, nodules océaniques, roches, sédiments, sols, minerais et minéraux séparés.

- ⇒ Produits industriels - alliages, catalyseurs, céramiques et matériaux réfractaires, revêtements, matériaux électroniques, engrais, matériaux fissiles de détection et d'autres matériaux de sauvegarde, graphite, matériaux de haute pureté et de haute technologie, emballage des matériaux des circuits intégrés, produits pétroliers, produits pharmaceutiques, plastiques, semi-conducteurs, traitement du silicium et du silicium pur.
- ⇒ Nutrition - régimes composés, nourritures, miels, graines, épices, légumes, laits et les préparations lactées et levures.

1.6.3 Aspects supplémentaires de l'utilisation de l'AAN

Certains aspects opérationnels supplémentaires de l'AAN méritent d'être mentionnés ici pour l'exhaustivité. D'abord, l'accès à un réacteur de recherche nucléaire est essentiel, évidemment. Bien que la plupart des laboratoires d'AAN est trouvé sur le site du réacteur, il y a quelques autres cas dans lesquels le laboratoire d'AAN n'est pas sur place et des échantillons (avant et après irradiation) sont transportés sur des distances allant jusqu'à plus de 100km. Ceci implique des limitations en ce qui concerne mesure des radionucléides avec des demi-vies (très) courtes. Les installations d'irradiation du réacteur définissent les taux de fluence neutronique disponible, les distributions d'énergie neutronique et les contraintes techniques en ce qui concerne l'encapsulation de l'échantillon, les durées d'irradiation maximale et minimale.

L'instrumentation nécessaire pour la mesure de la radioactivité induite, à savoir, le spectromètre à rayons gamma avec un détecteur à semi-conducteur est construit avec des unités modulaires qui sont toutes disponibles dans le commerce. Les changeurs d'échantillons (passeurs automatiques) pour l'AAN, polyvalent en ce qui concerne l'utilisation avec des flacons d'échantillons de dimensions spécifiques et différents types de détecteurs (par exemple des détecteurs de type puits) sont limités dans le commerce. Dans la plupart des cas, un laboratoire doit développer et construire sa propre automatisation. Le logiciel d'analyse et d'interprétation du spectre est aujourd'hui disponible auprès des principaux fournisseurs de spectromètres gamma ainsi que de l'Agence Internationale de l'Energie Atomique. Cependant, la mise en œuvre d'AAN nécessite encore beaucoup d'efforts, notamment pour maîtriser les sources d'erreurs avec les interférences dans l'analyse et l'interprétation du spectre. La fusion d'une méthode physique et d'une analyse chimique nécessite une expertise simultanée des deux disciplines pour une opération efficace.

Le laboratoire d'AAN doit répondre aux exigences légales en matière de sécurité radiologique. Cela peut impliquer des coûts d'investissement élevés si un laboratoire non radiologique doit être adapté à ces exigences. Un agent de santé radiologique (radioprotection) peut être requis (ce qui pourrait être une fonction d'un employé du laboratoire d'AAN) et des dispositions doivent exister pour le stockage et l'élimination des déchets radioactifs. Les employés doivent être formés à la sûreté radiologique et aux aspects pratiques de la manipulation de la radioactivité. Si le réacteur de recherche ne se trouve pas à proximité du laboratoire d'AAN, la sécurité

du transport des échantillons radioactifs requiert également une attention particulière.

1.7 Conclusion

L'AAN n'est pas disponible en tant que bouton-poussoir autonome d'un appareil avec un logiciel entièrement intégré à opérer dans n'importe quel laboratoire d'analyse. La mise en œuvre de l'AAN nécessite une connaissance de base de la méthode, elle suppose que les paramètres expérimentaux de l'échantillon et des masses standards à savoir : l'activation, la décroissance et les temps de comptage, soient optimisés pour chaque mesure. Elle suppose également que les équipements d'irradiation neutronique et les systèmes de spectrométrie gamma soient caractérisés et optimisés de manière appropriée, et que le choix de l'installation d'irradiation et du système de détection soit convenable pour la mesure effectuée. Une conception expérimentale minutieusement réfléchie est souvent le meilleur moyen de réduire les incertitudes.

Évaluation des incertitudes pour les mesures d'AAN en utilisant la méthode de standardisation

2.1 Introduction

Ce chapitre décrit les différents composants d'incertitude associés aux mesures effectuées par l'AAN, en utilisant la méthode comparative, ainsi que des méthodes pour évaluer chacun de ces composants.

La méthode comparative consiste à irradier et à compter une quantité connue de chaque élément d'intérêt en utilisant le ou les mêmes conditions utilisées pour les échantillons inconnus et le standard. Le processus AAN peut être décrit par l'équation de mesure suivante (équation (2.1))

$$m_{x(inc)} = m_{x(std)} \frac{A_{0(inc)}}{A_{0(std)}} R_{\Theta} R_{\phi} R_{\sigma} R_{\epsilon} - blanc \quad (2.1)$$

Où :

- $m_{x(inc)}$: Masse de l'élément x dans l'échantillon inconnu
- $m_{x(std)}$: Masse de l'élément x dans le comparateur (standard)
- $A_{0(inc)}$: Activité induite corrigée dans l'échantillon inconnu
- $A_{0(std)}$: Activité induite corrigée dans le comparateur
- R_{Θ} : Rapport des abondances isotopiques pour l'échantillon inconnu et le comparateur
- R_{ϕ} : Rapport des fluences neutroniques subies respectivement par l'échantillon et le comparateur (incluant la perte de fluence, autoprotection et diffusion)
- R_{σ} : Rapport des sections efficaces effectives (si le spectre neutronique change)
- R_{ϵ} : Rapport des efficacités de comptage (différences dues à la géométrie et autoprotection des rayons γ)
- $blanc$: Masse de l'élément dans le blanc

$$A_0 = \frac{\lambda C e^{\lambda t_r}}{(1 - e^{\lambda t_L})(1 - e^{\lambda t_i})} f_p f_{lrc} \quad (2.2)$$

- A_0 : Taux de décroissance corrigé
- C : Comptage mesuré sous le photopic gamma
- λ : Constante de décroissance radioactive
- t_r : Temps de décroissance (refroidissement)

- t_L : Temps actif de comptage (live time)
- t_i : Temps d'irradiation
- f_{ltc} : Correction de l'inadéquation de l'extension du temps actif (la méthode de correction dépend du matériel utilisé)

Il faut noter que les valeurs de " R " sont normalement très proches de l'unité, et que toutes les unités sont soit à base SI, soit des rapports sans unités. Ainsi une valeur d'incertitude peut être développée en utilisant uniquement des unités SI et des rapports sans unités pour une mesure d'AAN en évaluant les incertitudes pour chaque terme dans les équations 2.1 et 2.2, et pour chaque correction nécessaire additionnelle (par exemple, les interférences, les facteurs de conversion de masse sèche... etc.). Les incertitudes concernant certains termes de l'équation 2.1 ont de multiples composants. Si on subdivise l'incertitude pour chaque terme dans les équations ci-dessus en composants individuels, et on ajoute des termes pour les corrections additionnelles possibles, et si on subdivise le processus de mesure en quatre étapes incluant : La pré-irradiation (préparation d'échantillons), l'irradiation, la post-irradiation (spectrométrie gamma) et radiochimie, on obtiendra la liste complète des composants individuels de l'incertitude pour AAN. Seules les incertitudes des trois premières étapes devraient être envisagées pour les mesures instrumentales par analyse par activation neutronique (AANI), alors que toutes les quatre étapes doivent être prises en considération pour les mesures radiochimiques d'analyse par activation neutronique (AANR).

2.2 Considérations générales relatives à l'installation d'irradiation et la spectrométrie gamma

Une brève discussion sur la caractérisation de l'installation et de l'équipement, nécessaire avant l'évaluation complète des valeurs d'incertitude, est fourni ici comme condition préalable au processus d'évaluation de l'incertitude qui sera abordé plus loin dans ce chapitre. Cette caractérisation traite les paramètres généraux de l'installation qui sont sensiblement inchangeables lors du passage d'une mesure à une autre. La caractérisation nécessaire pour évaluer les composants d'incertitude spécifique à une mesure individuelle est donnée point par point dans les sections suivantes.

2.2.1 Caractérisation Neutronique : gradients et spectre d'énergie

La caractérisation du flux neutronique (taux de fluence neutronique) est nécessaire pour corriger toutes les différences possibles d'exposition aux neutrons entre les échantillons et les masses standards, pour corriger toutes les interférences potentielles causées par les réactions avec les neutrons à haute énergie (rapides) et pour évaluer les incertitudes de ces corrections.

Il est important de caractériser à la fois le taux de fluence neutronique et le spectre d'énergie des neutrons en fonction de l'emplacement (la position) et du temps pour chaque installation d'irradiation. Bien que des corrections spécifiques peuvent différer d'une mesure à une autre, une caractérisation initiale de chaque installation permet à l'analyste de choisir la meilleure installation à utiliser pour une mesure particulière, et d'estimer l'ampleur des interférences d'irradiation et des autres effets dus aux variations importantes dans le taux de fluence neutronique et la forme du spectre. La caractérisation initiale permet de décider à l'avance pour chaque analyse, la meilleure position pour les échantillons et les masses standards dans un récipient d'irradiation "navette". Elle précise si la détermination des facteurs de correction (avec des incertitudes) pour les variations du taux de fluence et / ou interférences avec les neutrons rapides, sera nécessaire, ou si ces effets probables sont insignifiants et les estimations de l'incertitude sont suffisantes.

La surveillance du taux de fluence neutronique [34], est généralement utilisée pour la caractérisation initiale du gradient spatial du taux de fluence neutronique et les différences temporelles d'exposition aux neutrons pour chaque installation d'irradiation. Des moniteurs de flux sous forme de fils ou des feuilles métalliques appropriés sont rigidement positionnés à des emplacements différents dans un récipient ou des récipients d'irradiation, irradiés et comptés dans des conditions identiques. La décroissance corrigée du taux de comptage par unité de masse pour chaque moniteur est proportionnelle à l'exposition aux neutrons. Une comparaison entre ces valeurs peut être utilisée pour établir une « carte » des neutrons par rapport à l'intensité en fonction de la position à l'intérieur de chaque installation. La répétition de ce procédé à différents points dans le cycle de combustible du réacteur fournit des informations sur la variabilité temporelle. Lorsque ces mesures indiquent que le gradient du taux de fluence est stable pour une installation d'irradiation donnée, il peut être utile de caractériser complètement ce gradient et d'utiliser les facteurs de correction déduits de ces mesures pour les analyses suivantes. Les incertitudes associées à ces corrections peuvent être estimées sur la base des résultats des mesures de caractérisation.

Si cette méthode est utilisée, il est de bonne pratique d'inclure au moins quelques moniteurs de flux dans chaque expérience afin de vérifier que l'installation est toujours stable. Si la caractérisation initiale indique que les gradients du taux de fluence ne sont pas stables, un nombre suffisant de moniteurs (ou une autre méthode) doit être utilisé pour fournir des corrections pour chaque analyse (voir section 2.4.1).

La caractérisation initiale du spectre d'énergie fournit des informations précieuses sur l'ampleur générale des effets tels que les interférences provenant des réactions à neutrons rapides (voir section 2.5.1), la possibilité de variation du spectre d'énergie issue de la dispersion des interactions des neutrons au sein de l'échantillon, et l'autoprotection de résonance (voir section 2.4.1).

Cette caractérisation initiale permet à l'analyste d'évaluer si des mesures plus précises sont nécessaires (Pour une mesure donnée) pour évaluer pleinement un facteur de correction (avec une incertitude), ou bien une estimation de l'incertitude est seule suffisante. Par exemple, si

l'installation d'irradiation est très fortement thermalisée et si le composant neutrons rapides est très faible, un changement dans le spectre d'énergie dû à la diffusion neutronique n'est pas susceptible de se produire. Par conséquent, il serait peu probable qu'il contribue de manière significative à la mesure d'incertitude. De même, les contributions des réactions à seuil, peuvent être moins importantes selon la matrice et les quantités relatives des éléments d'intérêt (d'étude). Les feuilles d'activation sont couramment utilisées, par exemple [34] pour caractériser le spectre d'énergie des neutrons en déterminant les taux de fluence neutronique absolus : thermique, épithermique et rapide (spectre de fission) dans les installations d'irradiation du réacteur et d'autres paramètres neutroniques. Une masse connue de l'élément de contrôle approprié est irradiée. L'activité induite est mesurée à l'aide d'un détecteur d'efficacité connue. Les taux de fluence sont ensuite calculés en utilisant les valeurs de section efficace appropriées [37].

2.2.2 Caractérisation du système de spectrométrie Gamma : stabilité dans la gamme dynamique

Les composants de l'incertitude associés à la spectrométrie gamma ne peuvent en aucune manière être évalués sans s'assurer auparavant que les systèmes de spectrométrie sont correctement calibrés et optimisés pour l'énergie et les taux de comptage utilisés. La caractérisation et l'optimisation des systèmes de spectrométrie gamma sont effectuées pour obtenir une meilleure résolution et un maximum de pics de forme symétrique et pour déterminer la plage dynamique dont le système sera le plus stable. La stabilité du système est nécessaire pour assurer la précision des corrections *pileup* du logiciel (basée sur la détermination de la constante d'empilement "*pileup*"). L'exactitude des corrections fournies par le matériel permettent de compenser les pertes au cours des temps-morts¹ du système, et d'assurer que les formes de pics et la résolution sont optimales pour la gamme du taux de comptage et pour les temps-morts du système utilisés. Une fois le système optimisé et la plage dynamique est établie, l'analyste doit vérifier que le système est stable sur cette plage à des intervalles appropriés (peut-être à chaque utilisation). Ces procédures permettent de réduire les incertitudes associées aux corrections du "*pileup*", corrections au temps-mort « zéro » du système, et aux intégrations des pics.

2.3 Evaluation de l'incertitude : Préparation de l'échantillon

2.3.1 Composition élémentaire des comparateurs "stand."

La méthode utilisée pour évaluer cette incertitude dépendra de la nature de chaque standard utilisé [36, 37]. Pour un travail de plus haute précision, une matière d'une grande pureté peut être utilisée directement ou, plus généralement, une solution standard préparée à partir d'un matériau de haute pureté déposé sur un papier filtre.

1. Le temps durant lequel le détecteur ne peut pas répondre à un autre rayon gamma

Dans ce cas, il y aura des incertitudes associées à :

- La pureté et / ou la stœchiométrie du matériau de haute pureté utilisé ;
- Les pertes possibles lors de la dissolution ;
- La préparation de la solution standard gravimétrique ou volumétrique ;
- Le dépôt gravimétrique ou volumétrique sur des papiers filtres individuels ;
- La contamination au cours du processus de préparation du standard ;
- Les pertes de solvant pendant le processus de préparation du standard ;
- La détermination de la teneur en éléments du filtre en papier, des acides et l'eau ou un autre diluant utilisé dans la préparation, ou "blanc" [38, 39].

Si un Matériau de Référence Certifiés (MRC) de haute pureté est utilisé comme matériau de départ, l'incertitude de la teneur élémentaire du matériau est donnée sur le certificat fourni par le fournisseur de MRC. Si une solution de MRC de haute pureté est utilisée, l'incertitude des pertes de dissolution est comprise dans l'incertitude de la valeur certifiée. Si les matériaux standards à plusieurs éléments sont préparés, des précautions particulières doivent être prises pour évaluer les contributions d'impureté d'un élément à l'autre. Généralement les matériaux à multiples standards contiennent des quantités très différentes de différents éléments [40].

Dans certains cas, les matrices MRC sont utilisées en tant que standards pour des mesures AAN de faible précision. Cependant, des précautions doivent être prises pour inclure l'incertitude de la valeur certifiée du contenu de chaque élément dans le MRC, puisque celle-ci est souvent assez grande.

2.3.2 Rapport de l'abondance isotopique de la cible (échan./stand.)

AAN est une technique isotopique et l'équation (2.1) prend en considération les différences d'abondances isotopiques des éléments (R_θ = rapport des abondances isotopiques pour les échantillons et les standards). Bien que la détermination des éléments mono-isotopiques ne nécessite aucune correction ni incertitude ($R_\theta = 1$ avec absolument aucune incertitude), des corrections et des incertitudes peuvent être nécessaires pour les éléments ayant plus d'un isotope et dont les abondances varient dans la nature ou sont perturbées par l'Homme.

2.3.3 Détermination de la masse de base (ou autre base de l'échan.)

L'incertitude associée à la détermination de la masse de base de l'échantillon peut simplement être l'incertitude associée à l'utilisation d'une balance analytique. Pour l'analyse d'un grand nombre d'échantillons biologiques ou environnementaux tels que les tissus ou les sédiments,

les fractions de masse de l'élément d'échantillon sont généralement signalées sur la base de la masse sèche. L'échantillon utilisé pour l'analyse peut être séché au préalable ou analysé comme reçu avec la base de masse sèche déterminée en utilisant des portions séparées. Dans les deux cas l'incertitude associée à la détermination du facteur de correction sera associée à la détermination de la masse.

De même, dans l'analyse des tissus biologiques, les valeurs de fraction de masse peuvent être rapportées sur une base de tissu frais, lipidique, ou protéique mais le matériel sera analysé comme sec. L'incertitude est calculée à partir de la détermination de chaque composant de ce facteur de correction, à savoir les rapports masse humide/ masse sèche, le lipide / la masse humide, ou de protéines /masse humide.

2.3.4 Échantillons de blanc

En raison des contraintes du temps dans la détermination des éléments pour lesquels les produits d'irradiation neutronique sont des isotopes de durée de vie courte, ou en raison de la nature des échantillons, il peut ne pas être pratique ou possible de transférer chaque échantillon du récipient d'irradiation ou le matériau d'emballage «encapsulation» vers un récipient propre (non irradié) avant l'exécution de la spectrométrie gamma.

Dans ces cas, une caractérisation complète du récipient d'emballage en matière de sa composition élémentaires (et de sa variabilité dans un lot) peut être requise pour tenir compte de sa contribution à la valeur totale de l'élément mesuré dans l'échantillon. Lorsque cela est possible, il est préférable de transférer les échantillons du matériau d'emballage vers des récipients non irradiés pour éliminer le besoin de ce type de corrections. Lorsque le transfert n'est pas pratique ou n'est pas préféré, un nombre statistiquement valide de blanc doit être analysé pour déterminer la quantité d'élément par unité de masse du matériau d'emballage afin d'en tirer les corrections appropriées pour ces éléments. L'évaluation de l'incertitude comprend la variabilité de teneur de l'élément dans le blanc et l'incertitude associée à la détermination analytique de la teneur en quantité.

2.4 Évaluation de l'incertitude : Irradiation de l'échantillon

2.4.1 Différences d'exposition aux taux de fluence neutronique pour les échan. comparés aux stand.

Comme l'activité induite est directement proportionnelle à l'exposition aux neutrons, le taux corrigé des activités de désintégration des échantillons et des standards (étalons) est aussi directement proportionnel à l'exposition neutronique. En supposant qu'ils sont irradiés nominale-ment par le même taux de fluence neutronique, dans la même installation du réacteur et dans le même laps de temps, il y a quatre facteurs qui peuvent entraîner des expositions inégales aux neutrons :

les variations des taux de fluence neutronique spatiale et temporelle, l'absorption des neutrons et les effets de diffusion. Les variations spatiales des taux de fluence neutroniques et les effets de la géométrie d'irradiation résultent des différences des taux de fluence neutronique dans les différentes positions de chaque échantillon et standards dans l'installation d'irradiation. Les changements temporels des taux de fluences neutroniques sont également fréquents au sein de nombreuses installations et doivent être évalués lorsque plus d'une irradiation est requise.

L'autoabsorption neutronique peut être importante (significative) lorsque la partie extérieure d'un échantillon ou d'un standard absorbe une fraction importante de neutrons. Ainsi l'intérieur de cet échantillon ou standard subit une exposition réduite. La diffusion des neutrons bien qu'elle soit très petite, ses effets peuvent perturber l'exposition aux neutrons de certains échantillons d'une manière semblable à celle de l'absorption. Bien qu'il soit possible d'évaluer séparément les effets d'absorption et de diffusion, il est plus commode d'évaluer leur effet combiné comme décrit ci-dessous.

2.4.1.1 Les différences d'exposition des échan. comparés aux stand. dues aux effets physiques (gradients de fluence)

Dans une installation d'irradiation typique, le combustible du réacteur n'est pas symétriquement situé autour de la position d'irradiation, et donc les taux de fluence neutronique varient en différents endroits dans la navette conduisant à des différences potentielles dans les expositions aux neutrons entre les standards et les échantillons inconnus au cours d'une irradiation.

En général, le taux de fluence neutronique diminue en s'éloignant du cœur du réacteur. Si l'axe de la navette est perpendiculaire aux lignes de champs du flux, le gradient est presque linéaire. Le biais analytique introduit par ce gradient peut être compensé en inversant la navette au milieu du temps d'irradiation (à savoir, en retirant la navette au milieu de l'irradiation, rotation (retournement) de 180°, et en réinsérant la navette pour la seconde moitié de l'irradiation). Cette procédure, difficile à appliquer, diminue considérablement les effets du gradient des neutrons à l'intérieur du récipient d'irradiation mais ne peut pas les éliminer entièrement. Pratiquement au laboratoire d'AAN du CENM, pour réduire cet effet, la distance entre l'échantillon et le moniteur de flux est réduite en adoptant des capsules de petite dimension (quelque *mm*). L'effet sur le taux de fluence dans ce cas est d'environ 0,01%.

D'autres manipulations physiques peuvent être utilisées pour égaliser l'exposition aux neutrons dans le récipient d'irradiation. Les réacteurs TRIGA possèdent une installation nommée râtelier rotatif "*Lazy-Susan*" ou RSR dédiée aux longues irradiations où les échantillons sont mis en rotation durant toute l'irradiation. Dans les deux cas, les différences résiduelles peuvent être corrigées, et les incertitudes évaluées comme décrit selon l'approche de surveillance de flux, ou si les corrections ne sont pas nécessaires, les incertitudes peuvent être évaluées comme pour l'approche de l'historique des données.

2.4.1.2 Les différences dans l'exposition aux neutrons pour des échantillons inconnus par rapport aux standards en raison des effets temporels

Au cours d'un cycle du réacteur, les taux de fluence neutronique dans une même installation varient en fonction du temps, de telle sorte qu'il existe des différences d'expositions d'une irradiation à l'autre. Pendant les premières heures de fonctionnement du réacteur, la température du modérateur atteint progressivement un état stable et donc le spectre des neutrons va changer durant ce temps. Comme le combustible est consommé, les barres de contrôle se déplacent dans le réseau du combustible et modifient la répartition spatiale du champ de neutrons. Il est indispensable que chaque installation d'irradiation soit complètement caractérisée à la fois pour les gradients spatiaux de neutrons dans une irradiation donnée, et pour les différences temporelles des taux de fluence de neutrons d'une irradiation à l'autre pour des expériences AAN qui impliquent plus qu'une irradiation.

Les corrections pour les différences d'exposition physiques et temporelles et leurs incertitudes associées peuvent être évaluées à l'aide des mesures issues des données historiques et/ ou de surveillance de fluence. Les données historiques sont particulièrement utiles pour les installations qui sont stables dans le temps, en particulier lorsque aucune correction n'est requise. Dans ce cas, un grand nombre d'échantillons identiques sont irradiés et comptés (de préférence à une distance relativement loin du détecteur) avec de très bonnes statistiques de comptage pour un ou plusieurs rayons gamma. L'incertitude relative due à la géométrie d'irradiation est l'écart-type relatif observé (RSD), réduit en quadrature par l'incertitude due aux statistiques de comptage. A titre d'exemple, un récipient contenant des échantillons identiques est irradié. Ces échantillons sont comptés individuellement et le RSD observé du taux de comptage de décroissance, corrigé par unité de masse de l'échantillon, d'un radionucléide est de 0,5%. Si l'incertitude typique de comptage pour chaque échantillon est de 0,3%, et toutes les autres sources de variation sont négligeables, l'incertitude due aux effets de la géométrie d'irradiation serait la racine carrée de $\left[(0,5\%)^2 - (0,3\%)^2\right]$ ou 0,4% pour chaque échantillon (ou étalon). S'il existe des sources supplémentaires de variation importantes, comme les différences de géométrie de comptage, ces incertitudes peuvent également être soustraites (en quadrature) à partir du RSD observé. Cette incertitude de 0,4% peut être utilisée pour caractériser chaque échantillon ou standard irradié dans toutes les futures irradiations au sein de cette installation, tant que rien ne fait changer la distribution du flux. Si un échantillon et un standard sont irradiés ensemble dans cette installation, l'incertitude d'irradiation géométrique combinée pour l'échantillon et le standard serait la racine de $\left[(0,4\%)^2 + (0,4\%)^2\right]$, soit 0,57%. Si plusieurs échantillons et/ou standards (du même matériau) sont irradiés ensemble, l'incertitude géométrique de comptage pour l'échantillon et le standard (pour la valeur moyenne) serait réduite par la racine-carrée du nombre d'échantillons et/ou des standards irradiés.

Les moniteurs de fluence neutronique (connu aussi par moniteurs de flux) sont souvent utilisés pour déterminer le gradient spatial statique, le gradient temporel et les changements du

spectre des neutrons. Les résultats des expériences d'AAN sont souvent normalisés par l'irradiation d'une masse connue et de composition uniforme d'un moniteur de flux en même temps que les échantillons. Un certain nombre de moniteurs est utilisé : feuilles et fils de fer, du cuivre, du nickel, du zinc, du zirconium ou autres métaux, des solutions standard pipetées sur du papier filtre, ou alliages spécialement fabriqués tels que Au/Al ou Co/Al . Pour les mesures relatives, il est nécessaire de déterminer l'activité absolue des moniteurs. Après irradiation, les rayons gamma sont comptés pour déterminer l'exposition relative aux neutrons pour chaque échantillon, et des corrections sont appliquées si nécessaire. Les incertitudes de ces corrections peuvent être déterminées à partir des statistiques de comptage observées sur les moniteurs. Comme le cas de l'historique des données, si plusieurs échantillons (de la même matière) et / ou des standards sont irradiés ensemble, l'incertitude géométrique de comptage pour l'échantillon et le standard (pour la valeur moyenne) serait réduite par la racine carrée du nombre d'échantillons et / ou des standards irradiés.

2.4.1.3 L'autoprotection neutronique : absorption des neutrons et les effets de diffusion dans un seul échantillon ou standard.

Quand un échantillon ou standard est immergé dans un champ neutronique, son intérieur est exposé à un taux de fluence neutronique inférieur par rapport à son extérieur, en raison de l'absorption des neutrons et de la diffusion par l'échantillon. Cet effet, nommé autoprotection des neutrons, varie avec les sections efficaces macroscopiques de diffusion et d'absorption, la taille et la forme de l'échantillon.

Le facteur de correction pour l'autoprotection des neutrons f_φ est le rapport du taux moyen de fluence sur le volume de l'échantillon entier, comparé au taux de fluence incident sur l'échantillon. Pour une absorption et une diffusion d'un échantillon exposé à un champ neutronique isotrope, la valeur de f_φ est toujours inférieure à l'unité [41], à moins que l'échantillon contienne des matières fissiles.

— Les méthodes de Monte Carlo et les valeurs calculées

Un calcul rigoureux des facteurs de correction d'autoprotection exige la connaissance du spectre d'énergie des neutrons à l'intérieur et à l'extérieur de l'échantillon, et les section efficaces d'absorption et de diffusion en fonction de l'énergie. Les méthodes de Monte Carlo peuvent être utilisées pour déterminer les valeurs de f_φ , mais quelques calculs effectués à ce jour ont inclus à la fois les changements dans le spectre d'énergie des neutrons dus à la diffusion des neutrons et les valeurs de section efficace moyennées sur le spectre pour les nucléides d'intérêts.

La diffusion (Scattering) affecte l'historique des neutrons dans l'échantillon, même s'il n'y a pas de changement dans l'énergie des neutrons, M. Blaaw [42] a étudié les effets de diffusion et d'absorption des neutrons dans les échantillons sphériques immergés dans un champ neutro-

nique isotrope. Il a calculé les valeurs de f_φ , en utilisant une solution itérative à l'équation de transport de neutrons et les méthodes de Monte Carlo. Les résultats des deux approches étaient constants et indiquent que la diffusion des neutrons peut diminuer les valeurs de f_φ , contribuant à plus d'autoprotection, pour les échantillons qui absorbent et diffusent les neutrons à la fois dans un champ de neutrons isotrope. Des résultats similaires ont été démontrés pour d'autres formes d'échantillons.

— Évaluation expérimentale de f_φ

La conséquence de la diffusion thermique par l'hydrogène sur l'activité induite pour AAN a été déterminée expérimentalement [42] en irradiant des feuilles de fer en sandwichs dans le réacteur bien thermalisé du NIST avec et sans éléments d'espacement en polyéthylène. Aucune différence significative n'a été détectée à une précision de l'ordre de 0,1%. On peut mieux estimer expérimentalement la valeur de f_φ pour un matériau donné par l'application de la méthode d'AAN sur une série d'échantillons de différentes épaisseurs et la détermination des facteurs de correction basés sur la comparaison avec un échantillon mince pour lequel la valeur de f_φ est essentiellement 1. En effet, pour un matériau de composition inconnue c'est la seule méthode possible.

— L'incertitude dans les estimations f_φ

Les facteurs de correction peuvent être déterminés par des méthodes Monte Carlo appropriées, calculées en utilisant une des approximations ou déterminées expérimentalement. Expérimentalement ou par simulation Monte Carlo, l'incertitude associée au facteur de correction peut être déterminée sur la base des considérations statistiques de la méthode utilisée. Quand les approximations des formules sont utilisées, l'incertitude du facteur de correction peut être estimée à 10% de la correction. Notez qu'il s'agit de simulations de Monte Carlo ou des corrections calculées sur la base de Σ_a ou Σ_a et Σ_d , l'ajout d'une incertitude supplémentaire peut être nécessaire lorsque la composition de l'échantillon est partiellement inconnue.

2.4.1.4 Effets de protection neutronique à partir d'échantillons ou standards voisins

Quand plusieurs échantillons et standards sont irradiés ensemble, des effets d'absorption ou de diffusion sur des échantillons / standards individuellement résultant de l'absorption et la diffusion de ceux du voisinage devraient être pris en considération, particulièrement quand ils sont de grande taille, très dense et / ou composés de constituants hautement absorbants. Les corrections pour la diminution de fluence par les échantillons / standards voisins peuvent souvent être calculées si les tailles, les formes et compositions de tous matériaux sont connues. Cependant, les corrections sont souvent plus commodément accomplies par la normalisation par l'infiltration des monitors de flux, au moins pour les échantillons ayant des tailles et des compositions

analysées typiquement par AAN. Les grands échantillons (à savoir, très supérieure à 1g), en particulier ceux avec une grande teneur en matériaux absorbant de neutrons, peuvent nécessiter des corrections supplémentaires. En plus de la surveillance des corrections de fluence des effets externe sur les échantillons / standards, les moniteurs de flux peuvent être utilisés pour déterminer et corriger les effets du gradient de fluence spatiale statique, le gradient temporel, et les variations du spectre des neutrons (traité dans les sections 2.4.1 et 2.4.1). Cependant, les effets d'autoprotection de neutrons au sein de chaque échantillon (ou standard) doivent être traités séparément.

Le nombre et le positionnement des moniteurs de fluence dépendront du nombre, de la masse, de la forme, de la composition, et de la proximité (ou densité d'emballage) des échantillons et des standards, ainsi que la connaissance des gradients de fluence dans l'installation d'irradiation lorsque aucun échantillon ou standard n'est présent. Par exemple, dans une installation d'irradiation avec une descente linéaire perpendiculaire aux échantillons / standards, qui sont relativement tous petits, bien séparés et particulièrement non absorbants, un moniteur de flux à chaque extrémité du récipient d'irradiation et un autre au milieu du paquet échantillon / standard peuvent être suffisant. Cependant, pour des échantillons assez absorbants qui sont étroitement emballés, un moniteur de flux entre chaque échantillon et / ou du standard peut être nécessaire. L'activité corrigée de décroissance moyenne pour les deux moniteurs de flux environnants offre les facteurs de correction pour chaque échantillon et / ou standard. Les incertitudes pour les corrections dépendront des statistiques de comptage pour chacun des moniteurs environnants, combinés en quadrature.

La mesure AAN avec peut-être la plus haute précision démontrée et la plus petite incertitude à ce jour a été la mesure de Chrome (*Cr*) en acier inoxydable (SRM 1152a) par [43]. Des moniteurs de flux de Fer ont été utilisés pour corriger les différences d'exposition aux neutrons à la surface des échantillons et des standards, et des corrections d'autoprotection des neutrons ont été calculées comme décrit au paragraphe 2.4.1. La valeur mesurée de *Cr* (pour 300 mg d'échantillon) avec une incertitude relative élargie de 0,2% qui convient à 0,05% relative à la valeur certifiée, qui avait aussi une incertitude relative élargie de 0,2%. La calibration du Chrome a été réalisée avec des puces et des feuilles de métal pur (Env. 1,5 mg et 80 mg chacune). L'incertitude des corrections d'autoprotection de neutrons domine tous les composants des autres incertitudes (env. 90% de l'incertitude combinée) en raison des difficultés de caractérisation des dimensions réelles et les formes des pièces métalliques utilisées. La plupart des échantillons et des standards nécessitent chacun des corrections d'autoprotection relatives de plusieurs pour cent.

2.5 Les interférences d'irradiation

Lors de l'étape d'irradiation, trois types d'interférences sont possibles pour certains éléments fréquemment déterminés par l'AAN. La plupart des réactions nucléaires utilisées pour l'AAN

sont basées sur des réactions à neutrons thermiques ou épithermiques. Cependant, les neutrons de haute énergie peuvent libérer un proton ou une particule alpha à partir d'un noyau, et interférer avec la détermination de certains éléments. Par exemple, *Al* est typiquement déterminé par la réaction $^{27}\text{Al}(n, \gamma)^{28}\text{Al}$. ^{28}Al peut également être produit par *Si* et *P* avec des neutrons de haute énergie par l'intermédiaire de la réaction $^{28}\text{Si}(n, p)^{28}\text{Al}$ et $^{31}\text{P}(n, \alpha)^{28}\text{Al}$ [44]. La taille relative de l'interférence dépendra à la fois de la fraction massique d'*Al* par rapport à celle de chaque élément interférent dans l'échantillon, et de la fraction des neutrons rapides dans l'installation d'irradiation par rapport à la quantité de neutron thermique. Heureusement, ces réactions (n, p) et (n, α) ne peuvent se produire que si le neutron entrant transporte suffisamment d'énergie pour égaler la différence de masse entre les noyaux cibles et les produits, ainsi que l'énergie supplémentaire nécessaire pour surmonter la barrière de Coulomb pour l'émission de particules chargées. Seules quelques réactions de ce genre sont typiquement rencontrées dans l'analyse par activation neutronique. D'une manière similaire, la fission thermique de ^{235}U produira (sous forme de fragments de fission) quelques nucléides, les mêmes utilisés pour déterminer d'autres éléments de l'AAN. Par exemple, le ^{99}Mo un des produits de fission les plus souvent produit, est également utilisé pour déterminer le *Mo* via la réaction $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$. Enfin, dans de très rares cas les interférences peuvent être causées par une double capture de neutrons.

2.5.1 Interférences à neutrons rapides

Les interférences à neutrons rapides les plus importantes pour l'installation du tube pneumatique PTS du réacteur Triga du CENM sont répertoriées dans le tableau 2.1, où les taux de fluence thermiques et de fission sont respectivement $6,0 \times 10^{12}$ et $2,0 \times 10^8 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Les interférences (ϵ_0) énumérées représentent le μg apparent d'interférence par gramme d'élément interférent irradié. Les interférences à neutrons rapides dans la plupart des réacteurs modérés à eau légère seraient généralement deux à trois fois plus grandes comparées aux réacteurs modérés au D_2O . Dans les réacteur Triga plusieurs interférences importantes sont couramment rencontrées : L'interférence (n, p) de l'*Al* sur la détermination de *Mg* dans les matériaux géologiques et connexes, et l'interférence (n, α) de ^{31}P sur la détermination de l'*Al* dans les matériaux biologiques. D'autres interférences importantes ont été observées dans quelques applications particulières, telles que l'interférence (n, α) du ^{54}Fe sur la détermination de *Cr* dans les matrices biologiques.

Tableau 2.1 – Liste des interférences relatives aux neutrons rapides dans l'AAN.

Interférences (n, p)					
Élément	Produit d'activation	Demi-vie	Interfèrent	σ_{rapide} (mb)	$\xi_0(\mu g/g)$
<i>Al</i>	^{28}Al	2min	^{28}Si	6,6	65,1
<i>Co</i>	^{60}Co	5a	^{60}Ni	2,1	0,08
<i>Cu</i>	^{64}Cu	13h	^{64}Zn	31	19,92
Cu	^{66}Cu	5min	^{66}Zn	0,62	1,11
<i>Fe</i>	^{59}Fe	40j	^{59}Co	1,42	1721,74
<i>Mg</i>	^{27}Mg	9min	^{27}Al	4	408,52
<i>Mn</i>	^{56}Mn	3h	^{56}Fe	1,07	0,44
<i>Na</i>	^{24}Na	15h	^{24}Mg	1,53	13,26
<i>Ni</i>	^{65}Ni	3h	^{65}Cu	0,48	62,36
<i>P</i>	^{32}P	14j	^{32}S	69	1551,98
<i>S</i>	^{35}S	88j	^{35}Cl	78	3273,64
<i>S</i>	^{37}S	5min	^{37}Cl	0,218	418,84
<i>Ti</i>	^{51}Ti	6min	^{51}V	0,87	130,7
Interférences (n, α)					
Élément	Produit d'activation	Demi-vie	Interfèrent	σ_{rapide} (mb)	$\xi_0(\mu g/g)$
<i>Al</i>	^{28}Al	2min	^{31}P	1,9	31,74
<i>Co</i>	^{60}Co	5a	^{63}Cu	0,5	0,02
<i>Cr</i>	^{51}Cr	30j	^{54}Fe	0,6	0,34
<i>Fe</i>	^{59}Fe	40j	^{62}Ni	0,09	2,09
<i>Ni</i>	^{65}Ni	3h	^{68}Zn	0,05	3,89
<i>P</i>	^{32}P	14j	^{35}Cl	8,8	98,75

Il est relativement facile de déterminer l'interférence (n, p) de ^{28}Si sur ^{28}Al , en irradiant une petite quantité de *Si* de pureté élevée (par exemple, une pièce métallique *Si* de qualité semiconducteur) avec un petit morceau de feuille d'*Al*, et en déterminant la teneur apparente d'*Al* du *Si*. Cependant, les valeurs d'interférence calculées doivent être utilisées uniquement comme guide pour déterminer quelles interférences peuvent être importantes. Si l'interférence est jugée importante, elle devrait être mesurée et corrigée. L'incertitude de la valeur corrigée est déterminée à partir de l'incertitude du taux d'interférence mesuré, l'incertitude du contenu de l'élément interfèrent dans l'échantillon concerné et l'incertitude de la détermination de l'élément d'intérêt avant l'application de la correction.

Certaines interférences restent toujours difficiles à quantifier. Dans ce cas on peut avoir recours à la simulation Monte Carlo ou à un calcul analytique basé sur la fluence neutronique mesurée à l'installation d'irradiation.

2.5.2 Les interférences de fission

La fission de ^{235}U produira (sous forme de fragments de fission) quelques nucléides qui sont utilisés pour déterminer d'autres éléments par AAN. Parmi les interférences les plus importantes concernent le molybdène et le baryum. Celles-ci et d'autres qui sont potentiellement importantes sont énumérées dans le tableau 2.2, avec l'interférence apparente en μg d'élément par μg d'uranium naturel de l'échantillon [92].

Tableau 2.2 – Interférences typiques de fission de l'uranium - μg apparent d'élément par μg d'uranium.

Éléments	Isotopes	Neutrons Thermiques	Neutrons Epithermiques
<i>Molybdène</i>	^{99}Mo	1,4 – 3 ²	0,1
<i>Baryum</i> ³	^{131}Ba	0,4 $e^{0,0402 J}$	–
<i>Baryum</i>	^{139}Ba	0,6	–
<i>Cérium</i>	^{141}Ce	0,3	–
<i>Lanthane</i>	^{140}La	0,2 ($t_r > 6\text{js}$) ⁴	–
<i>Néodyme</i>	^{147}Nd	0,2	–
<i>Ruthnium</i>	^{103}Ru	0,1	–
<i>Tellure</i>	^{131}Te	0,8	0,5
<i>Zirconium</i>	^{95}Zr	10	3
<i>Zirconium</i>	^{97}Zr	20	–

Étant donné que les interférences sont dues à la fission de ^{235}U , elles seront différentes pour les échantillons dépourvus d'isotopies naturels d'uranium (enrichi ou appauvri en ^{235}U). Deux parmi les interférences énumérées nécessitent d'ample discussion. Bien que le ^{131}Ba ne soit pas un produit de fission, les rayons gamma 496 keV issus du ^{131}Ba , souvent utilisés pour déterminer le baryum par l'AAN, peuvent interférer avec les rayons gamma 497 keV du ^{103}Ru , qui est un produit de fission. Cela peut être une interférence importante, en particulier pour les matériaux de type géologique. À cause de la différence entre les demi-vies de ^{131}Ba (11,5 *jours*) et ^{103}Ru (39 *jours*), l'interférence apparente augmente avec le temps de décroissance. En outre, le ^{140}La (40,3 *h*) n'est pas un produit direct de la fission de l'uranium, mais un produit de fission du ^{140}Ba (11,7 *jours*). Étant donné que la plupart des matériaux géologiques possèdent des fractions de masse beaucoup plus élevées de lanthane par rapport à l'uranium, cette interférence est rarement importante au bout d'une semaine et donc après irradiation, mais devient de plus en plus importante que le temps de désintégration augmente.

2. Dépend de f en raison de l'intégrale de résonance élevée pour l'activation du *Mo*

3. Contribution à la raie 496,2 keV de ^{103}Ru . J signifie le temps de décroissance (t_r) en jours. Des intervalles de décroissance plus longs entraînent de plus grandes interférences apparentes

4. Fils de ^{140}La (40,3 *h*) alimenté par de ^{140}Ba à durée de vie plus longue (11,7 *jours*). L'interférence peut être très importante après une longue décroissance

Compte tenu du risque d'interférences de fission, il est important de connaître le niveau approximatif de l'uranium dans des échantillons lors de la détermination des éléments qui ont des interférences de fission. Si la teneur (ou fraction de masse) en uranium est connue, les interférences importantes peuvent être estimées à l'aide des informations du tableau 2.2 (données à partir de [45]). Cependant, si la teneur en uranium n'est pas connue, et si les éléments avec les interférences importantes sont à l'étude, il est important de déterminer l'uranium dans les échantillons soumis à l'enquête, soustraire les interférences pertinentes, et calculer les incertitudes. Cela peut être effectué en préparant les standards d'uranium en un seul élément, en irradiant ces standards avec les échantillons soumis à l'étude, et à les compter avec ces derniers.

Les standards sont d'abord utilisés pour déterminer les fractions de masse d'uranium dans les échantillons. Les standards d'uranium sont ensuite considérés eux-mêmes comme des échantillons pour déterminer les taux d'interférence, à savoir, les quantités apparentes des éléments interférés par μg (ou $\mu g/g$) d'uranium (dans le standard). L'incertitude pour chaque correction d'interférence de fission comprendra l'incertitude sur la détermination de la teneur en uranium dans chaque échantillon (principalement à partir des statistiques de comptage de l'échantillon et du standard), ainsi que l'incertitude sur le taux d'interférence déterminée à partir de l'incertitude du comptage des produits de fission individuels de l'uranium du standard. Il convient de noter que les interférences énumérées dans le tableau 2.2 sont valables pour les échantillons en vrac, à savoir, un mg ou plus de masse totale. Les échantillons consistant en films minces, les dépôts de surface, ou ayant de très petites masses totales peuvent avoir des interférences faibles en raison des pertes de recul des fragments de fission des surfaces, surtout si les échantillons sont transférés après irradiation.

2.6 Les différences de section efficace entre les échantillons et les standards

Un principe central de l'analyse par activation est que dans des échantillons dilués, la probabilité de capture des neutrons $\sigma(E)$ par le loyau cible est une constante pour une énergie de neutrons donnée E . Cependant, si une installation d'irradiation n'est pas bien thermalisée, la diffusion des neutrons dans un échantillon peut changer le spectre d'énergie des neutrons dans un échantillon avec des conséquences quantitatives. Avec un spectre de neutrons plus dur (une composante épithermique et rapide plus grande), la diffusion de neutrons à haute énergie à travers l'échantillon décale le spectre d'énergie à la baisse. Les sections efficaces de neutrons étant en général inversement proportionnelles à la vitesse des neutrons (la loi " $1/v$ "), ceci conduit à une augmentation de le taux de réaction et de la fraction de masse apparente de l'élément dans les échantillons de haute diffusion, par rapport à un standard qui diffuse moins. Cela peut être important dans une installation mal thermalisée, mais il n'y a pas de grand changement de section efficace pour une installation d'irradiation bien thermalisée, puisque les neutrons ther-

miques contrôlent le taux de réaction et la diffusion globale ne se traduira pas par un changement net dans l'énergie moyenne des neutrons. Bien que la plupart des installations d'irradiation des réacteurs à eau légère ou à l'eau lourde soit bien thermalisée, le degré de thermalisation devrait être évalué au cours des mesures de caractérisation initiale du réacteur. Un exemple a été donné par [46].

Dans quelques cas très rares, un changement dans le spectre d'énergie des neutrons peut être causé par la résonance d'autoprotection. Cet effet se réfère à l'enlèvement d'une partie importante des neutrons d'énergie de résonance par un matériau ayant une grande section d'absorption par résonance, par exemple l'Or, l'Indium, le Samarium et le Gadolinium. Étant donné que l'activation est proportionnelle au produit du taux de fluence neutronique et à la section efficace d'absorption moyennée sur le spectre d'énergie, toute modification du spectre d'énergie aura une incidence sur la quantité d'activité produite. L'ampleur de l'effet est plus grande pour les installations avec des spectres pauvres en neutrons thermalisés et des échantillons / standards avec une grande quantité d'absorbeur fort de neutrons avec une faible énergie de résonance. Les facteurs de correction pour l'autoprotection due aux résonances des neutrons épithermaux ont été calculés en utilisant les méthodes de Monte Carlo [47]. Lorsque des échantillons très fortement absorbants avec une résonance d'absorption importante sont analysés, ces effets doivent être déterminés expérimentalement par l'irradiation des portions diluées successivement et déterminer ainsi les facteurs de correction nécessaires pour tenir compte des différences entre les échantillons et les standards de comparaison en respectant l'exposition effective aux neutrons.

2.7 Évaluation de l'incertitude : Spectrométrie gamma

2.7.1 Statistiques de réplification de comptage pour les échantillons

Les incertitudes de réplification de mesure sont communes à toutes les méthodes de mesure analytiques. Typiquement, les incertitudes pour les échantillons et les standards doivent être considérées séparément. L'incertitude standard de réplification de mesure pour les échantillons inconnus peut être la plus communément évaluée en divisant l'écart-type observé par la racine carrée du nombre d'échantillons indépendants mesurés. Cependant, une telle évaluation est impossible si un seul échantillon est analysé. De plus, si seulement quelques échantillons sont analysés, l'écart-type observé n'est pas très significatif (à savoir, il y a un degré élevé d'incertitude pour l'écart-type). Dans ces cas, il est souvent plus approprié de calculer l'incertitude en utilisant les incertitudes issues des statistiques de comptage, tant que la désintégration radioactive suit une distribution de Poisson. Ainsi, l'incertitude de réplification d'une seule mesure serait juste la racine carrée de la surface nette du pic combiné avec deux fois la surface du bruit-de-fond sous le pic si un nombre égal de canaux est utilisé pour le pic et le bruit-de-fond [24].

2.7.2 Statistiques de réplication de comptage pour les standards

Le raisonnement pour les standards sera le même que celui des échantillons inconnus dans la section précédente. L'incertitude de réplication de mesure des standards peut être évaluée soit comme étant l'écart-type observé de la valeur moyenne A_0 pour les standards (typiquement A_0 par μg de chaque élément) lorsque plusieurs standards sont utilisés pour chaque élément, ou comme l'incertitude propagée de comptage. Si seulement un nombre limité de standards est mesurés, il est souvent plus approprié d'utiliser l'incertitude observée due aux statistiques de comptage. Notez que lors du comptage, les incertitudes statistiques sont utilisées pour l'incertitude de réplication de mesure pour les standards. Il est extrêmement important de veiller à ce que toute autre incertitude de préparation, d'irradiation et de comptage, soient considérées et entièrement évaluées.

2.7.3 Corrections pour la désintégration radioactive (effets temporels et incertitudes des demi-vies)

La désintégration radioactive suit strictement $A = A_0 e^{-\lambda t}$, où $\lambda = \frac{\ln(2)}{t_{1/2}}$. Si l'erreur dans le temps de décroissance t_r est δ , alors l'erreur de correction dans la désintégration f_r est :

$$\delta(f_r) = e^{-\lambda t_r} - e^{-\lambda(t_r+\delta)} \quad (2.3)$$

Par exemple, une erreur 1% dans t_r ou λ correspond à une erreur relative de $0,01\lambda t_r$.

Étant donné que la quantification des mesures d'AAN dépend de la comparaison des taux de décroissance corrigés des échantillons et des standards, les incertitudes dues aux corrections de désintégration radioactive lors de l'irradiation, avant et au cours même du processus de spectrométrie gamma, doivent être considérées. Les incertitudes dues à la demi-vie de chaque radionucléide, ainsi que les incertitudes dans l'établissement des différents temps de décroissance et les intervalles de comptage (temps réel, le temps d'horloge) contribuent tous à l'incertitude globale de la mesure. Heureusement, les demi-vies des radionucléides utilisées dans l'AAN sont généralement si bien connues que les corrections de décroissance sont rarement significatives pour la valeur totale de l'incertitude. Quelques exceptions ont été notées. Toutefois, dans une analyse de grande précision de l'arsenic via le ^{76}As , l'utilisation d'une demi-vie récemment publiée et compilée a donné un biais sérieux et facilement détecté dans les résultats analytiques. La re-détermination de cette demi-vie [49] et de trois autres nucléides [50], mesurés par le même auteur, a donné des valeurs compatibles avec le consensus de la littérature antérieure. Plus récemment, une détermination du germanium en alliage Ge-Si via ^{77}Ge a été entravée par une demi-vie pauvre dans la littérature. Une nouvelle détermination était nécessaire pour atteindre des résultats satisfaisants [51].

2.7.3.1 Corrections de décroissance de la fin de l'irradiation au début de chaque mesure

Étant donné que les informations temporelles d'irradiation et de comptage sont habituellement déterminées à partir de différents instruments, des erreurs d'horloges mal synchronisées sont possibles. Cependant, dans la plupart des cas, les écarts importants (potentiels) et les incertitudes des corrections radioactives entre la fin de l'irradiation et le début de la mesure sont généralement extrêmement petits (et insignifiants). Si des échantillons et des standards sont irradiés ensemble, les effets résultant des erreurs de temporisation s'annuleront lorsque des rapports d' A_0 s sont calculés. Si les demi-vies des nucléides faisant l'objet d'étude sont relativement longues par rapport aux erreurs de synchronisation possibles des différentes horloges, les écarts seront également insignifiants. Ce n'est que lorsque la demi-vie du nucléide concerné est très courte et les échantillons et les standards sont irradiés séparément, qu'il peut y avoir une possibilité d'écart important ou incertitude. Dans de tels cas, le biais peut être évalué (et corrigé si nécessaire) en comparant les temps des différentes horloges. Si aucune différence n'est observée, la différence maximale possible peut être estimée, et une incertitude calculée en calculant l'effet de la différence maximale possible sur A_0 (lorsque les échantillons et les standards sont irradiés séparément). Une incertitude standard peut être évaluée en supposant une répartition uniforme et en divisant par $\sqrt{3}$.

2.7.3.2 Incertitude du temps d'horloge (real time)

Les premiers systèmes d'analyseurs multicanaux (MCA) avaient des résolutions temporelles d'une seconde. Lorsque les mesures étaient réalisées en un temps réel prédéfini, le temps d'horloge pourrait être arrêté par près d'une seconde entière. Cela pourrait entraîner des biais mineurs dans les corrections de décroissance pour les nucléides ayant des demi-vies très courtes. Cependant, les MCA actuels ont un temps de résolution de 0,01 s ou mieux, ce qui rend tout biais éventuel insignifiant pour les nucléides dont la demi-vie est supérieure à environ une seconde. Le biais potentiel peut être évalué en calculant l'effet sur A_0 en ajoutant un supplément du temps de l'analyseur (c'est-à-dire un 0,01 s supplémentaires) à l'heure d'un comptage. Cela représenterait le biais maximal possible. Une incertitude standard peut être évaluée en supposant également une distribution uniforme et en divisant par $\sqrt{3}$.

2.7.3.3 Incertitude du temps-actif (live time)

D'une manière similaire à celle décrite ci-dessus pour l'incertitude de l'heure d'horloge, les mesures en temps réel peuvent être erronées jusqu'à une seconde pour les anciens MCA lorsque les mesures ont été effectuées pour prérégler des temps d'horloge. Cependant, la plupart des mesures sont effectuées à l'aide de préréglages en direct plutôt que des temps d'horloge prédéfinis, éliminant cette erreur. Comme ci-dessus, les biais sont généralement insignifiants avec les MCA actuels, mais peuvent encore être évalués en calculant l'effet de l'ajout d'une unité supplémentaire de temps de résolution.

2.7.3.4 Effets du taux de comptage pour chaque mesure

Selon le type de système d'analyse utilisé, les corrections et les incertitudes décrites ci-dessous doivent être considérées mais pas toutes les trois.

— Correction des pertes d'impulsions de pileup

L'impulsion de pileup (empilement) est le résultat de deux ou plusieurs rayons gamma arrivant au détecteur pendant une période de temps trop courte pour être résolu par l'amplificateur, et aboutit à des comptages perdus. Les corrections matérielles pour ces pertes peuvent être effectuées en utilisant : la correction rejet de pileup/en temps-actif (live time) dans le circuit de l'amplificateur, Un générateur d'impulsions de haute précision dont le taux de perte est égal au taux de perte de tous les comptages dans le spectre, Ou un matériel sans perte ou sans temps-mort pour évaluer les pertes de comptage pour les mesures quand elles se produisent, et corriger les spectres en ajoutant un nombre de comptages au temps pendant lequel le système de comptage n'est pas disponible pour enregistrer des rayons gamma, ou calculer un facteur de correction pour chaque canal. Les incertitudes des corrections matérielles dépendent du matériel utilisé. Les incertitudes de corrections utilisant un générateur d'impulsions de haute précision, peuvent être déterminées en combinant en quadrature l'incertitude relative des statistiques de comptage dans le pic d'impulsion avec l'incertitude relative du taux de comptage d'impulsions lorsque la source radioactive est comptée. Les incertitudes des systèmes sans pertes ou les systèmes à temps-mort zéro dépendent de la linéarité de ces systèmes, qui peut être évaluée en recueillant des comptes multiples d'une source en décroissance sur la plage appropriée du système du taux de comptage ; les effets des corrections sur l'incertitude statistique de comptage sont discutés dans la section 2.7.1.

Des solutions logicielles sont également possibles. Par exemple, les corrections des pertes par empilement (F_P) peuvent être réalisées par l'équation 2.4 :

$$F_p = e^{\frac{P(t_c - t_L)}{t_L}} \quad (2.4)$$

Où : F_P = Correction du Pileup, t_c = temps d'horloge (ou temps réel), t_L = temps-actif, et P est une constante de pileup déterminée expérimentalement [44] [52].

La constante P est habituellement évaluée par une régression des moindres carrés des taux de comptages d'une seule source (fixe) à des intervalles variables (souvent par l'utilisation d'une seconde source radioactive à des distances variables du détecteur). En utilisant l'incertitude de P à partir de la régression des moindres carrés, l'incertitude standard du taux de comptage est calculée en comparant les rapports de F_P pour une paire échantillon/ standard calculée en utilisant P , avec les rapports de F_P calculés en utilisant $P + u_P$, où u_P est l'incertitude dans la détermination de la constante de pileup P .

— *Insuffisance de l'extension en temps réel (pour les Systèmes de comptage conventionnels)*

Les systèmes de spectrométrie gamma conventionnels étendent le temps de comptage pour compenser le temps que le convertisseur analogique au numérique (ADC) du MCA était indisponible (temps-mort du système). Ceci ne corrige pas complètement les événements perdus dus à la désintégration radioactive parce que la probabilité d'observer un événement après la période originale de comptage est plus faible durant la période étendue. Cette perte peut être corrigée soit avec du matériel (systèmes sans perte ou zéro temps-mort), ou via logiciels. Si des corrections matérielles sont utilisées, aucune incertitude supplémentaire n'est nécessaire tant qu'il n'y a pas d'extension du temps de comptage.

Toutefois, si des corrections de logiciels sont utilisées, l'information : comment le temps-mort varie avec le temps, peut être nécessaire pour une correction et une évaluation d'incertitude précise. Puisque cette information (variation du temps-mort en fonction du temps) n'est généralement pas enregistrée par la plupart des systèmes de spectrométrie gamma, une solution exacte n'est souvent pas possible. Une discussion complète de ces effets en utilisant la spectrométrie gamma peut être trouvée dans *Soete et al.* [13]. Pour des fins de correction, les équations 2.5 et 2.6 traduisent les deux cas limites respectifs : le cas d'un seul radioisotope et le cas où le temps-mort est constant pendant toute la durée de comptage. La correction d'un radio-isotope unique est la correction maximale nécessaire pour pratiquement toutes les mesures AAN. La correction pour un temps-mort constant est la correction minimale nécessaire, s'approche rapidement de l'unité quand la demi-vie de l'isotope étudié dépasse largement l'intervalle de suivi. Cependant, lorsque l'intervalle de comptage s'approche ou dépasse la demi-vie de l'échantillon la correction du temps-mort constant peut sous-estimer les pertes. Les équations de correction des pertes de prolongation [13] utilisant un comptage conventionnel pour un seul radio-isotope et pour des temps-morts constants, sont données ci-dessous :

$$F_{\text{ltc(s)}} = \frac{e^{\lambda(t_c - t_L)} - 1}{\lambda(t_c - t_L)} \quad (2.5)$$

$$F_{\text{ltc(c)}} = \frac{(1 - e^{-\lambda t_L})(t_c)}{(1 - e^{-\lambda t_c})(t_L)} \quad (2.6)$$

Où : $F_{\text{ltc(c)}}$ = facteur de correction de l'inadéquation de la correction du temps réel (le ratio du taux de comptage "réel" par rapport au taux de comptage; t_c = horloge ou temps réel; t_L = temps actif et λ = constante de décroissance pour le nucléide soumis à l'enquête. Le Tableau 2.3 montre les différences pour les deux facteurs de correction pour les cas où le temps-mort est 20% et le temps de comptage est nominalement deux et quatre fois la demi-vie du radionucléide étudié, ^{28}Al ($t_{1/2} = 2, 24 \text{ min}$) dans ce cas.

Tableau 2.3 – Différences dans les corrections pour insuffisance de l'extension du temps actif dans le cas de ^{28}Al .

Temps actif(s) LT	Temps réel(s) RT	Temps mort(%) DT	Correction (Ci) pour radionucléide individuel	Correction (Cc) pour la constante du temps-mort	Rapport de Ci/Cc
300	360	20	1, 172	1, 119	1, 047
600	720	20	1, 385	1, 174	1, 179

Il y a presque une différence de 5% dans les facteurs de correction pour un temps-actif de 300s, et une différence de 18% pour un temps-actif de 600s. À moins que l'analyste n'ait enregistré séparément le temps-mort au début et/ou à la fin du comptage, il peut être difficile de déterminer quelle correction à appliquer. Cependant, si des intervalles de comptage plus courts sont utilisés, la différence entre les deux corrections devient plus petite, et donc le choix entre les deux est moins important. En règle générale, lorsque le temps d'horloge (réel) d'un comptage est inférieur à la moitié de la demi-vie du radionucléide étudié, la différence entre les corrections devient insignifiante sauf en cas d'application de la plus haute précision. Bien que les comptages plus courts entraînent des statistiques de comptages (pauvres) plus faibles, des comptages courts multiples peuvent fournir presque la même incertitude statistique qu'un comptage plus long sans se soucier du choix du facteur de correction à utiliser. Tableau 2.4 montre des données actuelles de mesure pour des comptages multiples du même échantillon et les valeurs des deux différents facteurs de correction pour ^{28}Al . Le premier comptage a été initié lorsque l'activité du ^{28}Al était approximativement la même que le pic maximum le plus proche, et l'échantillon a été compté pour le temps d'horloge 72s, un peu plus de 50% de la demi-vie du ^{28}Al . Comme le montre le tableau 2.1, la différence pour les deux facteurs de correction n'était que de 0,2%. En outre, puisque l'activité du ^{28}Al n'a pas dominé, et tous les autres sources d'activité ont eu des demi-vies plus longues, la moyenne des deux facteurs de correction était le plus approprié à utiliser. L'incertitude relative standard pour cette correction serait de 0,1% (la différence entre la correction utilisée et les deux conditions limites) divisé par la racine carrée de 6 (distribution triangulaire), ou 0,4%.

Tableau 2.4 – Corrections pour ^{28}Al dans des comptages multiples d'un échantillon de SRM 1633b (fly-ash) après une courte irradiation.

Décroissance (min)	Temps actif (s)	Temps d'horloge(s)	Temps mort(%)	Correction (Ci) pour radionucléide individuel	Correction (Cc) pour la constante du temps-mort	Rapport de Ci/Cc
19	60	72	17	1, 0316	1, 0297	1, 0019
21	120	134	10	1, 0370	1, 0327	1, 0041
24	300	319	6	1, 0506	1, 0371	1, 0130
31	900	937	4	1, 1018	1, 0394	1, 0601

Bien que la différence entre les deux facteurs de correction soit devenue significativement plus élevée pour les comptages ultérieurs, tant que l'activité de ^{28}Al contribue très peu à l'activité totale, la correction du temps-mort constant était appropriée, et les incertitudes pour cette correction étaient insignifiantes.

Un autre avantage de l'utilisation de comptages multiples plus courts (Au lieu d'un comptage plus long) est que les comptages multiples fournissent la possibilité d'effectuer des vérifications d'assurance de la qualité du pileup et l'insuffisance des corrections de prolongation du temps réel. Tableau 2.5 montre les résultats de fraction de masse pour *Al*, *V*, *Mn* et *Na* sur la base des comptages décrits dans le tableau 2.3 . Des données additionnelles pour *Mn* et *Na* sont également énumérées pour un cinquième comptage du même échantillon. *Mn* et *Na* ont tous les deux des demi-vies beaucoup plus longues que n'importe quel intervalle de comptage, donc le choix du facteur de correction pour l'extension en temps réel est insignifiant. Par conséquent, toute tendance dans les données pour *Mn* et *Na* comme la fonction du temps-mort serait due à un biais dans la correction *pileup*.

Tableau 2.5 – Validation des corrections relatives à l'empilement des impulsions et d'extension du temps actif. Données pour les comptages multiples d'un échantillon de SRM 1633b (fly ash) après une courte irradiation.

Comptage	Temps mort(%)	Temps actif (s)	Al (%) $t_{1/2} = 2, 24\text{min}$	V ($\mu\text{g/g}$) $t_{1/2} = 3, 75\text{min}$	Mn ($\mu\text{g/g}$) $t_{1/2} = 2, 58\text{h}$	Na($\mu\text{g/g}$) $t_{1/2} = 14, 9\text{h}$
N°1	17	60	14, 90±0, 101	305±7	130, 7±2, 1	2033±157
N°2	10	120	15, 03±0, 11	294±5	134, 2±1, 4	1930±77
N°3	6	300	14, 97±0, 13	291±5	132, 8±0, 8	1979±39
N°4	4	900	14, 48±0, 46	313±9	133, 9±0, 5	1994±23
N°5	3	600	—	—	133, 6±0, 7	1991±27
Chi carré réduit	—	—	0, 615	2, 089	0, 858	0, 196
Probabilité de dépassement	—	—	60, 50%	9, 90%	48, 80%	94, 10%

En observant les données relatives à ces éléments du Tableau 2.5, il est clair qu'il n'y a pas de tendance croissante ou décroissante. Il est souvent instructif de calculer la probabilité qu'un échantillon aléatoire de n points pris d'une distribution normale de moyenne principale $\bar{x}_w$ et d'écart $S_{\bar{x}}/(\sqrt{n})$ va dépasser la valeur observée du Chi-carré (χ^2) réduit [53] [54]. Les valeurs réduites du χ^2 pour *Mn* et *Na* dans le tableau 2.5 indiquent que toute variation peut être expliquée en comptant les statistiques seules. Parce que les demi-vies des isotopes utilisés pour *Al* et *V* sont relativement courtes, les corrections pour le pileup et l'extension du temps réel peuvent être à la fois significatifs et difficiles à séparer. Cependant, étant donné que le pileup affecte tous les pics d'un spectre avec le même degré, montré n'ayant aucun problème significatif pour *Mn* et *Na* dans ces données. Il ne présente aucun problème significatif pour les déterminations de *Al* et *V* indiqués dans le tableau 2.5. Ainsi, l'absence de tendance dans les données. Pour *Al* et *V*, combiné à des valeurs de χ^2 réduites indiquant que toutes les variations obser-

vées peuvent être expliquées uniquement par des statistiques de comptage (95% de confiance), confèrent beaucoup de confiance aux corrections appliquées.

2.7.4 Corrections et incertitudes pour les interférences gamma

Bien qu'il existe de nombreuses lignes gamma sans interférences, il existe plus d'interférences que la plupart des praticiens AAN s'attendent. Des exemples d'interférences observées dans trois matériaux géologiques sont énumérés dans le tableau 2.6.

Tableau 2.6 – Erreurs typiques qui seraient observées dans trois matériaux de référence certifiés géologiques si les interférences n'étaient pas corrigées.

Radio-nucléide	Énergies (keV)	Interfèrent	Argile SRM 279	Rivière Buffalo Séd, SRM 2704	Cendres volantes SRM 1633
^{46}Sc	1120, 5	^{182}Tl	0, 50%	0, 40%	0, 40%
^{52}Cr	320, 1	^{147}Nd	1%	0, 30%	0, 10%
^{51}Cr	320, 1	$^{177m+g}\text{Lu}$	0, 50%	0, 20%	0, 05%
^{65}Zn	1115, 6	^{160}Tb	3%	1%	2%
^{75}Se	136	^{181}Hf	>100%	500%	90%
^{75}Se	264, 7	^{182}Tl	>100%	150%	30%
^{122}Sb	564, 2	^{76}As	5%	2%	7%
^{122}Sb	564, 2	^{134}Cs	15%	4%	2%
^{131}Ba	496, 3	^{103}Ru	—	50%	40%
^{153}Sm	103, 1	^{239}Np	1, 50%	2%	3%
^{153}Sm	103, 1	^{233}Pa	0, 50%	2%	0, 30%
^{153}Gd	103, 2	^{233}Pa	60%	70%	40%
^{177}Lu	208, 4	^{239}Np	3%	2%	10%
^{198}Au	411, 8	^{152}Eu	100%	100%	1000%

Cependant, les nucléides interférents ont rarement (si ce n'est jamais) des demi-vies similaires à celle du nucléide étudié. Par conséquent, la validité des résultats de mesures répliquées, réalisées à différents intervalles de décroissance, permet de s'assurer davantage de l'absence d'interférences importantes non reconnues, puisque la contribution relative des nucléides interférents augmenterait ou diminuerait avec la diminution du temps de décroissance selon que la demi-vie du nucléide interférent était plus grande ou plus petite que le nucléide étudié.

De même, dans les cas où des corrections d'interférence sont appliquées, la validité des résultats obtenus à partir des mesures répliquées, effectuées en différents temps de décroissance assure que les interférences ont été corrigées avec précision. Les auteurs ont observé environ 40

interférences importantes, énumérées dans le tableau 2.7. Cependant aucun de ces radio-isotopes n'avait une demi-vie semblable à celle de l'isotope étudié [55].

Tableau 2.7 – Interférences observées dans plusieurs matrices communes.

Radionucléide	Energie (keV)	Interfèrent	Energie (keV)	Pic indicateur ⁶	Taux d'interférence typique de l'indicateur ⁷	Plage d'erreurs relative ⁸	Commentaire ⁵
Matériaux Géologique							
⁴⁶ Sc	1120, 5	¹⁸² Ta	1121, 3	1121, 4	1, 4	0 – 75%	—
⁵¹ Cr	320, 1	¹⁴⁷ Nd	319, 4	531	0, 2	0, 5 – 1000%	a , b
⁵¹ Cr	320, 1	^{177m+g} Lu	321, 3	208, 4	0, 02	0, 2 – 100%	a
⁵¹ Cr	320, 1	^{177m} Lu	319	208, 1	0, 001	0 – 2%	a
⁶⁵ Zn	1115, 6	¹⁶⁰ Tb	1115, 1	879, 4	0, 05	1 – 10%	—
⁷⁵ Se	264, 7	¹⁸² Ta	264, 1	222, 1	0, 4	10 – 200%	—
⁷⁵ Se	136	¹⁸¹ Hf	136, 5 ⁹	133, 1	0, 15	20 – 500%	c
^{110m} Ag	657, 8	¹⁵² Eu	656, 5	1408, 1	0, 01	0 – 20%	—
¹²² Sb	564, 2	⁷⁶ As	563, 2	559, 1	0, 03	3 – 15%	—
¹²² Sb	564, 2	¹³⁴ Cs	563, 2	795, 8	0, 13	5 – 30%	b
¹³¹ Ba	496, 3	¹⁰³ Ru ¹⁰	497	—	—	2 – 100%	d, b
¹⁵² Eu	964	^{152m} Eu	963, 5	841, 6	0, 8	0 – 100%	c
¹⁵³ Sm	103, 1	²³⁹ Np	103, 7	106, 37	0, 8	0, 5 – 5%	—
¹⁵³ Sm	103, 1	²³³ Pa	103, 8	312	0, 03	0, 2 – 3%	b
¹⁵³ Sm	103, 1	¹⁵³ Gd	103, 2	None	—	0, 1 – 100%	a , b
¹⁵³ Gd	103, 2	²³³ Pa	103, 8	312	0, 03	50 – 500%	—
¹⁷⁷ Lu	208, 4	²³⁹ Np	209, 8	106, 3	0, 1	1 – 20%	—
¹⁷⁷ Lu	208, 4	¹⁸³ Ta	209, 9	246, 4	0, 1	0 – 1%	—
¹⁹⁸ Au	411, 8	¹⁵² Eu	411	1408, 1	0, 4	10 – 100%	b
Botanique							
⁵¹ Cr	320, 1	¹⁴⁷ Nd	319, 4	531	0, 2	5 – 100%	c
⁷⁵ Se	136	¹⁸¹ Hf	136, 55	133, 1	0, 15	10 – 50%	c
⁷⁵ Se	264, 7	¹⁸² Ta	264, 1	222, 1	0, 4	5 – 30%	
^{110m} Ag	657, 8	¹⁵² Eu	656, 5	1408, 1	0, 01	10 – 1000%	—
¹¹³ Sn	391, 7	¹⁶⁰ Tb	392, 8	298, 6	0, 03	100 – 1000%	—
¹²² Sb	564	⁷⁶ As	562, 8	559, 1	0, 01	1 – 10%	—
¹²² Sb	564	¹⁵² Eu	564	1408, 1	0, 3	0 – 5%	b
¹⁵³ Sm	103, 1	²³⁹ Np	103, 7	106, 3 ¹¹	0, 8	1 – 10%	—

Radionucléide	Energie (keV)	Interfèrent	Energie (keV)	Pic indicateur	Taux d'interférence typique de l'indicateur	Plage d'erreurs relative	Commentaire
^{198}Au	411, 8	^{152}Eu	411	1408, 1	0, 4	1 – 10%	<i>b</i>
^{203}Hg	279, 1	^{75}Se	279, 5	264, 7	0, 4	20 – 100%	<i>b</i>
Tissu Biologique							
^{46}Sc	1120, 5	^{182}Ta	1121, 3	1121, 4	1, 4	0 – 75%	—
^{64}Cu	511	^{24}Na	511 ¹²	1386	0, 1	10 – 500%	
^{64}Cu	511	^{65}Zn	511	1115	0, 1	0 – 5%	—
^{122}Sb	564	^{76}As	562, 8	559, 1	0, 01	1 – 10%	—
^{122}Sb	564, 2	^{134}Cs	563, 2	795, 8	0, 13	1 – 20%	—
^{122}Sb	602, 7	^{134}Cs	604, 6	795, 8	1	1 – 300%	—
^{203}Hg	279, 1	^{75}Se	279, 5	264, 7	0, 4	20 – 100%	—
Interférences diverses							
^{60}Co	1173, 2	^{82}Br	1173, 4 ¹³	554, 3	<i>Variable</i>	—	—
^{60}Co	1332, 5	^{82}Br	1339, 8	554, 3	<i>Variable</i>	—	—
^{64}Cu	511	<i>Cosmique</i> ¹⁴	511	1460	5	—	—
^{64}Cu	511	β^+, CP ¹⁵	511	<i>Divers</i>	<i>Variable</i>	—	—
^{80}Br	<i>Tout</i>	^{80m}Br	<i>Tout</i>	$T_{1/2}$	<i>Variable</i>	—	—
^{85}Sr	513, 9	β^+, CP	511	<i>Divers</i>	<i>Variable</i>	—	—
^{116m}In	1293, 3	^{41}Ar	1293, 6	<i>Aucun</i>	—	—	—
^{140}La	487	^{131}Ba	486, 5	496, 3	0, 04	—	—
^{181}Hf	133, 1	^{131}Ba	133, 6	496, 3	0, 1	—	—
^{197}Hg	68, 6; 80, 2	^{196}Au	69, 0; 80, 1	411, 8	0, 04; 0, 02	—	—
^{199}Au	158, 3	^{47}Sc	159, 4	<i>Aucun</i>	—	—	—
^{199}Au	298, 2	^{177}Lu	208, 4	<i>Aucun</i>	—	—	—

5. Codes de commentaire

6. Pic-indicateur nominalement propre utilisé pour identifier les nucléides interférents

7. Rapport typique du pic d'interférence et le pic indicateur observé pour le nucléide interfèrent

8. Plage relative d'erreurs observée si les interférences ne sont pas corrigées

9. Comprend des pics de ^{181}Hf d'intensité égale à 136, 3 et 136, 9 keV

10. Produit de fission

11. Comprend des pics d'intensité égale de ^{239}Np à 106, 1 et 106, 5 keV

12. Résultat d'événements de production de paires, qui se produisent souvent dans la protection (plomb) du détecteur. D'autres sources de rayons gamma de haute énergie peuvent également interférer

13. Les interférences de ^{82}Br à ^{60}Co sont des pics de sommation ; Les rapports des rayons γ varient en fonction de la géométrie de comptage

14. Bien que le pic de 1460 keV soit de ^{40}K , il peut être utilisé comme indicateur de rayonnement naturel

15. Résultant d'événements de création de paires, normalement dans la protection du détecteur Pb

- a : Plusieurs pics souvent présents et peuvent être difficiles à intégrer avec précision.
- b : Le nucléide interférent a une demi-vie significativement plus longue que le nucléide analyte. Des intervalles de décroissance plus courts donnent souvent de meilleurs résultats.
- c : Le nucléide interférent a une demi-vie significativement plus courte que le nucléide analyte. Meilleurs résultats obtenus après décroissance supplémentaire.
- d : Ne peut pas être soustrait avec précision par la technique du rapport d'interférence. Suivre la demi-vie ou utiliser une autre méthode de correction.

La correction des interférences peut être relativement simple lorsqu'elles sont reconnues, puisque la plupart des nucléides potentiellement interférents ont des rayons gamma supplémentaires qui peuvent être utilisés pour l'identification et la correction. Par exemple, dans de nombreux échantillons géologiques et environnementaux, ^{182}Ta interfère souvent avec la détermination de Se lors de l'utilisation du rayon gamma 265keV de ^{75}Se . La présence de ^{182}Ta est indiquée par la présence d'un rayon gamma de 1221keV dans le spectre inconnu.

Un rapport d'interférence pour les lignes $265/1221\text{keV}$ est obtenu en comptant une source ^{182}Ta (avec les mêmes caractéristiques d'atténuation gamma) sur le système de comptage utilisé pour les échantillons inconnus. Le nombre de coups sous le pic de 1221keV dans chaque échantillon inconnu est multiplié par le taux d'interférence de ^{182}Ta $265/1221\text{keV}$ pour déterminer la contribution de ^{182}Ta dans le pic 265keV . Cette interférence est ensuite soustraite du pic brut de 265keV pour obtenir l'aire nette du pic ^{75}Se . L'incertitude absolue (en chiffres) de la contribution à l'interférence est obtenue en multipliant l'incertitude absolue du pic 1221keV de chaque échantillon inconnu par l'incertitude du taux d'interférence, qui est déterminée en combinant en quadrature les statistiques de comptage (relatif) des pics 265keV et 1221keV utilisés pour déterminer l'interférence. L'incertitude absolue de l'écart corrigé (net) du pic 265keV de ^{75}Se est déterminée en combinant en quadrature l'incertitude de comptage absolue du pic 265keV avec l'incertitude absolue de la contribution à l'interférence.

Cette méthode de correction d'interférence et d'évaluation de l'incertitude dépend de l'échantillon et de la source ^{182}Ta ayant les mêmes caractéristiques d'atténuation des rayons gamma. Ceci est particulièrement important lorsque l'énergie du rayon gamma concerné (dans ce cas 265keV) et le rayon gamma indiquant l'interférence (dans ce cas 1221keV) est relativement éloignée. Bien qu'une source ^{182}Ta avec des caractéristiques correspondantes à l'échantillon puisse être aisément préparée par pipetage et mélange d'un liquide ^{182}Ta sur le matériau d'échantillon non irradié (de même taille et de même forme que les échantillons réels étudiés), il est souvent plus commode de choisir un indicateur d'interférence avec une énergie proche du rayon gamma qui nous intéresse. Par exemple, ^{182}Ta a un rayon gamma de 222keV , en plus des gammas 265keV et 1221keV , qui est assez proche du pic 265keV pour minimiser les différences d'atténuation gamma pour la plupart des matériaux. Bien que ^{82}Br ($t_{1/2} = 35\text{h}$) a un rayon gamma de 222keV , la plupart des mesures de Se via ^{75}Se sont effectuées après une période de décroissance d'au moins un mois (20 demi-vie de ^{82}Br), période au cours de laquelle essentiellement tous les rayons gamma du ^{82}Br 222keV sont partis.

Dans les cas où une interférence est possible (ou prévue), mais l'indicateur des rayons gamma n'est pas observé, une valeur limite supérieure (à 95% de niveau de confiance) pour l'indicateur gamma dans le spectre concerné peut être calculée [32], et une limite supérieure d'interférence peut être calculée par l'intermédiaire d'un taux d'interférence déterminé comme ci-dessus. Une approche possible pourrait ne pas faire de correction et utiliser une incertitude standard égale à $\frac{1}{2}$ de la valeur limite supérieure. Une alternative serait de soustraire la moitié de la valeur limite supérieure de la valeur du pic potentiellement interféré. En supposant une distribution uniforme, l'incertitude standard serait alors égale à $\frac{1}{2}$ de la valeur limite supérieure divisée par $\sqrt{3}$.

2.7.5 Corrections et incertitudes concernant les différences d'efficacité de comptage

L'équation de mesure AAN (équation (2.1)) énumérée précédemment comprend un facteur (R_e) pour tenir compte de toute différence d'efficacité de comptage entre les échantillons et les standards. Bien que ce ratio soit généralement très proche de l'unité, deux facteurs peuvent contribuer à des écarts importants. Le premier facteur résulte de différences dans la taille physique et la forme des échantillons, et peut être très significatif puisque la diminution du rayonnement est inversement proportionnelle au carré de la distance. En fait, ignorant ces effets est fréquemment une source commune de biais significatif pour la mesure AAN. Le second facteur résulte des différences des fractions de rayons gamma absorbés à l'intérieur de l'échantillon et le standard, en raison des différences de taille, de forme et de composition.

2.7.5.1 Effets résultants des différences physiques de taille et de forme des échant. par rapport aux stand.

Puisque le rayonnement diminue en fonction de l'inverse de la distance au carré, les différences minimales de taille et de forme des échantillons par rapport aux standards, peuvent provoquer des variations importantes dans la fraction du rayonnement atteignant le détecteur, et conduire par conséquent à des résultats décalés (biaisés) si ces différences minimales sont ignorées. Bien qu'il soit possible de calculer les différents angles solides des échantillons/ standards par rapport à la région active du détecteur, la majeure partie de cet effet est due largement aux différences d'épaisseur des échantillons/standards. Un simple modèle basé sur la distance moyenne entre les échantillons/standards et le détecteur, fonctionne bien pour les échantillons et les standards petits et légers qui sont à plusieurs *cm* du détecteur. C'est-à-dire que les échantillons et les standards sont plus petits à environ la moitié du diamètre du détecteur, et qui ont une épaisseur inférieure à 0,5 *cm*. En utilisant ce modèle, la distance moyenne jusqu'à la zone active du détecteur est la somme de la moitié de l'épaisseur de l'échantillon/ standard, la distance de la surface de l'échantillon/ standard à la surface du détecteur, et la distance estimée entre la surface du détecteur et la distance moyenne entre la surface du détecteur et le milieu de la distance

sous-jacente, où se produit l'interaction entre les rayons gamma et le crystal. Une valeur de 3cm fonctionne bien entre la surface du détecteur à la distance d'interaction pour la plupart des détecteurs coaxiaux Ge (HP) modernes avec des efficacités relatives d'environ 25%, à 100%, d'un détecteur Na(Tl)I de $7,62\text{cm} \times 7,62\text{cm}$ de dimension. La valeur de 4cm entre la surface et la zone d'interaction marche bien pour la plupart des détecteurs coaxiaux d'efficacités relatives d'environ 25%, et une valeur de 4cm peut être plus convenable pour des détecteurs avec des efficacités dépassant 100%.

Cependant, pour des distances (échantillon-détecteur) typique de comptage pour les échantillons activés, la valeur choisie n'a qu'un faible effet sur le calcul de correction d'efficacité, obtenue en calculant le carré du rapport des distances moyennes au détecteur des échantillons et des standards. Par exemple, supposons que les échantillons ont une épaisseur de $0,5\text{cm}$, les standards ont une épaisseur de $0,2\text{cm}$, les mesures de la spectrométrie gamma sont effectuées à 10cm de la surface du détecteur, et l'interaction moyenne du rayonnement gamma se trouve à 3cm sous la surface externe (end-cap) du détecteur. Ensuite, la distance moyenne pour les échantillons est de $10 + (0,5/2) + 3\text{cm}$ ou $13,25\text{cm}$ et la distance moyenne pour les standards est de $10 + (0,2/2) + 3\text{cm}$ ou $13,10\text{cm}$. Les taux de comptage des échantillons doivent être multipliés par $(13,25/13,10)^2$, ou $1,02303$ pour tenir compte des différences d'épaisseur. Estimant l'incertitude standard de 1cm (33%) pour la profondeur d'interaction, la correction deviendrait $(12,25/12,10)^2$ ou $1,02495$. L'incertitude relative pour la correction d'efficacité serait la différence entre les deux Corrections, ou $0,19\%$.

2.7.5.2 Corrections pour l'auto-absorption des rayons gamma

Un avantage majeur de l'AANI est que le sondage (neutron) et les rayonnements indicateurs (gamma) sont très pénétrants. L'autoprotection neutronique, généralement le terme le plus large, a été discuté dans la section 2.4.1. La plupart des rayons gamma employés dans AANI ont des énergies de l'ordre de 1MeV . A cette énergie, la transmission à travers 1mm de bois, d'os, et d'acier est de 99,6%, 99,3% et 96%, respectivement.

L'absorption des rayons gamma est strictement exponentielle en fonction de l'épaisseur. Pour un faisceau fin traversant un matériau de densité $\rho(g/cm^3)$ et d'épaisseur $T(\text{cm})$, le facteur d'atténuation $\frac{I_{in}}{I_{out}} = \exp\left(-\frac{\mu}{\rho}\rho T\right)$, où le coefficient d'atténuation de masse μ/ρ (de dimension cm^2/g) dépend de la composition. Avec I_{in} et I_{out} représentent les intensités initiales et finale respectivement. Les valeurs de μ/ρ pour de nombreux éléments et matériaux composites ont été tabulées [56], mais sont le plus commodément calculées par le programme XCOM largement diffusé (M.J. Berger, 1998). Pour calculer l'atténuation pour une source finie, l'intégration sur le volume d'échantillon est nécessaire. Bien que dans le cas général, un calcul Monte Carlo peut être nécessaire, de nombreuses géométries étudiées ont été résolues analytiquement [48].

Pour la géométrie la plus courante dans AANI, un plan homogène d'épaisseur T (en cm), le

facteur l'autoabsorption est :

$$F_{\gamma} = \frac{1 - e^{-\mu T}}{\mu T} \quad (2.7)$$

Où la densité ρ est incorporée dans le coefficient d'atténuation linéaire μ . L'incertitude standard peut être difficile à évaluer quantitativement, puisque μ/ρ dépend de la composition qui, pour l'échantillon n'est pas complètement connue. Cependant, les éléments majeurs peuvent être estimés souvent dans des limites raisonnables et les éléments mineurs ont relativement un effet faible sur l'auto-absorption. En outre, varier la taille de l'échantillon donnera des informations empiriques sur l'importance de cet effet. Puisque la physique de XCOM est si complète, et le programme est largement accepté, l'incertitude de composition domine souvent. Il est donc généralement raisonnable d'estimer l'incertitude relative 5% à 10% de correction en fonction de la mesure dans laquelle les constituants majeurs de l'échantillon sont connus.

Parce que le rayonnement gamma est très pénétrant, les praticiens AAN ne considèrent souvent pas les effets de l'absorption des rayons gamma. Cependant, un biais significatif peut être introduit dans plusieurs cas en ignorant cet effet, surtout lorsque les échantillons et les standards ont des différences significatives de densité, d'épaisseurs et/ou de contenus en éléments à Z élevés (c'est-à-dire les fractions massiques supérieures à environ plusieurs g/kg). Il est donc important de se familiariser avec des méthodes pour calculer les facteurs d'autoabsorption à rayons gamma. Une méthode est d'utiliser la ressource Web NIST pour XCOM à [57] (dernière consultation avril 2020). Tout d'abord, utilisez le "Formulaire de recherche de base de données" pour calculer les coefficients d'atténuation de la masse des rayons gamma pour chaque rayon gamma pour le matériau étudié. Les éléments, les composés ou les mélanges peuvent être spécifiés dans le formulaire de recherche. Les coefficients d'atténuation de la masse sans diffusion cohérente doivent être utilisés pour la plupart des matrices ; Cependant, les coefficients d'atténuation de masse totale avec diffusion cohérente (c'est-à-dire, y compris la diffraction) pourraient être plus appropriés pour les monocristaux.

L'étape suivante consiste à calculer le facteur d'atténuation des rayons gamma pour chaque énergie dans les échantillons et les standards. Les coefficients d'atténuation de masse doivent être multipliés par la densité de l'échantillon ou le standard pour déterminer chaque coefficient d'atténuation (μ). Des exemples de correction d'autoabsorption gamma calculée pour les granulés de 2mm d'épaisseur de certaines matrices sont donnés dans le tableau 2.8. Les corrections sont appliquées en divisant l'intensité gamma observée par la valeur du facteur de correction.

Tableau 2.8 – Facteurs de correction d’autoabsorption des rayons gamma calculés pour des pastilles de 2 mm d’épaisseur (avec $\rho = 1$) pour certaines matrices et pour des énergies typiques.

<i>Energie</i> (keV)	Matrices				
	<i>SiO₂</i>	Cellulose <i>CH₂O</i>	Cellulose 99,9% avec 0,1% <i>Pb</i>	<i>Al₂O₃</i>	<i>Na₂SiO₃</i>
100	0,9844	0,9844	0,9839	0,985	0,9849
300	0,9895	0,9888	0,9887	0,99	0,9896
500	0,9914	0,9908	0,9908	0,992	0,9915
1000	0,9937	0,9933	0,9933	0,994	0,9938
1500	0,9948	0,9945	0,9945	0,995	0,9949

Il faut noter qu’il y a une très petite différence entre les facteurs de correction pour ces matrices communes tant que les épaisseurs et les densités sont les mêmes ; Donc le rapport entre les échantillons et les standards serait très proche de l’unité. Un petit mélange d’éléments lourds, par exemple 0,1% *Pb*, fait peu de différence. Toutefois, lorsqu’il y a des différences dans la densité ou l’épaisseur, un biais significatif peut se produire.

Par exemple, le tableau 2.9 montre les différences dans les facteurs de correction d’auto-absorption et les biais possibles pour des échantillons de *SiO₂* par rapport aux solutions standards diluées pipetées sur de la cellulose (C’est-à-dire *CH₂O*).

Tableau 2.9 – Comparaison des corrections d’auto-absorption calculées pour des pastilles de 2mm d’épaisseur de *CH₂O*, de densité $\rho = 1$ par rapport à des pastilles de 2 mm d’épaisseur de *SiO₂*, $\rho = 2$

Énergie (keV)	Matrice <i>CH₂O</i> Densité = 1	Matrice <i>SiO₂</i> Densité = 2	Rapport des corrections pour <i>CH₂O</i> vs <i>SiO₂</i>	Biais résultant
100	0,9844	0,9691	1,0158	1,60%
300	0,9888	0,9791	1,0099	1,00%
500	0,9908	0,9828	1,0081	0,80%
1000	0,9933	0,9874	1,0060	0,60%
1500	0,9945	0,9897	1,0048	0,50%

2.7.6 Biais et incertitude potentiels dus à la méthode d'intégration des pics

La méthode utilisée pour intégrer les zones de pic de rayon gamma peut mener des biais à la mesure si la taille, la forme et les régions de fond du pic sont significativement différentes pour les échantillons et les standards. Bien que ce biais soit typiquement négligeable pour de grands pics bien résolus, il est important de chercher les biais d'intégration potentiels pour les pics multiplets, les petits pics et les pics recouverts dans des régions du bruit-de-fond complexes. Souvent, les pics pour le comparateur standard sont bien définis, sans bruit-de-fond compliqué et sans interférences proches qui peuvent affecter la forme du pic, alors que les pics pour les échantillons peuvent être beaucoup plus difficiles à intégrer.

Une méthode qui peut être utilisée pour estimer l'incertitude avec la détermination des zones de pic, implique la comparaison des différentes méthodes d'intégration de pic pour les singuliers, y compris : recherche de pic, sommation canal par canal, traitement «fit» standard approprié de pics utilisant des routines automatiques. Des traitements interactifs appropriés des pics dont les limites et les numéros de canaux utilisés pour la soustraction du bruit de fond sont sélectionnés manuellement. Il est souvent utile de faire varier le nombre et le bruit de fond des canaux pour observer des effets potentiels. Si des différences significatives sont observées entre les échantillons et les standards, la méthode d'intégration la plus appropriée devrait être choisie pour l'utiliser, et une incertitude-type estimée à partir de l'écart entre le rapport échantillon/ standard de la méthode sélectionnée à celui d'autres méthodes. Dans les cas où une méthode est évidemment plus appropriée que les autres, il peut être approprié de supposer une distribution triangulaire et diviser cette écart par $\sqrt{6}$ pour déterminer l'incertitude standard. Dans d'autres cas, une répartition rectangulaire/uniforme peut être plus appropriée, et l'écart de la méthode choisie des autres méthodes est divisé par $\sqrt{3}$.

L'évaluation de l'incertitude des méthodes d'intégration de pic pour les multiplets peut être plus difficile car des méthodes d'intégration moindres sont disponibles. Cependant, la comparaison de deux ou plusieurs routines de traitement de pic est essentielle, à moins que l'incertitude estimée puisse être obtenue par d'autres procédés, par exemple l'évaluation des résidus. Beaucoup de systèmes disponibles dans le commerce affichent les résidus. Alternativement, d'autres modèles mathématiques peuvent être utilisés. Les différents paramètres utilisés pour les systèmes appropriés devraient être modifiés pour observer les effets des petits changements sur le pic et le bruit de fond du canal. Une routine interactive d'ajustement de pic est particulièrement utile par le fait que les effets de petits changements dans le pic et la sélection du bruit de fond du canal montrent comment la surface nette du pic change. Encore une fois, il est important de comparer les rapports échantillon/ standard des différentes méthodes d'estimation de l'incertitude-type.

2.8 Méthodes d'évaluation des budgets complets d'incertitude pour AAN

2.8.1 Considérations générales sur l'approche manuelle

Une fois que les incertitudes standards pour chaque composante d'incertitude ont été évaluées, une incertitude combinée peut être déterminée manuellement à partir de l'équation de mesure (équation (2.8)).

$$m_{x(inc)} = m_{x(std)} \frac{A_{0(inc)}}{A_{0(std)}} R_{\theta} R_{\Phi} R_{\sigma} R_{\epsilon} - \text{blanc} \quad (2.8)$$

Notons que $m_{x(inc)}$ et $m_{x(std)}$ sont les masses de l'élément étudié dans l'échantillon et le standard. Si des fractions de masse sont souhaitées, l'équation devient :

$$w_{x(inc)} = \frac{w_{x(std)} m_{std}}{m_{inc}} \frac{A_{0(inc)}}{A_{0(std)}} R_{\theta} R_{\Phi} R_{\sigma} R_{\epsilon} - \frac{\text{blanc}}{m_{inc}} \quad (2.9)$$

Où $w_{x(inc)}$ et $w_{x(std)}$ sont les fractions de masse de l'élément x dans l'échantillon et le standard. (m_{inc}) et (m_{std}) sont les masses (totales) de l'échantillon et le standard, et blanc/m_{inc} est le blanc relatif.

Comme A_0 est déterminé à partir d'une équation complexe, l'incertitude du rapport A_0 des inconnues et des standards doit d'abord être évaluée à partir des incertitudes standards de chaque terme dans l'équation A_0 .

$$A_0 = \frac{\lambda C e^{\lambda t_r}}{(1 - e^{\lambda t_L})(1 - e^{\lambda t_i})} f_p f_{ltc} \quad (2.10)$$

La méthode la plus simple pour combiner les incertitudes pour les termes de l'équation A_0 (équation (2.10)) est d'augmenter ou de diminuer chaque paramètre (individuellement) par son incertitude standard et d'évaluer l'effet relatif sur le rapport des A_0 échantillon /standard. Dans de nombreux cas, il est approprié d'utiliser la valeur moyenne des échantillons par rapport aux standards.

Ces effets relatifs sont alors combinés en quadrature pour établir l'incertitude relative du rapport des A_0 . Cette incertitude relative (incertitude relative du rapport A_0) est ensuite combinée en quadrature avec les incertitudes relatives des autres termes (sauf pour le blanc) dans l'équation de mesure (équation (2.8)), et converti en une incertitude absolue. Cette incertitude absolue (calculée à partir des incertitudes de tous les termes sauf le blanc) est alors combinée en quadrature avec l'incertitude absolue du blanc pour établir l'incertitude standard combinée.

Alternativement, un terme $(1 - \text{blanc}/m_{inc})$ peut être substitué à la soustraction de blanc relatif dans l'équation de la fraction de masse (équation (2.9)) et une incertitude-type est évaluée pour $(1 - \text{blanc}/m_{inc})$. Cela rend toutes les opérations multiplicatives, permettant une combinaison en quadrature de toutes les incertitudes relatives standards dans cette forme d'équation

de mesure (équation (2.11))

$$w_{x(inc)} = \frac{w_{x(std)}m_{std}}{m_{inc}} \frac{\left(\frac{A_{0(inc)}}{A_{0(std)}}\right)}{R_{\theta}R_{\Phi}R_{\sigma}R_{\epsilon}} \left(1 - \frac{blanc}{m_{inc}}\right) \quad (2.11)$$

2.8.2 Approche de la Feuille de calcul de Kragten (pour un seul échantillon et un seul standard) Considérations générales

Lorsqu'une équation de mesure $f(x_1, x_2, \dots, x_n)$ est compliquée, calculer la propagation des incertitudes peut nécessiter des compétences considérables en calcul pour construire toutes les dérivées requises. Kragten [58] a proposé une méthode de tableur simple dans laquelle les incertitudes standard Δx remplacent les dérivées dx . Cette procédure numérique est particulièrement utile pour étudier la sensibilité des sources d'incertitude sur le résultat final [59]. La procédure Kragten est appliquée à la forme la plus simple de l'équation AANI, dans laquelle la fraction de masse w_x est calculée à partir de l'équation fondamentale de mesure.

Le calcul de w_x est effectué cinq fois, une fois avec les quatre variables comme ils ont été mesurées et ensuite avec chaque paramètre incrémenté par une seule incertitude standard. L'examen des quatre contributions de variance permet d'identifier clairement le facteur dominant dans l'incertitude globale liée à l'échantillon inconnu, comme il se doit dans une mesure bien conçue. Les calculs des incertitudes de la valeur A_0 , aussi bien pour l'échantillon que pour le standard, sont approchés d'une manière similaire, commodément sur des pages séparées de la feuille de calcul. Dans cette version de l'équation A_0 , il existe sept paramètres. Le calcul est donc effectué huit fois. L'incertitude dans A_0 provient en générale des statistiques de comptage de l'échantillon.

Pour plus de commodité dans l'identification des sources d'incertitude les plus importantes dans un processus analytique, la méthode de Kragten présente plusieurs inconvénients. Les erreurs de compensation et les autres types de covariance sont ignorés, et la conception expérimentale implicitement modélisée (une variable à la fois) n'est pas la plus efficace pour l'optimisation d'une expérience multivariée. Lorsqu'un grand nombre de paramètres est impliqué, ou lorsque plusieurs échantillons et standards sont impliqués, les feuilles de calcul deviennent lourdes. La méthode est discutée dans le manuel de qualité Eurachem [60]. Une valeur d'incertitude détaillée pour K_0 -AAN a été construite par cette procédure [61].

2.8.3 Approche par dérivées partielles (pour un échantillon et un standard)

2.8.3.1 Calcul de l'incertitude

L'incertitude standard combinée d'une quantité donnée, le mesurande y , est l'effet de toutes les incertitudes des variables sur l'incertitude de la fonction de mesure basée sur eux. Ainsi,

l'incertitude standard combinée de y , $u_c(y)$, est calculée en termes de composantes incertitudes, $u(x_i)$:

$$u_c(y(x_1, \dots, x_n)) = \sqrt{\left(\frac{\delta y}{\delta x_i}\right)^2 \left(u(x_i)\right)^2} \quad (2.12)$$

Où $y(x_1, x_2, \dots, x_n)$ est une fonction de plusieurs paramètres $x_1, x_2, \dots, x_n$.

La contribution de chaque variable n'est que le carré de l'incertitude exprimée sous l'écart-type multiplié par le carré de la dérivée partielle associée.

L'équation ci-dessus (2.12) n'est valide que si les grandeurs x_i sont indépendantes (non corrélées), la distribution de chaque x_i est une distribution de Gauss, et $u(x_i) \ll x_i$. Dans la plupart des cas, l'équation (2.12) est utilisée même si les restrictions susmentionnées ne sont pas remplies. (Écarts des distributions des paramètres de la distribution gaussienne ne sont pas assez important. Selon le théorème de la limite centrale des statistiques, la distribution des valeurs de la quantité dérivée s'y approche de la distribution gaussienne quand le nombre de grandeurs individuelles x_i augmente, indépendamment des détails de la distribution.)

L'incertitude élargie u est obtenue en multipliant l'incertitude standard combinée par un facteur de couverture approprié k_a . La valeur inconnue du mesurande est située dans l'intervalle $y \pm u$ avec un niveau de confiance d'environ α .

L'application de ce calcul à une formule d'activation légèrement modifiée

$$w_{x(inc)} = \left(w_{x(std)} \frac{(A_{0(inc)})}{(A_{0(std)})} \times R_\theta R_\Phi R_\sigma R_\epsilon - B \right) \times \frac{m_{std}}{\alpha_{inc} m_{inc}} \quad (2.13)$$

$$u_c = f\left(w_{x(std)}, A_{0(inc)}, A_{0(std)}, R_\theta, R_\Phi, R_\sigma, R_\epsilon, B, m_{inc}, m_{std}, \alpha_{inc}\right) \quad (2.14)$$

$$\begin{aligned} u_{w_{x(inc)}}^2 &= \left(\frac{\delta f(A_{0(inc)}, A_{0(std)}, R_\theta, R_\Phi, R_\sigma, R_\epsilon, m_{std}, m_{inc}, \alpha_{inc})}{\delta w_{x(std)}} \right)^2 \left(u_{w_{x(std)}}^2 \right) \\ &+ \left(\frac{\delta f(w_{x(std)}, A_{0(inc)}, A_{0(std)}, R_\theta, R_\Phi, R_\sigma, R_\epsilon, m_{std}, m_{inc}, \alpha_{inc})}{\delta A_{0(std)}} \right)^2 \left(u_{A_{0(std)}}^2 \right) \\ &+ \dots \end{aligned} \quad (2.15)$$

Pour le cas :

$$A_0 = \frac{C e^{-\lambda t_r}}{1 - e^{-\lambda t_L}} \quad \text{avec} \quad f_{t_L} = \frac{\lambda e^{-\lambda t_L}}{1 - e^{-\lambda t_L}}$$

L'incertitude combinée standard deviendra :

$$\left(\frac{u_{A_0}}{A_0} \right)^2 = \left(\frac{u_C}{C} \right)^2 + \left(\frac{u_\lambda}{\lambda} \right)^2 \left(1 + \lambda t_d - t_L \cdot f_{t_L} \right)^2 + u_{t_r}^2 \lambda^2 + u_{t_r}^2 f_{t_L}^2 \quad (2.16)$$

2.8.3.2 Quantification de l'incertitude

Les composantes d'incertitude mentionnées ci-dessus ne contribuent pas toutes de manière significative à l'incertitude combinée. Une évaluation initiale doit être effectuée pour identifier les incertitudes pertinentes conformément à l'expérience qui doit être aussi évaluée. Par exemple, s'agit-il d'une mesure individuelle ou d'une série de mesures similaires qui seront combinées en un seul résultat. Le tableau 2.10 donne le calcul de l'incertitude combinée d'une mesure unique d'un échantillon inconnu comparé à une seule mesure d'un standard. Pour chaque composante, une incertitude standard est calculée sur la base des distributions probables de la valeur [92].

Tableau 2.10 – Inventaire des incertitudes standards calculées suivant leur distribution probables.

Paramètre	Source	Incertainudes Standard
$w_{inc}(\%)$	Pureté	$u = \frac{u_p}{2\sqrt{3}}$
m_{kg}	Balance	$u = \frac{u_{balance}}{k\sqrt{n}}$
α	-	$u = \frac{u_{séch\acute{e}}}{k\sqrt{n}}$
C_x	Distribution de poisson	$u = \sqrt{N + 2B}$
$\lambda(s^{-1})$	Littérature	$u = \frac{\delta\lambda}{2\sqrt{3}}(1 + \lambda + t_r + t_L f_{t_L})$
$t_r(s)$	Horloge	$u = \frac{\delta u_{t_r}}{2\sqrt{3}}\lambda$
$t_L(s)$	Horloge	$u = \frac{\delta u_{t_L}}{2\sqrt{3}}f_{t_L}$
R_θ	Littérature	$u = \frac{\delta\theta}{2\sqrt{6}}$
R_ϕ	Gradient de flux, absorption	$u = \frac{\delta\phi}{2\sqrt{3}}$
R_σ	Spectre neutronique	$u = \frac{\delta\sigma_\phi}{2\sqrt{3}}$
R_ε	Géométrie, densité	$u = \frac{\delta\sigma_\varepsilon}{2\sqrt{3}}$
B	Géométrie, densité	$u_B = \sqrt{\frac{\sum_i^n (y_{B,i} - \bar{B})^2}{(n-1)}}$

2.8.4 L'approche Monte Carlo

L'utilisation d'une méthode Monte Carlo pour estimer l'incertitude de mesure est décrite dans le Supplément à la GUM [62]. Cette approche est particulièrement utile si, par exemple, il est difficile ou peu commode de fournir les dérivées partielles du modèle, ou si la densité de probabilité des fonctions des grandeurs d'entrée sont asymétriques. Ces conditions (et d'autres, voir [61], ne sont pas applicables avec l'utilisation du comparateur AAN. Par conséquent, cette approche ne sera pas discutée en détail ici.

Cependant, la méthode de Monte Carlo peut être utile si l'équation de mesure est compliquée, comme pour la méthode k_0 -AAN, puisque l'incertitude du paramètre α apparaît comme un exposant.

2.9 Conclusion

Les sources d'incertitude qui représentent un maillon fort dans toutes les techniques analytiques ont été bien détaillées pour chaque composant et pour chaque étape du processus d'analyse par activation neutronique y compris celles liées aux interférences et aux données nucléaires. Des méthodes pour évaluer chacun de ces composants qui impacte significativement les résultats de mesures ont été évoquées pour que ce travail soit un retour d'expérience pour la communauté future d'AAN. Les principales sources d'incertitudes proviennent soit des protocoles d'analyses soit de la caractérisation des installations.

Caractérisation de l'installation et validation

3.1 Introduction

Les deux principales installations clés utilisées dans les laboratoires d'AAN, comme mentionner dans le premier chapitre se composent du détecteur à semi-conducteur, en générale à base de $Ge(HP)$ et les différents installations d'irradiations dans le réacteur. La caractérisation de ces installations consiste à mesurer les paramètres intrinsèques caractérisant chacune d'elle ; Il s'agit de la courbe d'efficacité photoélectrique $\varepsilon(E)$ du (des) détecteur (s) utilisé (s) en fonction de l'énergie des rayons gamma pour les positions de mesures et des paramètres $(\alpha, f, \Phi_{th}, \Phi_{ep}, \Phi_{rap})$ pour chaque installation d'irradiation. Il est à noter que la caractérisation des installations d'irradiation nécessite préalablement la réalisation de la caractérisation des détecteurs qui seront utilisés pour les mesures.

3.2 Caractérisation du détecteur

3.2.1 Système de détection

La spectrométrie gamma au laboratoire d'AAN du CENM est assurée par trois détecteurs à semi-conducteur à base de germanium de très haute pureté $Ge(HP)$. Ces détecteurs permettent de mesurer les rayonnements gammas dans une gamme d'énergie s'étendant de quelque keV jusqu'à quelques MeV . Afin de minimiser le bruit des rayonnements originaire de l'environnement (cosmique, source de calibration...), tous les détecteurs sont logés dans des châteaux de plomb (figure 3.1) alignés de l'intérieur par 1 mm de cuivre pour atténuer les rayons X provenant du plomb. Afin d'éliminer les signaux électriques d'origines thermique, il est indispensable de maintenir le cristal du $Ge(HP)$ à basse température $77,36K (-195,79^{\circ}C)$ à l'aide d'un cryostat alimenté d'azote liquide.

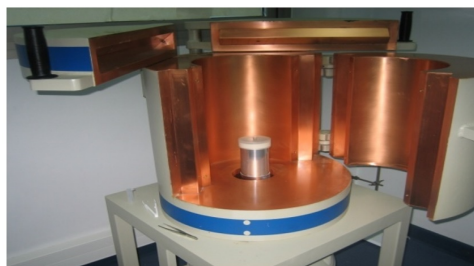


Figure 3.1 – Détecteur à $Ge(HP)$ dans son château de plomb aligné par une feuille de cuivre.

Les caractéristiques des détecteurs présents dans le laboratoire d'analyse par activation neutronique du CENM sont présentées dans le tableau 3.1.

Tableau 3.1 – Principales caractéristiques des détecteurs utilisés.

Model du détecteur	Efficacité à 1332 (keV)	Résolution à 122 (keV)	Résolution à 1332 (keV)	Type
GR3019	30	0,875	1,95	N
GC7020	70	1,05	2	P
GC3020	30	1,20	2	P

Comme souligné auparavant, la caractérisation des installations d'irradiations nécessite dans un premier lieu la caractérisation des détecteurs qui seront utilisés dans les mesures des activités des moniteurs pour déterminer les taux de réaction correspondants.

Afin d'éviter la redondance, dans ce travail, on s'est restreint à la présentation des résultats obtenus pour le détecteur GR3019 de type N, doté d'un cristal de 76,3 mm de longueur, un diamètre de 58,8 mm, un rendement relatif de 30% et une résolution de 1,95 keV pour la raie gamma 1332,5 keV du ^{60}Co telle mentionnée dans le tableau 3.1.

3.2.2 Sources radioactives utilisées pour la calibration

La calibration des détecteurs nécessite l'utilisation des sources radioactives ponctuelles dont l'activité et la date de fabrication sont bien connues, avec des émissions de rayons gamma couvrant une large gamme d'énergie. Le tableau 3.2 représente les sources radioactives utilisées au sein du laboratoire d'AAN du CENM pour la calibration des détecteurs.

Tableau 3.2 – Sources radioactives utilisées pour la calibration des détecteurs.

Radionucléides	Energie (keV)	Intensité (%)	Activité (kBq)	Période (ans)
^{137}Cs	662,70	30,00	40	30,070
^{60}Co	1173,24	99,97	35,58	5,271
	1332,50	99,98		
^{133}Ba	53,16	2,20	31,27	10,510
	81,00	34,06		

Radionucléides	Energie (keV)	Intensité (%)	Activité (kBq)	Période (ans)
^{133}Ba	223,23	0,45	31,27	10,510
	276,40	7,16		
	302,85	18,33		
	356,02	62,05		
	383,85	8,94		
	121,78	28,67		
^{152}Eu	244,70	7,61	43	13,542
	344,28	26,60		
	411,12	3,12		
	778,90	12,97		
	867,38	4,16		
	964,08	14,60		
	1112,07	13,41		
	1212,12	1,38		
	1299,14	1,61		
	1408,01	20,80		
^{22}Na	1274,53	99,94	40	2,602

3.2.3 Calibration en énergie et en efficacité

3.2.3.1 Calibration en énergie

Comme discuté dans la première section, le numéro du canal du photopic est approximativement proportionnel à l'énergie de la raie gamma. Le facteur de proportionnalité est contrôlé par le gain de l'amplificateur. Si nous supposons une relation linéaire exacte entre le numéro du canal et l'énergie nous avons :

$$E_{\gamma} = a.C + b \quad (3.1)$$

où E_γ est l'énergie de la raie gamma et C est le numéro du canal correspondant au centre du photopic. La constante a est un facteur d'échelle avec comme unité l'énergie / numéro de canal. b représente l'intersection de la droite avec l'axe des abscisses.

Pour déterminer le facteur de proportionnalité a , une source émettrice de rayons gamma, dont les énergies sont connues, est nécessaire. Ensuite, les numéros des canaux correspondant à ces énergies, nous permettent de déterminer la constante a . Une fois que la valeur de a est connue, l'énergie d'un gamma inconnu peut être déterminée à partir du numéro de canal du photopic C , et l'équation 3.1.

Dans la pratique, on utilise généralement plus d'une source standard pour l'étalonnage en énergies du détecteur. Les numéros de canaux de trois ou quatre raies gamma d'énergies connues sont déterminés. Ensuite, la droite « avec un meilleur ajustement » passant par ces points de données « standard » est utilisée comme ligne d'étalonnage. Cette dernière peut ne pas passer par l'origine, car le système de détection peut avoir un seuil d'énergie (réglable par l'utilisateur) différent de zéro.

Dans notre cas on choisit deux raies dans des gammes d'énergie différentes pour couvrir toutes les énergies d'intérêt dans l'AAN. Dans ce cas, on étalonne le spectromètre par les deux raies connues (121, 78 et 1408, 01 keV) de la source d' ^{152}Eu .

Les énergies des raies émises par la source d' ^{152}Eu et leurs canaux correspondants sont présentées dans le tableau 3.3.

Tableau 3.3 – Les raies émises par la source d' ^{152}Eu et les numéros de canaux correspondants.

Energie (keV)	Numéro de canal
121, 78	296
244, 7	595
344, 28	838
411, 12	1000
778, 9	1896
867, 38	2112
964, 08	2347
1112, 07	2708
1212, 12	2953
1299, 14	3163
1408, 01	3429

A partir du tableau 3.3, la courbe d'étalonnage en énergie de la chaîne de spectrométrie, tracée suivant l'équation (3.1), est illustrées dans la figure 3.2.

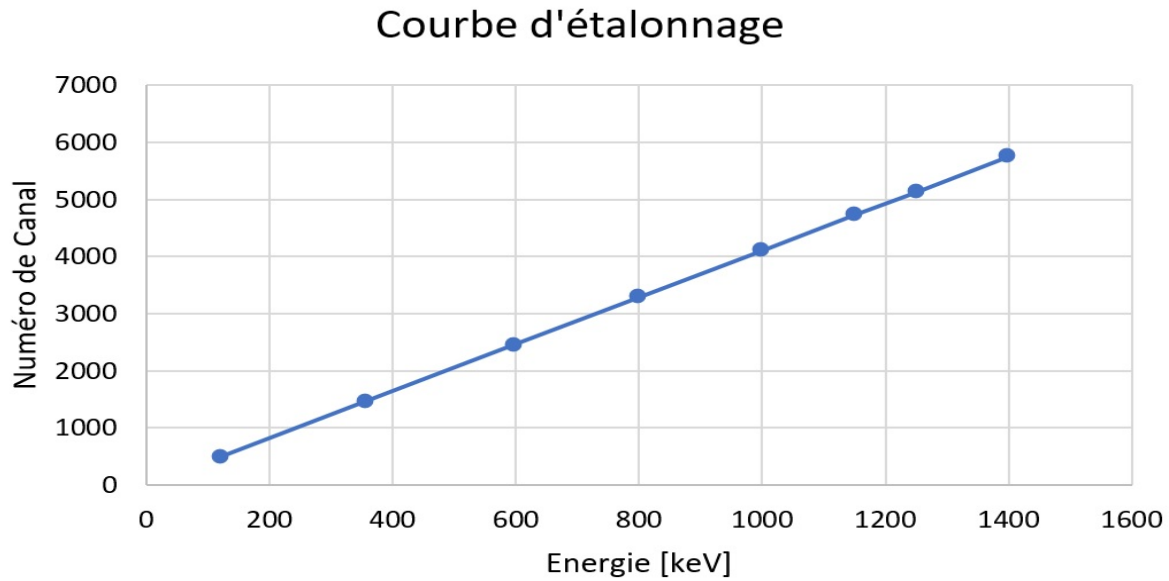


Figure 3.2 – Exemple de courbe d'étalonnage en énergie.

Cette courbe présente l'énergie en keV en fonction du numéro de canal. Il s'agit d'une relation linéaire entre les énergies des rayonnements situés dans la gamme couverte par les raies d' ^{152}Eu et le numéro du canal. L'équation linéaire de cette droite s'écrit alors :

$$E = 0,4105C + 0,2594$$

Grâce à cette relation d'étalonnage en énergie, on peut déterminer l'énergie de n'importe quelles raies apparaissant dans le spectre mesuré. Cela est en générale valable jusqu'à l'énergie 3103,4 keV émise par le ^{37}S .

3.2.3.2 Calibration en efficacité

La détermination de l'efficacité photoélectrique d'un détecteur nécessite l'utilisation des sources ponctuelles de calibration avec des émissions de rayons gamma couvrant une large gamme d'énergie.

Afin de réduire le temps-mort, sept (7) distances source-détecteur sont disponibles dans le laboratoire. Ces distances sont assurées par des supports en polyéthylène que l'on combine pour fixer la distance désirée à chaque fois que c'est nécessaire. Les mesures des activités émanant des sources ponctuelles utilisées ont été effectuées séparément pour chaque distance et pour chaque source. La majorité des temps de mesures a été choisie à des erreurs statistiques inférieurs à 1%.

En générale, et pour des raisons liées au système qualité du laboratoire, la calibration en efficacité est effectuée par deux méthodes. La première est réalisée par un dépouillement manuel des spectres puis par l'utilisation d'une feuille de calculs de Microsoft Soft Excel préalablement préparée et validée. La deuxième méthode consiste à utiliser le logiciel k_0 -IAEA qui est conçu pour traiter toutes les étapes du protocole d'AAN y compris le dépouillement automatique des

spectres et la détermination des différents paramètres intrinsèques du détecteur.

3.2.3.2.1 Feuille de calculs :

La feuille de calcul est développée et alimentée avec toutes les données permanentes liées à chaque source ponctuelle (certificats) utilisées ainsi que les données nucléaires (intrinsèques) de chaque radionucléide composant chaque source. L'analyste renseigne les données relatives à l'expérience ; à savoir la date des mesures, le temps de comptage et les aires de pics déterminés par le dépouillement manuel ou grâce au logiciel d'acquisition des spectres pour accomplir le calcul de l'efficacité dont la formule est la suivante :

$$\varepsilon = \frac{C}{A \cdot I_{\gamma} \cdot t_c} \quad (3.2)$$

Avec :

C : Nombre de rayonnements détectés (Aire du pic net)

I_{γ} : Intensité de la raie γ

A : Activité actuelle de la source

t_c : Temps de comptage

L'étalonnage en efficacité qui consiste à déterminer la relation reliant l'efficacité du détecteur pour détecter les rayons gamma d'énergie E_{γ} est habituellement traduit par la génération d'un polynôme de degré $n > 2$. Toutes les distances disponibles (38,3 ; 69,3 ; 104 ; 119 ; 150,2 ; 180,6 et 215,3 mm) sont couvertes durant cette phase et qui sont représentées (codées) par 1K, 2K, 3K, 4K, 5K, 6K et 7K.

La figure 3.3 illustre une image de la feuille de calcul utilisée pour déterminer l'efficacité photoélectrique pour la position 7K avec la source ^{152}Eu comme source d'étalonnage.

	A	B	C	D	E	F	G	H
1	ANALYTICS SOURCE	Eu152						
2	Half-life	13,542	Y					
3		427353019,2	s					
4	Decay Constant	1,62195E-09	1/s					
5	Activity							
6		43000	Bq					
7		21/11/2007 12:00				Fill in values highlighted in yellow.		
8	Current Activity	26744,96728	Bq					
9		02/03/2017 00:00		3388,50	9,283561644			
10	Count time (real)	900,00	s					
11	Count time (live)	854	s					
12	Position:		7K					
13								
14	Energy (keV)	Intensity	Decay	Half-life		Counts	Gammas Emit	Efficiency
15	40,1	0,37		13,542		0	84508,74761	0
16	45,5	0,14		13,542		130	31976,28288	0,40655132
17	121,78	28,67	EC	13,542	Y	28944	6548285,93	0,442008799
18	244	7,61		13,542	Y	7176	1738139,377	0,412855269
19	344,28	26,6	B-	13,542	Y	21125	6075493,747	0,347708365
20	411	2,233		13,542	Y	1497	510021,7119	0,293516916
21	443,96	3,12		13,542	Y	2226	712614,3042	0,31237094
22	778,9	12,942	b-	13,542	Y	6239	2955978,95	0,211063749
23	964,08	14,6	eb	13,542	Y	6046	3334669,5	0,181307323
24	1085,87	10,207	eb	13,542	Y	3245	2331299,424	0,139192759
25	1112,07	13,644	eb	13,542	Y	5170	3116317,169	0,165900957
26	1408	21,005	eb	13,542	Y	6910	4797584,442	0,144030816

Figure 3.3 – Capture d'écran de la feuille de calcul représentant les différents paramètres utilisés pour le calcul de l'efficacité photoélectrique pour la source ^{152}Eu .

Le gain est réglé de telle sorte que toutes les gammes d'énergie des pics soient couvertes (entre 53 et 3500 keV). La courbe d'efficacité (photoélectrique) en fonction de l'énergie présentée avec sa courbe de tendance et sa fonction polynomiale représentative de degré 6 qui relie le $\ln(\varepsilon)$ et $\ln(E)$ pour la position 7K est présentée dans la figure 3.4. Cela est le résultat d'assemblage des valeurs des efficacités calculées à partir de toutes les sources ponctuelles mesurées (tableau 3.2) pour couvrir la globalité du spectre gamma utilisé dans l'AAN.

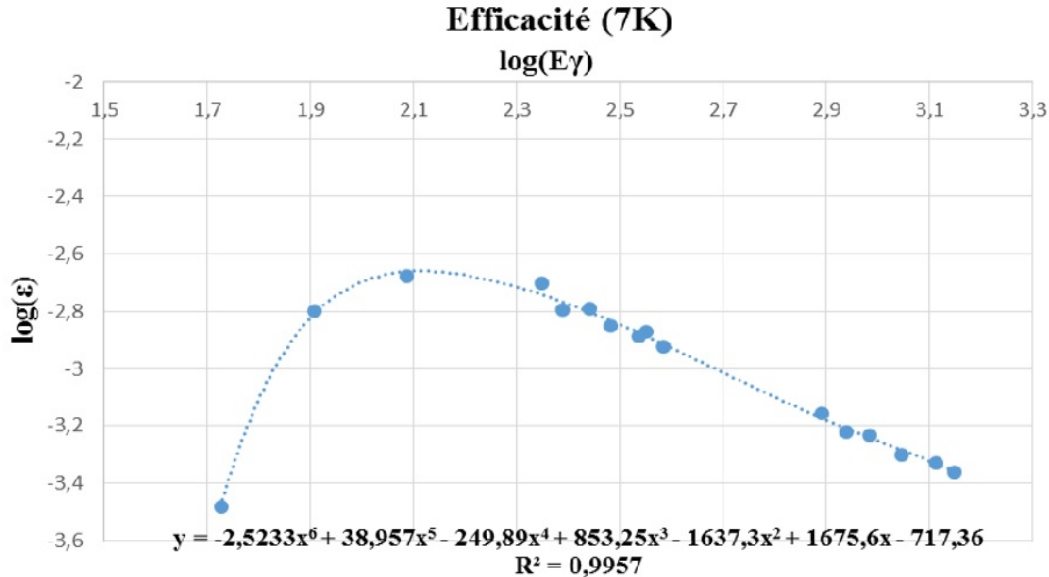


Figure 3.4 – La courbe d'efficacité photoélectrique pour la distance de référence 7K.

Une efficacité maximale est observée aux alentours de 122 keV suivi par une diminution en fonction de l'énergie. L'équation qui traduit la relation entre ε et E_γ peut être représentée également par une relation de puissance dans la zone des faibles énergies :

$$\varepsilon = a.E_\gamma^b.b \quad (3.3)$$

avec a et b représentent des paramètres d'ajustement des points expérimentaux.

Dans la pratique et afin de réduire l'erreur sur les efficacités calculées, il est commode d'utiliser la représentation polynomiale ci-dessous :

$$\ln(\varepsilon) = a + b \ln(E) + c \ln(E)^2 + d \ln(E)^3 + e \ln(E)^4 + f \ln(E)^5 + g \ln(E)^6 \quad (3.4)$$

Avec :

ε : L'efficacité.

E : L'énergie.

$a, b, c, \dots$ constituent les paramètres d'ajustement des points expérimentaux et dépendent de la géométrie de comptage utilisée. Les résultats des coefficients polynomiaux obtenus après avoir balayer toutes les positions de mesures ainsi que toutes les sources ponctuelles sont présentés dans le tableau 3.4.

Tableau 3.4 – Les différents coefficients du polynôme reliant $Ln(\varepsilon)$ et $Ln(\gamma)$.

Positions							
Coefficient	1K	2K	3K	4K	5K	6K	7K
a	-909,86	-1556,6	-641,76	-2458,39	-679,39	-1260	-717,36
b	2087,7	3785,8	1428,1	5921,4	1519	3015,3	1675,6
c	-1986,9	-3822,7	-1318,6	-5918,7	-1404	-3003,8	-1637,3
d	1002,3	2048,1	644,39	3139,05	682,88	1590,7	853,25
e	-282,6	-613,8	-175,69	-931,95	-183,86	-472,04	-249,89
f	42,2	97,52	25,31	146,77	25,869	74,38	38,96
g	-2,61	-6,41	-1,5	-9,58	-1,49	-4,86	2,52

3.2.3.2.2 k_0 -IAEA

Le logiciel k_0 -IAEA est conçu pour permettre d'effectuer la calibration en efficacité en exploitant les spectres mesurés pour chaque position de comptage. Un comptage à blanc (sans aucune source radioactive) pour intégrer, dans les calculs, la composition du bruit de fond qui règne dans la salle de comptage est requis. Ensuite il faut calculer le rapport pic au total, en utilisant une source radioactive mono-énergétique (par exemple le ^{137}Cs) pour une position de référence choisie.

Enfin une calibration en efficacité est effectuée par l'utilisation de l' ^{152}Eu comme source multi-énergétiques mesurée à différentes positions.

Le k_0 -IAEA permet l'obtention d'une courbe d'efficacité pour chaque position d'intérêt. Les résultats obtenus pour la distance de référence sont présentés dans la figure 3.5 et le tableau de la figure 3.6.

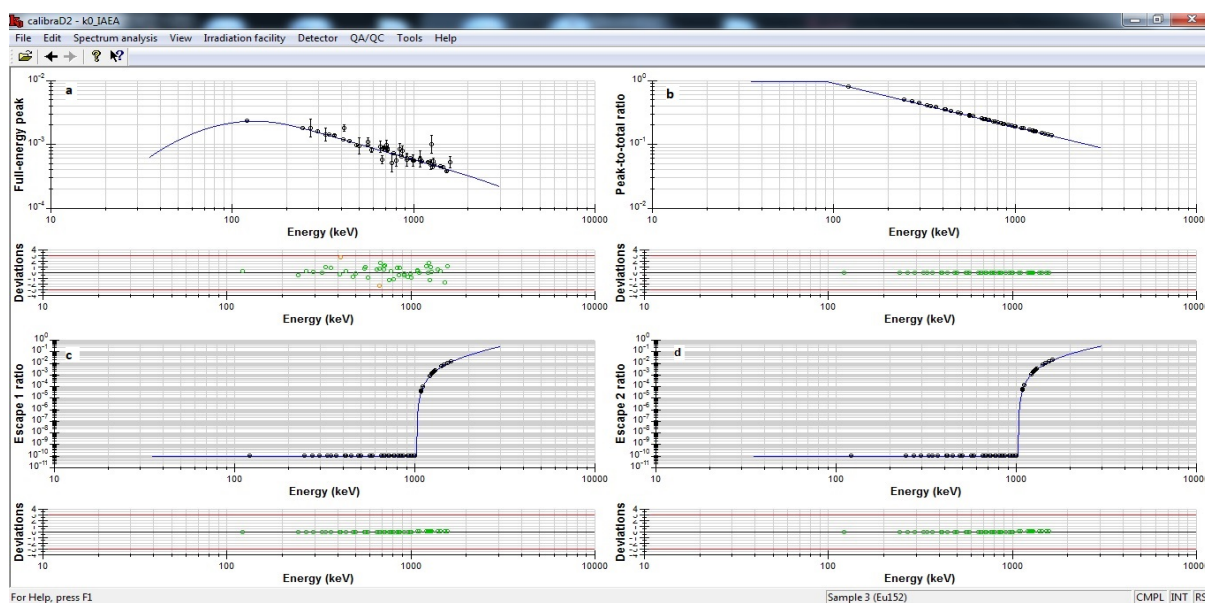


Figure 3.5 – Exemple de courbe d'efficacité obtenue à l'aide du programme k_0 -IAEA ; a : courbe d'efficacité photoélectrique ; b : courbe du pic au total ; c : courbe du taux du premier échappement, d : courbe du taux du deuxième échappement.

calib-srcs2.kDi - k0_IAEA									
File Edit Spectrum analysis View Irradiation facility Detector QA/QC Tools Help									
← → ?									
Results calculated just now:									
E(keV)	measured effic, tc correction				fitted eff, z		p/t ratio	Esc1ratio	Esc2ratio
40.12	5.660E-005	+/-	4.905E-006	0.995	5.333E-005	0.7	9.990E-001	0.000E+000	0.000E+000
45.40	1.603E-004	+/-	9.283E-006	0.995	1.710E-004	-1.2	9.990E-001	0.000E+000	0.000E+000
121.78	2.970E-003	+/-	4.691E-005	0.995	2.954E-003	0.3	8.126E-001	0.000E+000	0.000E+000
244.69	2.482E-003	+/-	4.027E-005	0.994	2.493E-003	-0.3	5.033E-001	0.000E+000	0.000E+000
271.13	1.970E-003	+/-	6.602E-004	0.990	2.319E-003	-0.5	4.691E-001	0.000E+000	0.000E+000
295.93	2.165E-003	+/-	1.536E-004	0.993	2.169E-003	-0.0	4.418E-001	0.000E+000	0.000E+000
324.81	2.260E-003	+/-	4.645E-004	0.992	2.013E-003	0.5	4.144E-001	0.000E+000	0.000E+000
329.42	2.963E-003	+/-	4.839E-004	0.995	1.990E-003	2.0	4.104E-001	0.000E+000	0.000E+000
344.29	1.929E-003	+/-	2.779E-005	0.997	1.919E-003	0.4	3.982E-001	0.000E+000	0.000E+000
367.80	1.890E-003	+/-	7.033E-005	1.007	1.815E-003	1.1	3.805E-001	0.000E+000	0.000E+000
411.12	1.637E-003	+/-	3.929E-005	0.993	1.652E-003	-0.4	3.525E-001	0.000E+000	0.000E+000
416.05	2.106E-003	+/-	3.147E-004	1.001	1.635E-003	1.5	3.497E-001	0.000E+000	0.000E+000
443.89	1.557E-003	+/-	2.853E-005	0.995	1.547E-003	0.3	3.345E-001	0.000E+000	0.000E+000
488.61	1.164E-003	+/-	1.183E-004	0.993	1.425E-003	-2.2	3.131E-001	0.000E+000	0.000E+000
503.41	1.640E-003	+/-	6.019E-004	0.991	1.389E-003	0.4	3.068E-001	0.000E+000	0.000E+000
520.24	2.046E-003	+/-	6.857E-004	0.992	1.351E-003	1.0	2.999E-001	0.000E+000	0.000E+000
566.42	2.323E-003	+/-	6.103E-004	1.020	1.257E-003	1.7	2.829E-001	0.000E+000	0.000E+000
586.30	1.145E-003	+/-	9.519E-005	0.994	1.222E-003	-0.8	2.763E-001	0.000E+000	0.000E+000
656.48	1.391E-003	+/-	4.119E-004	0.993	1.112E-003	0.7	2.557E-001	0.000E+000	0.000E+000
674.70	1.419E-003	+/-	1.399E-004	0.990	1.087E-003	2.4	2.509E-001	0.000E+000	0.000E+000
678.59	1.261E-003	+/-	8.670E-005	0.991	1.082E-003	2.1	2.499E-001	0.000E+000	0.000E+000
688.67	1.071E-003	+/-	6.613E-005	0.999	1.069E-003	0.0	2.474E-001	0.000E+000	0.000E+000
712.86	2.106E-003	+/-	6.236E-004	1.020	1.039E-003	1.7	2.416E-001	0.000E+000	0.000E+000
719.42	1.456E-003	+/-	1.454E-004	0.996	1.031E-003	2.9	2.401E-001	0.000E+000	0.000E+000
723.35	1.386E-003	+/-	1.792E-004	0.995	1.026E-003	2.0	2.392E-001	0.000E+000	0.000E+000
756.80	2.937E-003	+/-	7.192E-004	1.164	9.892E-004	2.7	2.319E-001	0.000E+000	0.000E+000
764.90	9.169E-004	+/-	2.069E-004	0.994	9.807E-004	-0.3	2.302E-001	0.000E+000	0.000E+000
778.92	9.416E-004	+/-	1.502E-005	0.996	9.663E-004	-1.6	2.274E-001	0.000E+000	0.000E+000
810.45	1.170E-003	+/-	1.747E-004	1.003	9.356E-004	1.3	2.213E-001	0.000E+000	0.000E+000
841.58	1.087E-003	+/-	2.791E-004	0.998	9.075E-004	0.6	2.156E-001	0.000E+000	0.000E+000
867.38	8.800E-004	+/-	1.860E-005	0.994	8.856E-004	-0.3	2.112E-001	0.000E+000	0.000E+000
897.00	1.334E-003	+/-	4.692E-004	0.998	8.619E-004	1.0	2.064E-001	0.000E+000	0.000E+000
901.17	9.158E-004	+/-	3.455E-004	1.002	8.587E-004	0.2	2.057E-001	0.000E+000	0.000E+000
919.39	9.863E-004	+/-	1.423E-004	0.996	8.450E-004	1.0	2.029E-001	0.000E+000	0.000E+000
926.31	1.060E-003	+/-	1.824E-004	0.994	8.399E-004	1.2	2.019E-001	0.000E+000	0.000E+000
930.59	9.872E-004	+/-	3.618E-004	1.014	8.367E-004	0.4	2.012E-001	0.000E+000	0.000E+000
964.11	8.015E-004	+/-	1.418E-005	0.998	8.132E-004	-0.8	1.964E-001	0.000E+000	0.000E+000
996.33	1.069E-003	+/-	2.347E-004	0.998	7.920E-004	1.2	1.920E-001	0.000E+000	0.000E+000
1005.26	7.354E-004	+/-	4.838E-005	0.996	7.863E-004	-1.1	1.908E-001	0.000E+000	0.000E+000
1085.89	7.611E-004	+/-	3.423E-005	1.001	7.388E-004	0.7	1.810E-001	3.618E-005	5.100E-005
1089.71	7.526E-004	+/-	6.908E-005	0.996	7.367E-004	0.2	1.806E-001	4.280E-005	6.034E-005
1112.07	7.187E-004	+/-	1.182E-005	0.999	7.247E-004	-0.5	1.781E-001	9.730E-005	1.371E-004
1212.93	6.735E-004	+/-	3.378E-005	0.994	6.753E-004	-0.1	1.678E-001	8.019E-004	1.127E-003
1249.95	7.144E-004	+/-	1.143E-004	1.008	6.589E-004	0.5	1.643E-001	1.300E-003	1.824E-003
1274.54	8.081E-004	+/-	7.696E-005	0.998	6.484E-004	2.1	1.622E-001	1.714E-003	2.402E-003
1292.78	7.311E-004	+/-	1.486E-004	1.002	6.409E-004	0.6	1.606E-001	2.067E-003	2.892E-003
1299.16	6.219E-004	+/-	2.793E-005	0.996	6.383E-004	-0.6	1.600E-001	2.200E-003	3.077E-003
1363.75	8.369E-004	+/-	2.912E-004	0.994	6.131E-004	0.8	1.548E-001	3.832E-003	5.332E-003
1408.00	6.057E-004	+/-	9.555E-006	0.998	5.970E-004	0.9	1.514E-001	5.269E-003	7.301E-003
1457.62	6.580E-004	+/-	1.639E-004	1.008	5.799E-004	0.5	1.479E-001	7.210E-003	9.938E-003
1528.12	4.855E-004	+/-	3.885E-005	1.001	5.572E-004	-1.8	1.432E-001	1.060E-002	1.449E-002
Results stored for this sample in series database:									
Curves must be stored in permanent database using Detector/Store menu option									
For Help, press F1								Sample 2 (EU152)	

Figure 3.6 – Les valeurs de l'efficacité mesurées et les résultats d'interpolation (fit) obtenus par le k_0 -IAEA pour la position de référence 7K.

3.3 Caractérisation du Réacteur

3.3.1 Installations d'irradiations (PTS et RSR)

Le réacteur Triga Mark II du CENM est équipé de deux tubes pour transférer les échantillons vers les installations d'irradiations. Le premier est utilisé pour introduire des échantillons dans le Système de Transfère Pneumatiques (PTS) à partir d'une station située dans les locaux du laboratoire d'AAN. Ce système est dédié à la caractérisation des éléments à courte période demi-vie (courte irradiations). L'envoi et la réception des échantillons sont assurés par l'utilisation d'un groupe pneumatique par l'inversion du gardian de pression. Le second est relié à un Râtelier Rotatif (RSR) qui est doté de 40 positions, avec une capacité de deux navettes par position. Le RSR est dédié à la caractérisation des éléments à moyennes et à longues période demi-vie (longues irradiations). Afin de garantir l'exposition des échantillons à un flux neutronique homogène, le RSR est équipé d'un moteur électrique qui permet une rotation angulaire uniforme du dispositif autour de l'axe centrale du cœur du réacteur (Figure 3.7). Les navettes sont positionnées manuellement dans les installation d'irradiation en utilisant un outil, similaire à une canne à pêche, opérant avec une pince conçue exclusivement pour capturer et relâcher la navette au moment opportun. Ces deux installations sont dédiées uniquement à l'AAN.

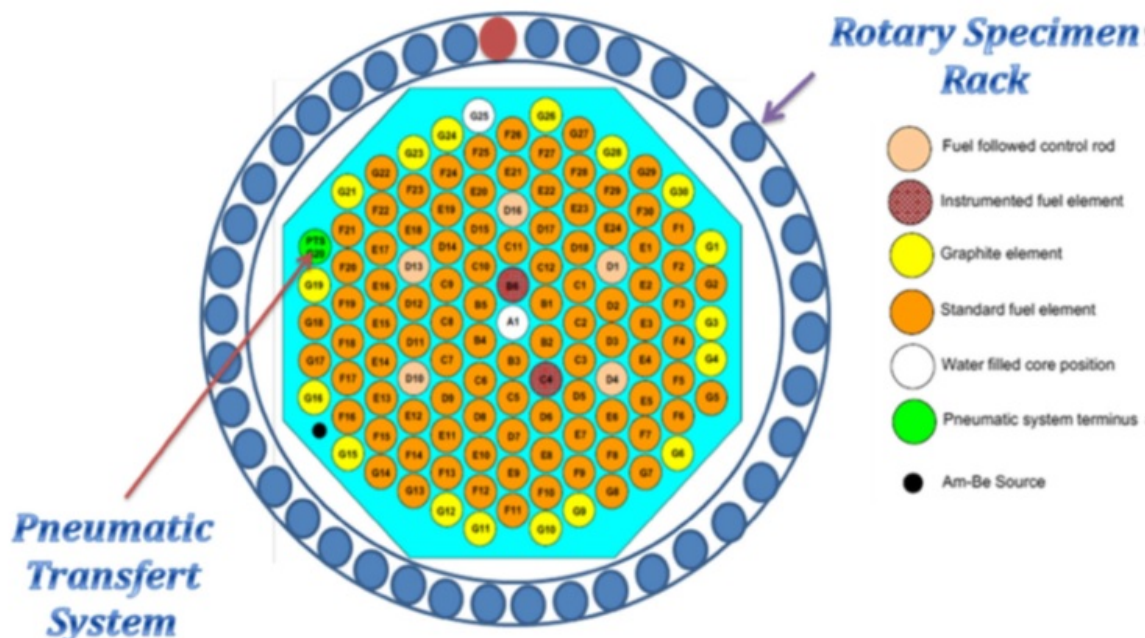


Figure 3.7 – Les deux installations d'irradiations destinées à l'AAN au Réacteur TRIGA MARK II du CENM.

3.3.2 Paramètre α

Le spectre des neutrons épithermiques peut être décrit par la dépendance $1/E$, or dans les sites d'irradiation (au sein du réacteur nucléaire), le spectre peut être remplacé par la dépendance $1/E^{1+\alpha}$ (cf. Figure 3.8), avec $\alpha (< \text{ou} > 0)$ étant une première approximation indépendante de l'énergie du neutron, les valeurs positives et négatives de α correspondent respectivement à l'appauvrissement et le renforcement du spectre épithermique par rapport à l'idéal ($\alpha = 0$) (cf. Figure 3.9).

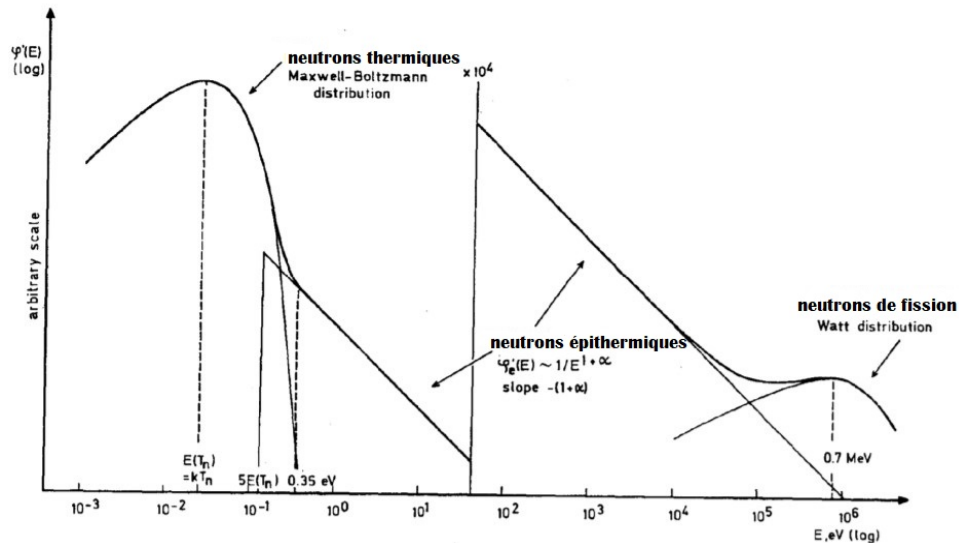


Figure 3.8 – Représentation schématique de la distribution du flux $\phi(E)$ en fonction de E .

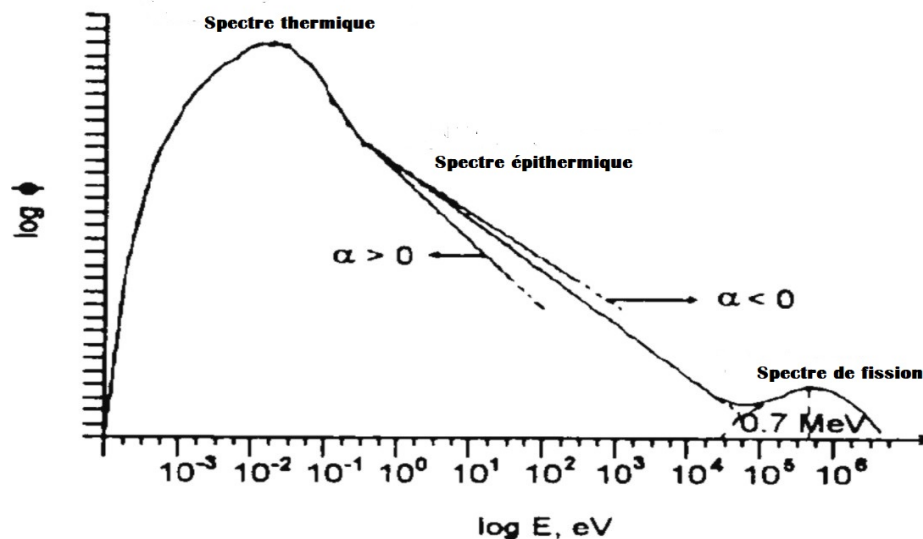


Figure 3.9 – Non idéalité du spectre épithermique.

Pour déterminer α , on adopte quatre méthodes :

— Méthode d'un multi moniteur couvert par du Cd

Cette méthode est essentielle pour la détermination de α dans la technique d'AAN. Un ensemble de N moniteurs d'activation, est irradié simultanément sous couvercle en Cd dans une installation d'irradiation du réacteur. Les activités induites sont mesurées à la position de référence dans un détecteur calibré. Le paramètre α est obtenu comme une pente ($-\alpha$) de la ligne droite en traçant :

$$\log \frac{(\bar{E}_{r,i})^{-\alpha} (A_{sp,i})_{Cd}}{k_{0,Au}(i) \cdot \varepsilon_i \cdot F_{Cd,i} \cdot Q_{0,i}(\alpha) \cdot G_{e,i}} \quad (3.5)$$

En fonction de $\log \bar{E}_{r,i}$

Avec :

” i ” dénote l'isotope 1,2,3,...,N.

$\bar{E}_{r,i}$: Energie de résonance effective pour l'isotope i .

$k_{0,Au}$: Le facteur k_0 pour l'isotope i par rapport à la référence Au.

$A_{sp,i}$: Activité spécifique de l'isotope i .

$G_{e,i}$: Le paramètre d'autoprotection épithermique pour l'isotope i .

$Q_{0,i}(\alpha)$ (ou $\frac{I_0}{\sigma_{eff}}$) Intégrale de résonance de l'isotope i .

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.

$$\alpha + \frac{\sum_{i=1}^N \left\{ \left[\log \bar{E}_{r,i} - \sum_{i=1}^N \frac{\log \bar{E}_{r,i}}{N} \right] \left[\log T_i - \sum_{i=1}^N \frac{\log T_i}{N} \right] \right\}}{\sum_{i=1}^N \left[\log \bar{E}_{r,i} - \sum_{i=1}^N \frac{\log \bar{E}_{r,i}}{N} \right]^2} = 0 \quad (3.6)$$

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

Avec :

$$T_i = \frac{(\bar{E}_{r,i})^{-\alpha} (A_{sp,i})_{Cd}}{k_{0,Au}(i) \cdot \varepsilon_i \cdot F_{Cd,i} \cdot Q_{0,i}(\alpha) \cdot G_{e,i}}$$

Notant que le minimum des moniteurs est de deux (N= 2).

— Méthode rapport Cd d'un multi moniteur

Cette méthode peut être employée à priori pour la surveillance de α à condition que les caractéristiques du flux neutronique sont connues afin de contrôler leur stabilité en fonction du temps.

Un ensemble de N moniteurs est irradié avec et sans couvercle de Cd, et les activités induites sont mesurées dans un détecteur calibré. Le paramètre α peut être obtenu comme une pente ($-\alpha$)

de la ligne droite en traçant :

$$\log \frac{(\bar{E}_{r,i})^{-\alpha}}{(F_{Cd,i}R_{Cd,i} - 1) \cdot Q_{0,i}(\alpha) \cdot G_{e,i}/G_{th,i}} \quad (3.7)$$

En fonction de $\log \bar{E}_{r,i}$

Avec :

i dénote l'isotope 1,2,3,...,N.

$G_{th,i}$: Le paramètre d'autoprotection thermique pour l'isotope i .

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

$$\alpha + \frac{\sum_{i=1}^N \left\{ \left[\log \bar{E}_{r,i} - \sum_{i=1}^N \frac{\log \bar{E}_{r,i}}{N} \right] \left[\log T_i - \sum_{i=1}^N \frac{\log T_i}{N} \right] \right\}}{\sum_{i=1}^N \left[\log \bar{E}_{r,i} - \sum_{i=1}^N \frac{\log \bar{E}_{r,i}}{N} \right]^2} = 0 \quad (3.8)$$

Avec

$$T_i = \frac{(\bar{E}_{r,i})^{-\alpha}}{(F_{Cd,i}R_{Cd,i} - 1) \cdot Q_{0,i}(\alpha) \cdot G_{e,i}/G_{th,i}} \quad (3.9)$$

$$R_{Cd} = \frac{\phi_{th}\sigma_0 + \phi_e I_0(\alpha)}{\phi_e I_0(\alpha)} = \frac{f}{Q_0(\alpha)} + 1 \quad (3.10)$$

$$R_{Cd}F_{Cd} = \frac{G_{th}f}{Q_0G_e(\alpha)} + 1 \quad (3.11)$$

— La méthode d'un multi moniteur nu

Cette méthode est également essentielle pour la détermination de α dans l'AAN. 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. α peut être obtenue comme une pente ($-\alpha$) en traçant la ligne droite :

$$\log \bar{E}_{r,i} \frac{A_{sp,i}/k_{0,Au}(i)\varepsilon_i - A_{sp,N+1}/k_{0,Au}(ref)\varepsilon_{N+1}}{Q_{0,i}(\alpha)G_{e,i}/G_{th,i} - Q_{0,N+1}(\alpha)G_{e,N+1}/G_{th,N+1}} \quad (3.12)$$

En fonction de $\log \bar{E}_{r,i}$

Où l'index 'ref' dénote moniteur de l'isotope référence dans ce cas l'Or. Analogiquement aux méthodes précédentes, α peut être obtenu de l'équation suivante :

$$\alpha + \frac{\sum_{i=1}^N \left\{ \left[\log \bar{E}_{r,i} - \sum_{i=1}^N \frac{\log \bar{E}_{r,1}}{N} \right] \left[\log T_i - \sum_{i=1}^N \frac{\log T_i}{N} \right] \right\}}{\sum_{i=1}^N \left[\log \bar{E}_{r,i} - \sum_{i=1}^N \frac{\log \bar{E}_{r,1}}{N} \right]^2} = 0 \quad (3.13)$$

Avec

$$T_i = (\bar{E}_{r,i})^{-\alpha} \frac{A_{sp,i}/k_{0,Au}(i)\varepsilon_i - A_{sp,N+1}/k_{0,Au}(ref)\varepsilon_{N+1}}{Q_{0,i}(\alpha)G_{e,i}/G_{th,i} - Q_{0,N+1}(\alpha)G_{e,N+1}/G_{th,N+1}} \quad (3.14)$$

— La méthode ‘triple moniteur nu’

α peut-être trouvé à partir de l'équation suivante :

$$(a - b)Q_{0,1}(\alpha)G_{e,1}/G_{th,1} - aQ_{0,2}(\alpha)G_{e,2}/G_{th,2} + bQ_{0,3}(\alpha)G_{e,3}/G_{th,3} = 0 \quad (3.15)$$

Avec

$$a = \left[1 - \frac{A_{sp,2}}{A_{sp,1}} \frac{k_{0,Au}(1)}{k_{0,Au}(2)} \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2} \right]^{-1} \quad (3.16)$$

$$b = \left[1 - \frac{A_{sp,3}}{A_{sp,1}} \frac{k_{0,Au}(1)}{k_{0,Au}(3)} \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_3} \right]^{-1} \quad (3.17)$$

3.3.3 Paramètre f

f représente le rapport du flux thermique et épithermique. Pour le mesurer, on irradie trois mono moniteur et on mesure le nombre de coups sous leurs pics les plus probable ; Pour chaque combinaison de 2 moniteurs (1,2) parmi les trois moniteurs (1,2,3) irradiés ; $f_{(1,2)}$ est obtenue par la formule suivante :

$$f(1, 2) = \frac{G_{e,1} \frac{k_{0,Au}(1)}{k_{0,Au}(2)} \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2} Q_{0,1}(\alpha) - G_{e,2} \frac{A_{sp,1}}{A_{sp,2}} Q_{0,1}(\alpha)}{G_{th,2} \frac{A_{sp,1}}{A_{sp,2}} - G_{th,1} \frac{k_{0,Au}(1)}{k_{0,Au}(2)} \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}} \quad (3.18)$$

D'où :

$$f = \frac{f_{1,2}/unc_{12} + f_{1,3}/unc_{13} + f_{2,3}/unc_{23}}{1/unc_{12} + 1/unc_{13} + 1/unc_{23}} \quad (3.19)$$

Avec : $unc_{12}, unc_{13}, unc_{23}$ sont respectivement les incertitudes de $f_{1,2}, f_{1,3}, f_{2,3}$

3.3.4 Flux Φ_{th} et $\Phi_{ép}$

Un flux neutronique désigne une densité volumique de neutrons ayant la même vitesse. On les regroupe généralement en trois groupes principaux qui se distinguent principalement par la

vitesse de leurs neutrons, il y a donc ainsi :

ϕ_{th} : Flux thermique qui est le flux des neutrons thermique ($Energie < 0,5eV$).

ϕ_{ep} : Le flux épithermique qui représente le flux des neutrons à moyenne et petite vitesse ($0,5eV < Energie < 10keV$).

ϕ_{rap} : Le flux rapide ($Energie > 10keV$).

— Calcul des flux

La méthode classique utilisée pour le calcul des flux aux positions d'irradiations utilisées au sein du laboratoire d'AAN consiste à irradier un moniteur sans Cadmium (Cd) puis avec (Cd) et à effectuer par la suite le calcul suivant :

* Irradiation avec Cd

$$\phi_{ep} = \frac{\lambda C.M_a(t_r/t_L)}{m_{Au}I_\gamma \varepsilon_\gamma N_{Av} \theta (1 - e^{-\lambda t_i})(1 - e^{-\lambda t_L})e^{-\lambda t_r}} \quad (3.20)$$

* Irradiation sans Cd

$$\phi_{th} = \frac{\lambda C.M_a(t_r/t_L)}{m_{Au}I_\gamma \sigma_{eff} \varepsilon_\gamma N_{Av} \theta (1 - e^{-\lambda t_i})(1 - e^{-\lambda t_L})e^{-\lambda t_r}} - I_0 \phi_{ep} \quad (3.21)$$

Vu que l'utilisation du Cadmium peut engendrer des effets négatifs sur le comportement du réacteur qui peuvent influencer son pilotage, la méthode que nous adoptons au CENM consiste à utiliser f pour le calcul des flux :

1. Dans le cas de l'irradiation du moniteur de l'Or (Au), le flux thermique peut être calculé facilement par cette formule :

$$\phi_{th} = \frac{\lambda.C.M_a(t_r/t_L)}{m_{Au}I_\gamma \sigma_{eff} \varepsilon_\gamma N_{Av} \theta (1 - e^{-\lambda t_i})(1 - e^{-\lambda t_L})e^{-\lambda t_r}} \quad (3.22)$$

Donc le flux épithermique peut être déterminé par : $\phi_{ep} = \phi_{th}/f$

f est déterminé par la méthode évoquées dans la section 3.3.3

2. S'il s'agit d'une irradiation d'un autre mono moniteur que celui de l'Or, le flux thermique est obtenu par :

$$\phi_{th} = \frac{f.x}{f.\sigma + I_0} \quad (3.23)$$

Avec

$$x = \frac{\lambda C.(t_r/t_L)}{I_\gamma \varepsilon_\gamma N_0 (1 - e^{-\lambda t_i})(1 - e^{-\lambda t_L})e^{-\lambda t_r}} \quad (3.24)$$

N_0 : Nombre d'atome du mono moniteur irradié

Pour des fins d'optimisation on calcule les flux simultanément lors du calcul de f ; C'est-à-dire exploiter les résultats du comptage de la même irradiation, soit en utilisant la formule citée ci-dessus dans le premier cas, s'il y a une irradiation avec l'Or (l'un des trois moniteurs utilisés est celui de l'Or); Soit celle du deuxième cas si le moniteur utilisé n'est pas l'Or.

3.4 Résultats et validation

3.4.1 Résultats

Pour la détermination de f et α dans les positions d'irradiation, nous avons utilisé dans notre cas uniquement l'irradiation sans couvertures en Cd c'est-à-dire la technique "à moniteur nu" avec un ensemble de moniteurs $Al(99,9\%) - Au(0,1\%)$, $Zr(99,8\%)$ et $Ni(99,8\%)$.

Les moniteurs de flux $Zr - Ni - Au$ ont été préparés sous forme de feuilles métalliques. Le fil $Al - Au$ a été pastillé dans ce cas. Les feuilles de Zr et de Ni avaient été pliées en deux et insérées dans des capsules d'échantillons individuelles, pour être irradiées ensemble dans la même navette. Pour le comptage après irradiation, ces feuilles ont été à nouveau aplaties et placées côte à côte sur le détecteur.

Des moniteurs de flux liquide pipetés contenant du Mo , Au , Cr et Ni ont également été utilisés, ayant été préparés dans un laboratoire accrédité à partir de solutions certifiées du NIST obtenues en prélevant $50 \mu l$ de solutions de Mo , Au , Cr et Ni de $1000 ppm$ pour chacune et pipetées sur un papier filtre. Ces moniteurs ont été irradiés dans le système PTS et dans le RSR.

Dans le cas du PTS, des moniteurs de flux constitués de fil $Au - Al$, avec des feuilles de Zr et de Ni ont été irradiés pendant $15 min$ et mesurés pendant $30 min$ après un temps de décroissance de $3 jours$. Un filtre a été irradié également dans le même système pendant $15 min$ et mesuré pendant $3 h$ après un temps de décroissance de $2,5 h$. Un échantillon de soufre en poudre sublimée a été irradié aussi pendant $30 s$ et mesuré pendant $4 min$ après $5 min$ de temps de décroissance radioactive.

Pour la caractérisation du RSR, un autre moniteur composé de fil $Au - Al$, avec des feuilles de Zr et de Ni , un filtre et un fil $Al - Co$ ont été irradiés pendant $1 h$ et mesurés pendant $30 min$ après $3 jours$ de décroissance. Une poudre de soufre sublimée et un fil d' $Al - Co$ ont été utilisés comme moniteurs de flux pour des irradiations courtes et longues avec des matériaux de référence pour la validation de la méthode k_0 .

Les résultats obtenus pour ϕ_{th} , ϕ_{rap} , f et α sont présentés dans les tableaux 3.5 et 3.6. Les paramètres f et α ainsi déterminés sont également utilisés pour déterminer les concentrations élémentaires dans divers matériaux de référence afin de vérifier la fiabilité de la méthode k_0 après son installation complète. Les valeurs du paramètre f déterminées sont différentes dans l'installation RSR et le PTS. Les tableaux 3.5 et 3.6 montrent les paramètres de flux obtenus respectivement pour ces deux positions. Le paramètre α dans le PTS et dans le RSR a une

valeur négative, qui est très petite et ne peut pas influencer de manière significative le résultat final obtenu par la méthode k_0 . Le paramètre f dans le RSR est plus élevé que dans le PTS. Cela peut s'expliquer par le fait que le RSR est situé dans le réflecteur en graphite et est relativement loin du cœur du réacteur, tandis que le PTS est proche du cœur. Les valeurs f mesurées montrent que les neutrons au PTS sont moins thermalisés qu'au RSR.

Tableau 3.5 – Les paramètres ϕ_{th} , ϕ_{rap} , f et α mesurés pour le PTS

Code	Description	$\phi_{th} cm^{-2} s^{-1}$	Inc. (%)	f	Inc. (%)	α	Inc. (%)	$\phi_{rap} cm^{-2} s^{-1}$	Inc. (%)
CI1	<i>Mo, Au, Cr</i> et <i>Ni</i> (filtre)	$5,87E^{+12}$	0,5	20,0	0,9	-0,013	0,009	$1,84E^{+11}$	2,1
CI2	<i>Au, Zr, Ni</i>	$6,35E^{+12}$	1,4	23,0	1,1	-0,022	0,007	$2,46E^{+11}$	1,4
CI3	<i>Au, Zr, Ni</i>	$6,27E^{+12}$	1,4	23,7	1,2	-0,018	0,007	$2,35E^{+11}$	1,4
CI4	<i>Au, Zr, Ni</i>	$6,33E^{+12}$	1,4	22,8	1,0	-0,019	0,006	$2,45E^{+11}$	1,3
CI5	<i>Au, Zr, Ni</i>	$6,23E^{+12}$	1,4	24,6	1,1	-0,025	0,006	$2,34E^{+11}$	1,4
CI6	<i>S</i> (poudre)	$6,55E^{+12}$	2,2	—	—	—	—	—	—
CI7	<i>S</i> (poudre)	$5,77E^{+12}$	1,9	—	—	—	—	—	—

Les valeurs du paramètre f mesurées dans le PTS par les moniteurs à base d'*Au, Zr* et *Ni* sont comprises dans la plage 22,8 – 24,6, indiquant un niveau de cohérence par rapport à la valeur de $f=20$ trouvée par le moniteur de flux préparé à base de *Mo, Au, Cr* et *Ni* dans des filtres avec un écart-type relatif de 3,16%. Cet écart est dû probablement à la différence entre les épaisseurs des moniteurs, soulignant que les solutions de moniteurs de flux déposées sur le filtre ne mesurent que 2 mm d'épaisseur qui se traduit pas une autoabsorption insignifiante des rayons gamma, alors que les feuilles de *Ni* utilisées s'étendaient jusqu'à 9 ou 10 mm. Une tentative a été faite pour déterminer si le flux rapide dans l'installation d'irradiation PTS présente un gradient qui dépend de la profondeur de l'installation. À cette fin, 5 cm de feuille de *Ni* en métal a été irradiée pendant 5 min, coupée en courtes bande de 2,5 mm après 24 h de décroissance radioactive, et chaque bande a été comptée dans la même distance du détecteur. Les résultats ont été établis avec 2% de précision et ont révélés qu'aucun gradient pour les valeurs des deux flux rapide ou thermique avez lieu. La valeur de flux thermique observée à travers la réaction $^{64}Ni \rightarrow ^{65}Ni$ est de $5,59 \cdot 10^{12} cm^{-2} s^{-1} \pm 2\%$, et celle correspondante au flux rapide était de $2,28 \cdot 10^{12} cm^{-2} s^{-1} \pm 2,5\%$.

Les valeurs expérimentales de α sont toutes dans les plages négatives. Fondamentalement, comme mentionner dans la section 3.3.2, la valeur α est l'écart du spectre neutronique par rapport à la distribution idéale de la loi $1/E$ du flux épithermique (ϕ_{ep}). Cela dépend de la configuration du réacteur et sa valeur augmente avec la distance entre l'installation d'irradiation et le cœur du réacteur. On peut conclure qu'une thermalisation plus élevée est associée à une valeur positive

de α plus élevée et une mauvaise thermalisation provoquera une valeur négative de α .

Le tableau 3.6 montre également les valeurs des flux de neutrons thermiques (ϕ_{th}) et rapides (ϕ_{rap}) mesurées au RSR. Dans le tableau 3.5, les variations du flux de neutrons thermiques calculées (ϕ_{th}) dans le PTS varient de 0,50 à 2,20%, tandis que les flux de neutrons rapides (ϕ_{rap}) varient de 1,30 à 2,10%, respectivement. D'autre part dans le tableau 3.6, les variations du flux de neutrons thermiques mesurées (ϕ_{th}) dans le RSR varient de 0,50 à 1,20%, tandis que celles des flux de neutrons rapides (ϕ_{rap}) observées s'étendent de 1,0 à 16%. Généralement, les neutrons thermiques sont préférés dans la méthode k_0 -AANI car l'énergie des neutrons ne changent pas de façon significative lors d'une collision ultérieure avec la matière, de sorte que les échantillons et les comparateurs sont exposés à un environnement, soi-disant, uniforme ayant une densité neutronique homogène. De plus, les neutrons thermiques induisent des réactions (n, γ) ayant des sections efficaces importantes qui donnent naissance à de nombreux nucléides stables avec un nombre de protons > 15 . En revanche, une mauvaise thermalisation peut donner des réactions considérées parasite telles que (n, p) et (n, α) et peut éventuellement affecter la précision des résultats.

Tableau 3.6 – Les paramètres ϕ_{th} , ϕ_{rap} , f et α mesurés pour le RSR

Monitor	Description	$\phi_{th} cm^{-2} s^{-1}$	Inc. (%)	f	Inc. (%)	α	Inc. (%)	$\phi_{rap} cm^{-2} s^{-1}$	Inc. (%)
LI1	<i>Mo, Au, Cr, Ni</i>	$2,30E^{+12}$	1,2	38,3	1,3	-0,017	0,009	$3,50E^{+11}$	1,5
LI2	<i>Au, Zr, Ni</i>	$2,08E^{+12}$	1,0	37,6	0,6	-0,046	0,006	$3,30E^{+11}$	1,0
LI3	<i>Au, Zr, Ni</i>	$1,82E^{+12}$	1,0	36,1	0,6	-0,046	0,006	$2,60E^{+11}$	1,0
LI4	<i>Co</i>	$2,30E^{+12}$	0,5	—	—	—	—	$2,20E^{+11}$	5,0
LI5	<i>Co</i>	$1,97E^{+12}$	0,9	—	—	—	—	$2,10E^{+11}$	16,0

Les moniteurs de flux pipetés dans des filtres ainsi que les moniteurs de flux de soufre, dont les résultats de flux restent cohérents, montrent des valeurs divergentes par rapport aux autres moniteurs. Probablement, pour les moniteurs de soufre, le temps d'irradiation (32 s), le temps de décroissance (7 min) et / ou le temps de comptage (environ 4 min) n'étaient pas aussi bien contrôlés pour ceux-ci que pour les longues irradiations, et les mesures appliquées aux autres moniteurs de flux.

Les flux thermiques trouvés montrent une petite variation qui peut s'expliquer en partie par un gradient de flux important dans l'installation RSR. Les rapports du flux rapide / flux thermique mesurés avec le filtre est de 0,153 tandis que ceux mesurés avec les moniteurs LI2 et LI3 (*Zr – Ni – Au*) sont respectivement de 0,157 et 0,143 et semblent éventuellement correspondre à l'erreur expérimentale. La réaction $^{24}Al \rightarrow ^{24}Na$ observée dans les moniteurs de *Co – Al* produit toujours un flux rapide qui s'écarte fortement de la réaction $^{58}Ni \rightarrow ^{58}Co$.

3.4.2 Validation et analyses des résultats

3.4.2.1 Résultats de validation

La technique d'Analyse par Activation Neutronique est une méthode d'analyse des traces et d'ultra-traces ; De ce fait, l'analyste doit vérifier la précision des résultats obtenus en calculant les incertitudes de certains paramètres, la limite de détection et le $z - score$ de convolution des spectres. Ces notions sont détaillées dans la section 4.3.3

Une poudre de soufre et un fil *Al-Co* ont été utilisés comme moniteurs de flux pour les courtes et les longues irradiations avec des matériaux de référence pour la validation de la méthode k_0 .

Des matériaux de référence d'origine différente obtenus auprès de l'USGS (basalte BE-N, bauxite BX-N, biotite mica-Fe et granite GS-N) et de l'AIEA (Sol-7) ont été utilisés pour évaluer la validité de cette méthode dans notre laboratoire en analysant les concentrations élémentaires par rapport aux valeurs certifiées.

Une masse de 100 à 200 *mg* d'échantillons est pesée et placée dans un flacon en polyéthylène propre. Pour chaque échantillon, dix (10) aliquotes ont été préparées : 05 aliquotes pour les courtes irradiations (30 *s* à 1 *min*) à 250 *kW* de puissance et 05 aliquotes pour les longues irradiations (2 *h*) à 1 *MW* de puissance. Pour les courtes irradiations, chaque échantillon a été irradié avec un échantillon de soufre pure en poudre utilisé comme moniteur de flux et mesuré pendant 15 *min* après 10 *min* de refroidissement ; alors que pour les longues irradiations, chacun des deux échantillons a été groupé dans la même navette et mesuré pendant 1 *h* après 4 *jours* de décroissance radioactive.

— *Coefficient de variation :*

Le coefficient de variation est le rapport de l'écart-type à la moyenne. Plus sa valeur est élevée, plus la dispersion autour de la moyenne est grande. Il est calculé par la formule ci- dessous :

$$D1(\%) = [(X_{lab} - X_{cer})/X_{cer}] * 100$$

Avec :

X_{lab} : la valeur calculée

X_{cer} : la valeur certifiée

Les tableaux 3.7, 3.8, 3.9, 3.10 et 3.11 représentent les résultats calculés X_{lab} , pour chaque matériau standard de référence ainsi que les valeurs de concentrations certifiées X_{cer} en ppm et la valeur du coefficient de variation D1 en pourcentage (%).

A noter que ces valeurs calculées sont la moyenne des valeurs obtenues à partir des 10 aliquotes analysées pour chaque matériau standard de référence.

Tableau 3.7 – Concentrations des éléments analysés dans le Sol-7.

Éléments	Valeurs Mesurées (ppm)	Valeurs Certifiées (ppm)	D1(%)
<i>Sc</i>	8,04±0,28	8,30±0,53	1,2
<i>V</i>	61,7±3,7	66,0±3,5	-6,5
<i>Cr</i>	65,40±2,90	60,00±6,25	9
<i>Mn</i>	632±22	631,0±11,5	0,16
<i>Co</i>	8,79±0,43	8,90±0,43	-1,2
<i>Zn</i>	98,60±5,90	104±3	-5,2
<i>As</i>	13,50±0,60	13,40±0,43	0,8
<i>Sb</i>	1,61±0,05	1,70±0,10	-5,3
<i>Cs</i>	5,32±0,35	5,40±0,38	-1,5
<i>La</i>	27,10±0,90	28,0±0,5	-3,2
<i>Ce</i>	62,60±2,80	61,00±3,25	2,6
<i>Nd</i>	28,60±3,40	30±3	-4,7
<i>Sm</i>	4,88±0,17	5,10±0,18	4,3
<i>Tb</i>	0,63±0,06	0,60±0,10	5
<i>Yb</i>	2,26±0,08	2,40±0,18	-5,8
<i>Hf</i>	4,85±0,20	5,10±0,18	-4,9
<i>Th</i>	7,80±0,29	8,20±0,55	-4,9
<i>U</i>	2,42±0,11	2,60±0,28	-6,9

Tableau 3.8 – Concentrations des éléments analysés dans le Granite GS-N.

Éléments	Valeurs Mesurées (ppm)	Valeurs Certifiées (ppm)	D1(%)
<i>Na</i>	27530±1377	27898±1258	−1, 3
<i>K</i>	34450±4413	38429±1826	−10, 4
<i>Sc</i>	7, 06±0, 35	7, 30±0, 68	−3, 3
<i>Cr</i>	57, 92±3, 23	55, 00±2, 63	5, 3
<i>Fe</i>	26380±1345	26260±2262	0, 5
<i>Co</i>	65, 12±3, 45	65, 0±2, 7	0,2
<i>Zn</i>	42, 43±8, 15	48, 00±9, 05	−11, 6
<i>As</i>	1, 68±0, 08	1, 60±0, 11	5, 0
<i>Rb</i>	198±12, 69	185, 00±14, 39	7, 0
<i>Sr</i>	580±83, 52	570, 00±51, 63	1, 8
<i>Zr</i>	219, 80±43, 08	235, 00±33, 47	−6, 8
<i>Sb</i>	0, 75 ± 0, 10	0, 70±0, 06	7, 1
<i>Cs</i>	5, 31±0, 31	5, 40±0, 51	−1, 7
<i>Ba</i>	1373±81, 01	1400±44	−1, 9
<i>La</i>	75, 33±3, 77	75, 00±2, 70	0, 4
<i>Ce</i>	136, 50±6, 96	135±7	1, 1
<i>Nd</i>	52, 41±4, 87	49, 00±3, 54	7, 0
<i>Sm</i>	7, 80±0, 39	7, 50±0, 22	4, 0
<i>Eu</i>	1, 65±0, 11	1, 70±0, 16	−2, 9
<i>Yb</i>	1, 44±0, 15	1, 40±0, 15	2, 9
<i>Lu</i>	0, 18±0, 03	0, 22±0, 03	−18, 2
<i>Hf</i>	5, 81±0, 35	6, 20±0, 33	−6, 3

Concentrations des éléments analysés dans le Granite GS-N.			
Éléments	Valeurs Mesurées (ppm)	Valeurs Certifiées (ppm)	D1(%)
<i>Ta</i>	2,63 ± 0,18	2,60 ± 0,20	1,2
<i>Th</i>	40,84 ± 2,08	41,00 ± 3,50	-0,4
<i>U</i>	7,60 ± 1,46	7,50 ± 1,71	1,3

Tableau 3.9 – Concentrations des éléments analysés dans le Bauxite BX-N.

Éléments	Valeurs Mesurées (ppm)	Valeurs Certifiées (ppm)	D1(%)
<i>Sc</i>	58,81±2,75	60,00±2,58	-2,0
<i>Cr</i>	279,30±13,88	280,00±18,73	-0,3
<i>Fe</i>	160700±7545	162090±7800	-0,9
<i>Co</i>	32,29±1,89	30,00±8,28	7,6
<i>As</i>	110,80±5,90	115,00±2,24	-3,7
<i>Sb</i>	7,32±0,42	8,00±0,85	-8,5
<i>La</i>	344,50±15,53	355±19	-3,0
<i>Ce</i>	498,20±22,89	520,00±10,75	-4,2
<i>Nd</i>	162,60±10,11	163,00±7,63	-0,3
<i>Sm</i>	18,55±0,77	22,00±3,40	-15,7
<i>Eu</i>	3,98±0,19	4,40±0,53	-9,6
<i>Tb</i>	3,25±0,15	3,00±0,33	8,3
<i>Yb</i>	11,47±0,57	11,60±0,53	-1,1
<i>Lu</i>	1,75±0,08	1,80±0,11	-2,8
<i>Hf</i>	15,25±0,72	15,20±1,10	0,3

Concentrations des éléments déterminés dans le Bauxite BX-N.			
Éléments	Valeurs Mesurées (ppm)	Valeurs Certifiées (ppm)	D1(%)
<i>Ta</i>	4,72±0,33	4,60±0,21	2,6
<i>Th</i>	46,89±2,27	50,00±2,69	-6,2
<i>U</i>	8,61±0,76	8,80±0,61	-2,2

Tableau 3.10 – Concentrations des éléments analysés dans le Basalte BE-N.

Éléments	Valeurs Mesurées (ppm)	Valeurs Certifiées (ppm)	D1(%)
<i>Na</i>	24330,00±1435,47	23532±1702	3,4
<i>Sc</i>	22,59±1,13	22,0±1,5	2,7
<i>Cr</i>	361,40±18,43	360±12	0,4
<i>Fe</i>	51150,0±2557,5	52572±2340	-2,7
<i>Co</i>	60,80±3,34	60±2	1,3
<i>Zn</i>	122,60±25,62	120±13	2,2
<i>Rb</i>	47,43±6,02	47,0±8,8	0,9
<i>Sr</i>	1368,00±116,28	1370±100	-0,1
<i>Ba</i>	994,40±79,55	1025±125	0,0
<i>La</i>	82,08±4,19	82±3	0,1
<i>Ce</i>	152,90±7,95	152±6	0,6
<i>Nd</i>	68,42±6,84	67,0±2,6	2,1
<i>Sm</i>	11,80±0,64	12,20±0,60	-3,3
<i>Eu</i>	3,62±0,21	3,60±0,18	0,6
<i>Tb</i>	1,28±0,11	1,30±0,10	-1,5

Concentrations des éléments déterminés dans le Basalte BE-N.			
Éléments	Valeurs Mesurées (ppm)	Valeurs Certifiées (ppm)	D1(%)
<i>Yb</i>	1, 58±0, 13	1, 80±0, 20	−12, 2
<i>Hf</i>	5, 50±0, 39	5, 60±0, 37	−1, 8
<i>Ta</i>	5, 76±0, 32	5, 70±0, 40	1, 1
<i>Th</i>	10, 40±0, 62	10, 40±0, 65	0, 0
<i>U</i>	2, 65±0, 52	2, 40±0, 49	10, 4

Tableau 3.11 – Concentrations des éléments analysés dans le Biotite mica-Fe.

Éléments	Valeurs Mesurées (ppm)	Valeurs Certifiées (ppm)	D1(%)
<i>Na</i>	1980±101	2220±222	−10, 8
<i>K</i>	69740±3766	72625±2975	-4,0
<i>Sc</i>	15, 08±1, 03	14, 8±2, 0	1, 9
<i>Cr</i>	95, 47±5, 44	90±10	6, 1
<i>Fe</i>	153100±7655	147498±6240	3, 8
<i>Co</i>	22, 90±1, 28	23±2	−0, 4
<i>Zn</i>	1316±99	1300±80	0, 1
<i>Rb</i>	2212±113, 3	2200±80	1, 2
<i>Cs</i>	164, 90±8, 41	180±15	−8, 4
<i>La</i>	191, 00±9, 55	200±10	−4, 5
<i>Ce</i>	410, 50±20, 61	420±20	−2, 3
<i>Nd</i>	175, 10±10, 51	180±10	−2, 7
<i>Sm</i>	34, 84±3, 31	33±3	5, 6

Concentrations des éléments analysés dans le Biotite mica-Fe.			
Éléments	Valeurs Mesurées (ppm)	Valeurs Certifiées (ppm)	D1(%)
<i>Tb</i>	2,66±0,19	2,7±0,2	-1,5
<i>Yb</i>	3,65±0,18	3,5±0,3	4,3
<i>Hf</i>	24,71±1,29	26,0±1,5	-5,0
<i>Ta</i>	35,38±1,88	35±2	1,1
<i>Th</i>	155,20±7,92	150,00±11,45	3,5
<i>U</i>	75,11±4,36	80,00±4,83	-6,1

3.4.2.2 Interprétation et analyses

A travers l'étude effectuée sur les cinq matériaux standards de référence, nous avons pu déterminer 18 éléments pour le Sol-7, 25 éléments pour le Granite GS-N, 18 éléments dans les échantillons de Basalte BX-N, 20 éléments pour les échantillons de basalte BE-N et finalement 19 éléments sont détectés pour les échantillons de Biotite mica-Fe. Onze (11) éléments sont détectés simultanément dans les cinq matériaux standards de références analysés (*Sc, Cr, Co, La, Ce, Nd, Sm, Yb, Hf, Th* et *U*).

La plupart des éléments sont détectés pour deux ou trois MSRs, sauf le *V* qui est présent seulement dans les échantillons de Sol-7, et le *Zr* présent dans les échantillons de Granite.

En générale tous les éléments détectés sont présents dans les certificats des matériaux standards de référence avec leurs concentrations certifiées.

L'interprétation des résultats est effectuée en analysant les valeurs absolues du coefficient de variation D1. On se basant sur les critères ci-dessous, les valeurs calculées pour chaque élément détecté, permettent de classer les éléments selon trois catégories différentes :

résultat satisfaisant	: $0\% < D1 \leq 5\%$
résultat considéré comme discutable	: $5\% < D1 < 10\%$
résultat insatisfaisant	: $ D1 \geq 10\%$

Les figures 3.10, 3.11, 3.12, 3.13 et 3.14 représentent le facteur de variation D1 pour chaque matériau standard de référence. Le premier intervalle est présenté en vert, le deuxième en bleu et le 3^{ème} intervalle en rouge.

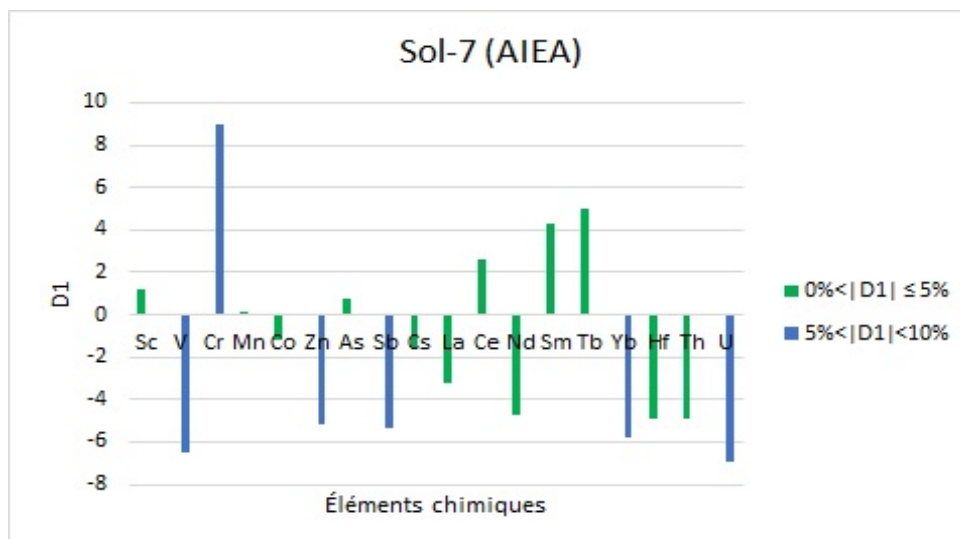


Figure 3.10 – Facteur de variation D1 pour le Sol-7 .

La figure 3.10 montre que le facteur de variation pour les éléments détectés dans les échantillons de Sol-7 reste inférieur à 10 %. La grande valeur correspondant à celle du *Cr* où $|D1|$ est de l'ordre de 9%. Dans cet intervalle de $|D1|$ inférieur à 10% et supérieur à 5% (2^{ème} intervalle), on trouve également le *V*, *Zn*, *Sb*, *Yb* et *U*. Pour le *Th*, *Hf*, *Tb*, *Nd*, *Sc*, *Mn*, *Co*, *As*, *Cs* et *La*, le coefficient de variation est inférieur à 5 % , ce qui les catégorise dans l'intervalle de satisfaction.

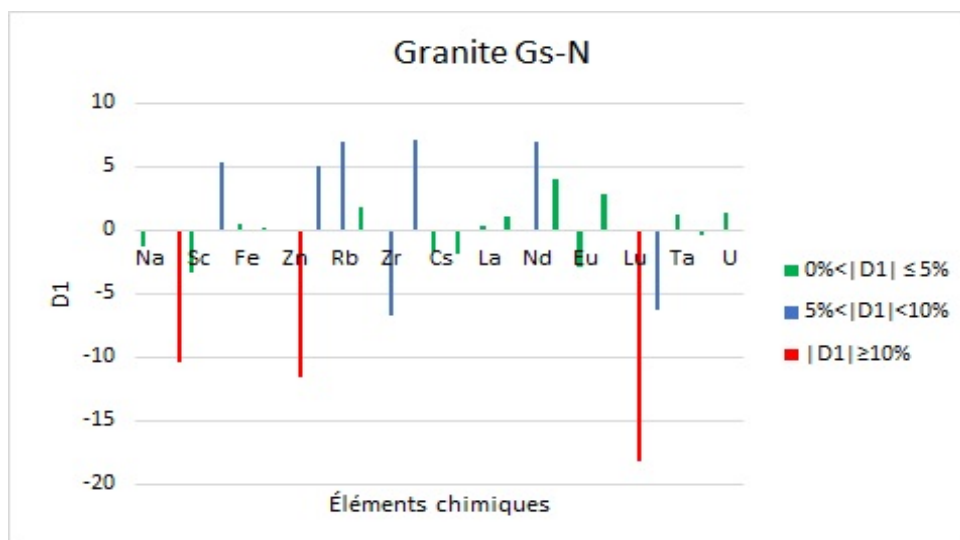


Figure 3.11 – Facteur de variation D1 pour le Granite Gs-N.

La figure 3.11 représente les valeurs de D1 pour les échantillons de Granite Gs-N. Le *K*, *Zn* et *Lu* ont un coefficient de variation supérieur à 10 % (*Lu* avec ($|D1| = 18,182$), le *Zn* ($|D1| = 11,604$) et le *K* ($|D1| = 103,54\%$); le *Cr*, *As*, *Rb*, *Zr*, *Sb*, *Nd* et *Hf* ont une valeur de D1 comprise entre 5 % et 10 %. Et finalement 15 éléments ont un coefficient de variation inférieur à 5% tels que le *Na*, *Sc*, *Fe*, *U*, *Th*, *Ta*...

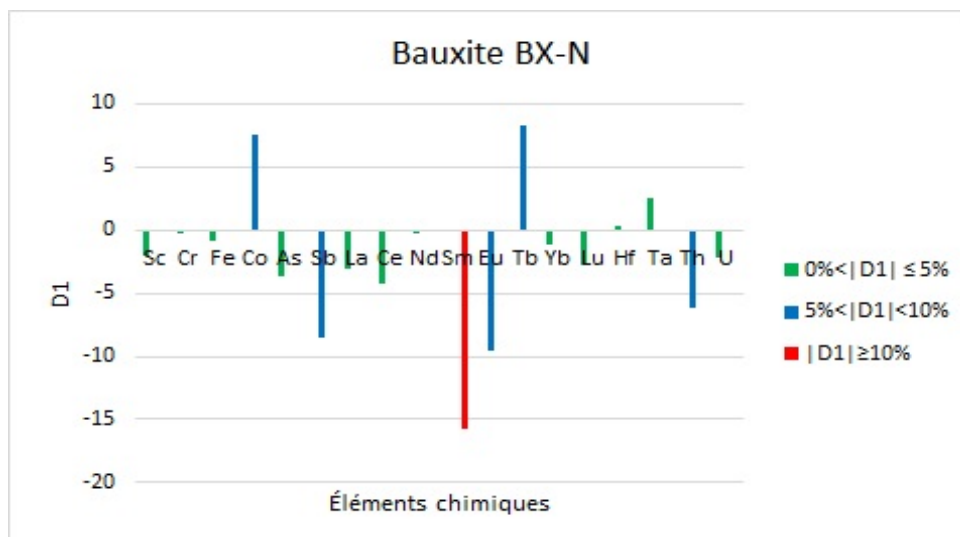


Figure 3.12 – Facteur de variation D1 pour le Bauxite BX-N.

Pour les échantillons de Bauxite (Figure 3.12), le *Sm* est le seul élément ayant un coefficient de variation supérieur à 10 %, le deuxième intervalle contient 5 éléments à savoir le *Co*, *Sb*, *Eu*, *Tb* et *Th*. La majorité des éléments ont une valeur de D1 inférieure à 5 %, (12 éléments).

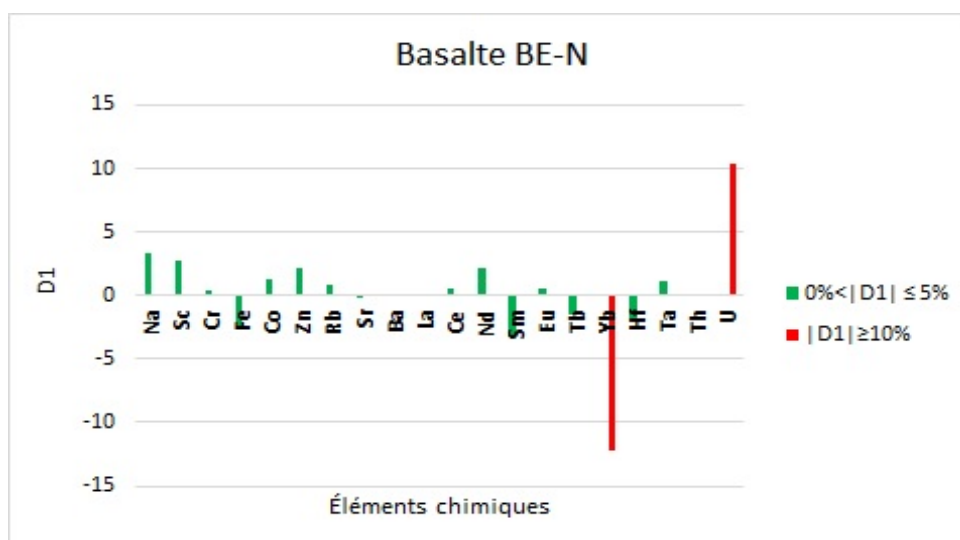


Figure 3.13 – Facteur de variation D1 pour le Basalte BE-N.

L'*U* et *Yb* détectés dans les échantillons de Basalte ont des valeurs absolues de *D1* supérieurs à 10 % et qui sont respectivement 10,416 % et 12,222 % (Figure 3.13). Le reste des éléments déterminés (18 éléments : *Cr*, *Co*, *Rb*, *Sr*, *Ba*, *La*, *Ce*...) ont des *D1* comprises dans l'intervalle [0 %; 5 %]. Le coefficient *D1* pour le *La*, *Ba* et *Th* est de l'ordre de 0 %.

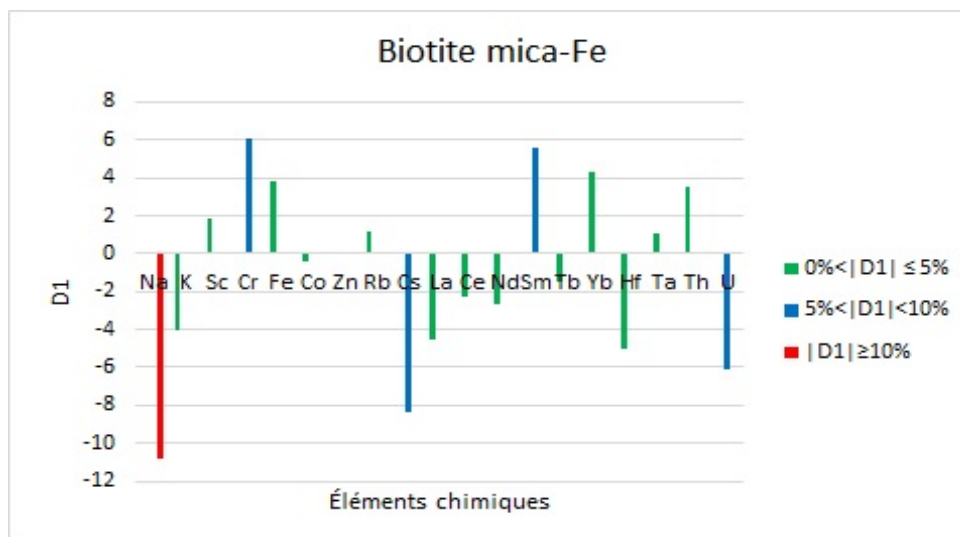


Figure 3.14 – Facteur de variation D1 pour le Biotite mica -Fe.

En ce qui concerne les échantillons de Biotite, les 14 éléments *Sc*, *Co*, *Zn*, *Rb*, *Tb* et *Hf*, représentent des résultats satisfaisants. Les résultats relatifs aux *Cr*, *Cs*, *Sm* et l'*U* doivent être discutés ; et finalement le *Na* seulement avec une valeur de D1 supérieur à 10% doit être écarté pour cette matrice (figure 3.14) .

En prenant chaque élément séparément, on remarque que la valeur du coefficient de variation varie selon la nature des échantillons. Par exemple, pour l'uranium, le D1 varie entre 1, 333 dans les échantillons de Granite GS-N et 10, 416 dans les échantillons de basalte BE-N.

En général, le coefficient de variation (*D1*) utilisé reste insuffisant pour valider et conclure la fiabilité des résultats expérimentaux, pour cela la participation aux tests de compétences inter-laboratoire (inter-comparaison) est nécessaire pour évaluer les performances de la méthode.

3.5 Conclusion

Les réalisations les plus importantes de ce travail sont la mise en œuvre et la validation de la méthode de normalisation k_0 dans l'analyse par activation neutronique à l'aide de K_0 -IAEA. Pour atteindre cet objectif, il était nécessaire d'étalonner le détecteur *Ge*(HP) utilisé dans la caractérisation, à savoir l'étalonnage en énergie, en efficacité et des largeurs à mi-hauteur « FWHM », tous en utilisant des sources radioactives ponctuelles. La caractérisation du flux neutronique dans les positions d'irradiation PTS et RSR a été réalisée en utilisant la méthode triple moniteur au zirconium nu.

D'une manière générale, on peut conclure qu'un accord a été trouvé entre les teneurs en éléments déterminées dans ce travail et les valeurs certifiées et non certifiées pour les Matériaux de référence dans la grande majorité des cas. Ainsi, la méthode de normalisation k_0 de l'AAN a été mise en œuvre et validée avec succès avec l'utilisation du programme K_0 -IAEA. Malgré que cette validation interne s'avère un maillon fort pour notre laboratoire, une évaluation des

performances du laboratoire par la participation aux tests d'inter-comparaison représente une avancé pour le processus d'accréditation, ce qui fait le sujet du chapitre suivant.

Performances du laboratoire d'AAN du CENM

4.1 Introduction

Le concept de QC / QA intégrant une validation interne et externe est considéré comme une étape avancée dans le cycle de vie d'une méthode analytique. Une évaluation indépendante régulière des performances techniques du laboratoire est nécessaire pour garantir la validité des mesures ou des tests et devrait faire partie d'une stratégie globale de qualité [63].

La validation interne (Chapitre 3) fait référence aux procédures entreprises par le personnel du laboratoire pour la surveillance continue des opérations et des résultats de mesure afin de décider si les résultats sont suffisamment fiables pour être publiés [64]. Cela comprend l'analyse répétée d'échantillons d'essai stables, de blancs, de solutions standards ou standards ou de matériaux similaires à ceux utilisés pour l'étalonnage, les échantillons enrichis, les échantillons 'aveugles' et les échantillons du QC. L'utilisation de cartes de contrôle est recommandée, en particulier pour le suivi des résultats obtenus à partir de l'analyse d'échantillons QC [64].

Tests de compétence : La participation régulière au programme d'inter-comparaisons (PT), également connue sous le nom d'évaluation externe de la qualité, est un moyen reconnu pour un laboratoire de surveiller ses performances par rapport à ses propres exigences et à la norme des laboratoires pairs. Le PT aide à mettre en évidence les variations entre laboratoires (reproductibilité) et, dans certaines circonstances, les erreurs systématiques (biais). Les programmes de PT et d'autres types de comparaison inter-laboratoires sont acceptés comme étant un moyen important de surveiller le degré d'équivalence des résultats de mesure aux niveaux national et international [64].

Des matériaux d'essai, en générale homogène, caractérisés avec des valeurs cibles de fractions massiques bien connues d'analytes ? sont distribués aux laboratoires participants. Les laboratoires analysent les échantillons en utilisant des techniques établies suivant leurs procédures analytiques. Sur la base des résultats du test de compétence, chaque laboratoire participant devrait évaluer ses performances analytiques en utilisant les critères spécifiés et, le cas échéant, pour identifier les écarts et pour corriger les procédures analytiques adéquates.

Le laboratoire d'AAN du CENM a intégré dans son processus qualité cette approche des tests de compétence, qui est d'ailleurs considérée comme coutume annuelle, et participe annuellement aux tests de compétences organisés par l'AIEA. Les résultats soumis sont traités, regroupés par rapport aux analytes / laboratoires et comparés aux valeurs attribuées à l'analyte. L'évaluation s'effectue en analysant les valeurs des $z - scores$ et $u - scores$ (section 4.3.3), calculées pour

trois niveaux adaptés à l'usage. Les résultats obtenus ainsi que la description des procédures d'évaluation des données sont décrits dans ce chapitre.

4.2 Description des échantillons d'essai

Les matériaux d'essai, sujet de cette évaluation, sont : Plante terrestre « végétal », Matériau siliceux, Sédiment marin et Tissu animal préparés et testés par un laboratoire indépendant externe[65, 66]. Les matériaux en poudre, homogénéisés et séchés sont distribués à 50 laboratoires dans des flacons en plastique scellés, chaque flacon contenant au moins 2 g des échantillons d'essai. Les participants sont invités à effectuer la détermination des fractions massiques d'éléments chimiques dans les échantillons conformément à leurs procédures analytiques de routine. Ils sont également invités à déterminer la teneur en humidité du matériau en utilisant un échantillon séparé et à communiquer les résultats sur la base du poids sec. Un seul résultat par élément, par échantillon et par technique d'analyse doit être soumis. Chaque résultat doit être accompagné d'une estimation de son incertitude exprimée en un écart-type. Aucune restriction quant au nombre des éléments signalés n'a été imposée.

4.3 Détails de l'exercice

4.3.1 Protocole analytique

Des triplicatas ont été préparés à partir de chaque échantillon. Il est nécessaire de préparer les matériaux standards de références(MSR) et les moniteurs de flux tel l'Or pour la méthode K_0 . Les matériaux de référence comme Sédiment Marin (IAEA 433); Poisson Homogénéisé (IAEA-407), Feuilles De Tomate (NIST-1573a), et les matériaux de référence tels que le Sol (RM-AIEA-Sol-7) ont été utilisés pour déterminer les concentrations élémentaires qui font l'objet d'une procédure de contrôle qualité interne comme détaillé dans le chapitre 3. Tous les échantillons, moniteurs et standards ont été placés dans des flacons cylindriques en polyéthylène propres conçus pour résister aux longues irradiations. Les fils d'Or en alliage $Al-0,1\% Au$ de 0,5 mm de diamètre ont été préparés pour être utilisés comme moniteur de flux. L'acquisition des données est effectuée à l'aide du logiciel Génie-2k de Canberra [67]. Tous les spectres ont été traités avec le logiciel k_0 -IAEA qui est doté de sa propre routine de déconvolution. Pour obtenir des résultats reproductibles, comme recommandé dans la norme (ISO 3534-1), on a déterminé la teneur en humidité de chaque échantillon. Tous les matériaux ont été séchés, suivant les recommandations du guide EURACHEM / CITAC CG4 [60], pendant au moins 3 heures à 105°C et refroidis au dessiccateur avant la pesée. Les facteurs de masse sèche ont été déterminés pour tous les échantillons. Dans notre cas, la teneur en humidité est directement introduite en tant que valeurs d'entrée dans le programme k_0 -IAEA.

4.3.2 Détection : Calibration et mesures

Une source de ^{137}Cs de 40 kBq a été mesurée pour l'étalonnage du pic au total. La source de ^{137}Cs (40 kBq) a également été mesurée avec d'autres sources ^{152}Eu (42 kBq) certifiée par Areva à la distance la plus proche pour induire 19% de temps mort (DT). La source de ^{152}Eu a été comptée à toutes les distances disponible ainsi qu'au contact du détecteur. Pour toutes les mesures, une précision sur les valeurs des aires des pics inférieur à 1% à $1\,408\text{ keV}$ a été requise et obtenue. Les aires de pic et les courbes d'efficacité ont été déterminées à l'aide du logiciel k_0 -IAEA. On a adopté un mélange de la méthode proposée par De Felice et al. [68], où une mesure de par ex. ^{137}Cs est utilisée pour déterminer entièrement la courbe du pic au total, puis l'approche de Delft décrite plus en détail par Blaauw en 1993 [69] est utilisée pour l'ajustement de la courbe d'efficacité, en tenant compte de la sommation des coïncidences. Cette procédure devait être stable et applicable dans toutes ou la plupart des géométries de comptage utilisées dans l'AANI. Le traitement des spectres a été effectué par le logiciel k_0 -IAEA pour ces deux sources mesurées à des distances différentes du détecteur. Les mesures ont été obtenues en utilisant le logiciel d'acquisition Génie 2K. Les courbes d'efficacité ont été calculées pour la géométrie 217 mm (7K), avec un X^2 résultant de 0,9, ce qui est satisfaisant pour une telle géométrie.

4.3.3 Valeur attribuée et Ecart-type cible

Les valeurs attribuées X_A ont été définies en deux étapes. Pour une première évaluation, les valeurs de référence fournies par le fournisseur des matériaux, établies par un examen inter-laboratoires indépendant, ont été utilisées comme valeurs assignées.

Après avoir reçu les résultats de tous les participants, une évaluation de la distribution de leur densité a été effectuée. Pour les éléments sans valeurs bien caractérisées par le producteur (y compris tous les éléments pour lesquels les informations sur les valeurs étaient connues) mais ayant plus de 5 résultats valides rapportés et présentant une distribution normale, les valeurs médianes ont été utilisées comme valeurs attribuées pour une deuxième évaluation.

Les $z - \text{scores}$ et $u - \text{scores}$ pour les éléments ayant une valeur d'information et pour lesquels il n'y avait pas plus de 5 résultats valides déclarés, n'ont pas été utilisés pour déterminer la performance globale du laboratoire. Cependant, afin de permettre une évaluation des résultats également pour ces éléments, les valeurs des informations sont rapportées dans les tableaux et marquées d'un «*».

Les participants à ce test de compétence ont soumis des résultats pour 38; 53; 50 et 49 analytes pour les matrices de Plante terrestre, de Matériau siliceux, de Sédiment marin et pour la matrice de Tissu animal respectivement. Les $z - \text{scores}$ et $u - \text{scores}$ ont été calculés pour tous les résultats soumis de tous les analytes, à l'exception de 12 éléments pour la Plante terrestre, 17 éléments pour le Matériau siliceux, 12 éléments pour le Sédiment marin et 16 éléments pour le Tissu animal pour lesquels les valeurs attribuées n'étaient pas disponibles.

Pour chaque analyte, une valeur cible de l'écart-type a été attribuée en utilisant la fonction de Horwitz modifiée comme recommandé dans la référence[70] :

$$H_A = \begin{cases} 0,22X_A & X_A < 1,2 \cdot 10^{-7} \\ 0,02(X_A)^{0,8495} & 1,2 \cdot 10^{-7} < X_A < 0,138 \\ 0,01\sqrt{X_A} & X_A > 0,138 \end{cases} \quad (4.1)$$

Dans Eq.(4.1) la valeur assignée de l'analyte, X_A , est exprimée en fraction massique. La valeur cible de l'écart-type, σ_A , est liée à H_A , par le facteur k :

$$\sigma_A = kH_A, \quad k = 0,5; 1,0; 1,5 \quad (4.2)$$

En fonction de la valeur du facteur k , la valeur cible de l'écart-type est reconnue comme adaptée à l'usage pour trois niveaux d'incertitude :

$k = 0,5$: approprié pour une analyse de haute précision.

$k = 1,0$: approprié pour une analyse de routine bien établie.

$k = 1,5$: satisfaisant pour les tâches analytiques courantes.

La valeur relative de l'écart-type cible, RSD, exprimée en pourcentage, est définie comme suit :

$$RSD = \frac{\sigma_A}{X_A} \cdot 100\% \quad (4.3)$$

La valeur relative de l'écart-type cible en fonction de la fraction de masse attribuée de l'analyte, X_A , est représentée sur la figure 4.1 pour les trois valeurs différentes du facteur k .

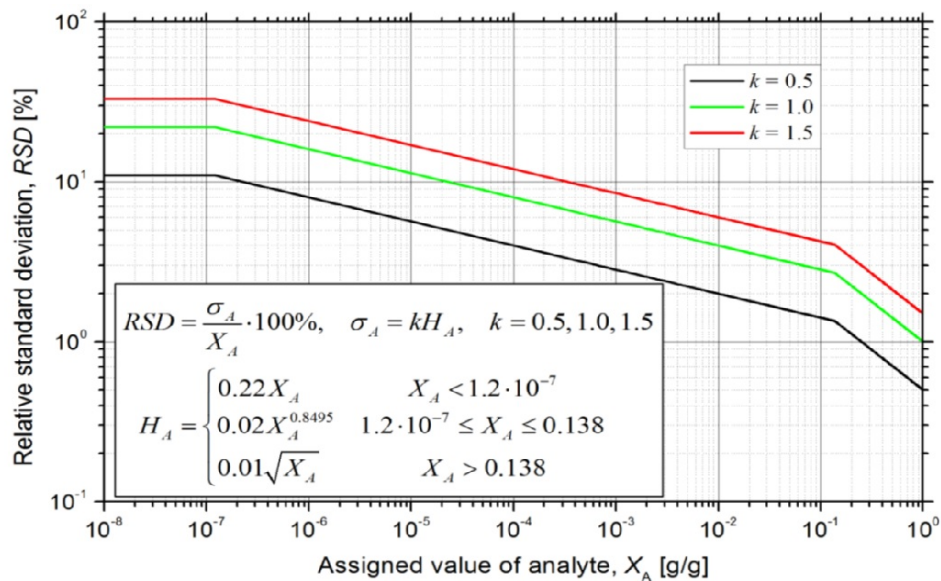


Figure 4.1 – Valeur relative de l'écart-type cible, RSD, en fonction de la fraction massique attribuée à l'analyte, X_A , calculée en utilisant la fonction Horwitz modifiée.

• z-scores et u-scores

Les concentrations rapportées d'analytes sont comparées avec les valeurs attribuées en utilisant l'analyse $z - score$. Pour chaque résultat, un $z - score$ a été calculé suivant la formule (4.4) :

$$z = \frac{x - X_A}{\sigma_A} \quad (4.4)$$

Le terme « x » désigne la fraction massique rapportée de l'analyte qui est définies par les différentes gammes adaptées à l'objectif de l'écart-type cible. Trois valeurs différentes des $z - scores$ ont été calculées en combinant les équations (4.2) et (4.4). En supposant que les valeurs appropriées pour X_A et σ_A ont été utilisées et que la distribution sous-jacente des erreurs analytiques est normale, à l'exception des valeurs aberrantes. Dans un système analytique bien comporté, les $z - scores$ devraient se situer en dehors de la plage $-2 < z < 2$ dans environ 4,6% des cas, et en dehors de la plage $-3 < z < 3$ seulement dans environ 0,3 %. Par conséquent, sur la base des $z - scores$, les limites de décision suivantes ont été établies :

$$\left\{ \begin{array}{ll} |z| \leq 2 & \text{résultat satisfaisant.} \\ 2 < |z| < 3 & \text{résultat considéré comme discutable.} \\ 3 \leq |z| & \text{résultat jugé insatisfaisant.} \end{array} \right. \quad (4.5)$$

Les résultats rapportés étaient accompagnés de l'estimation standard de l'incertitude déterminée par le participant. Les valeurs ont été utilisées pour calculer les $u - scores$:

$$u = \frac{|x - X_A|}{\sqrt{(\sigma_A)^2 + (\sigma_x)^2}} \quad (4.6)$$

Le symbole « σ_x » indique l'incertitude standard du résultat soumis x . Si les hypothèses sur X_A et σ_A et sur la normalité des distributions sous-jacentes sont correctes et que l'estimation en laboratoire de σ_x prend en compte toutes les sources importantes d'incertitude, les $u - scores$ auraient une distribution normale tronquée avec une variance unitaire. Dans un système analytique bien comporté, seulement 0,1 % des u-scores se situeraient en dehors de la plage $u < 3,29$. Par conséquent, les limites de décision suivantes pour les $u - score$ ont été établies :

$$\left\{ \begin{array}{ll} u \leq 1,64 & \text{le résultat rapporté ne diffère pas de la valeur attribuée.} \\ 1,64 < u \leq 1,95 & \text{le résultat signalé ne diffère probablement pas de la valeur attribuée.} \\ 1,95 < u \leq 2,58 & \text{il n'est pas clair si les valeurs rapportées et attribuées diffèrent.} \\ 2,58 < u \leq 3,29 & \text{le résultat rapporté est probablement différent de la valeur attribuée.} \\ 3,29 < u & \text{le résultat déclaré diffère de la valeur attribuée.} \end{array} \right. \quad (4.7)$$

Les $u - scores$ sont particulièrement utiles pour décider si les critères de laboratoire adaptés à l'usage sont remplis. En comparant l'Eq.(4.4) et (4.6), on peut remarquer que pour les valeurs correspondantes de $u - score$ et $z - score$ l'inégalité suivante est toujours remplie :

$$u \leq |z| \quad (4.8)$$

Cela implique que si le $u - score$ est supérieur à 3, 29, la limite de décision pour le $z - score$ correspondant est également déclenchée et le laboratoire doit vérifier la procédure analytique et revoir l'estimation du budget d'incertitude. Si le $u - score$ reste inférieur à la valeur de 1,64 et que la limite de décision du $z - score$ est déclenchée ($|z| > 3$), le laboratoire doit réévaluer son statut d'ajustement pour cet analyte particulier.

4.4 Résultats et discussion

L'évaluation de la participation a été traitée selon les méthodes statistiques sophistiquées qui sont nécessaires pour obtenir des évaluations significatives. Le modèle choisi calcule les caractéristiques de la population (moyenne et écart-type) à partir d'ensembles de données expérimentales [65]. Le modèle utilise une estimation de la fonction de densité de probabilité du processus de mesure et calcule un ajustement optimal basé sur toutes les valeurs observées.

Les tableaux 4.1, 4.2, 4.3 et 4.4 énumèrent les concentrations des éléments analysés au sein du laboratoire d'AAN du CENM avec les valeurs des $z - scores$ et $u - scores$ correspondent soumises pour le matériau Plante terrestre, Matériau siliceux, Sédiment marin et le Tissu animal respectivement. Les résultats intégraux de tous les participants au dit test sont présentés anonymement dans [66] et [65]. Entre parenthèses, à côté du symbole d'élément, les valeurs attribuées de concentration d'élément et l'écart-type cible pour $k = 1$ sont présentées. Les $z - scores$ et $u - scores$ ont été calculés pour les trois gammes différentes adaptées à l'usage, telles que définies par l'équation (4.2) dans la section 4.3.3. Les résultats rejetés par les procédures de rejet des valeurs aberrantes ont été marqués d'un «*» dans la colonne x «Concentration de l'analyte».

L'identification des isotopes dans les quatre matrices étudiées est basée sur leur ou leurs raies les plus abondants comme tabulé dans l'appendice.

Tableau 4.1 – Résumé des résultats obtenus avec les z – scores et u – scores calculés pour le matériau Plante terrestre.

			Plante terrestre						
Elément	x	σ_x	RSD(%)	z – scores			u – scores		
				k = 0, 5	k = 1, 0	k = 1, 5	k = 0, 5	k = 1, 0	k = 1, 5
As	0, 088*	0,008	9,090	—	—	—	—	—	—
Br	0,142	0,003	2,110	0,13	0,07	0,04	0,13	0,07	0,04
Cr	4, 840*	0,132	2,730	390,91	195,45	130,30	35,68	35,25	34,55
La	0,015	0,005	33,330	−1, 07	−0, 53	−0, 36	0,37	0,32	0,27
Na	51,6	2,14	4,15	−1, 80	−0, 90	−0, 60	1,35	0,82	0,58
Sb	0, 118*	0,015	12,710	80,30	40,15	26,77	7,04	6,96	6,83
Sc	0,010	0,008	80,000	0	0	0	0	0	0

Tableau 4.2 – Résumé des résultats obtenus avec les z – scores et u – scores calculés pour le Matériau siliceux.

			Matériau Siliceux						
Elément	x	σ_x	RSD(%)	z – scores			u – scores		
				k = 0,5	k = 1,0	k = 1,5	k = 0,5	k = 1,0	k = 1,5
Al	5,23	0,22	4,21	0,62	0,31	0,21	0,21	0,18	0,15
Ca	8,33*	0,91	10,92	18,79	9,39	6,26	2,01	1,98	1,92
Fe	2,87	0,081	2,82	5,28	2,64	1,76	2,58	1,97	1,51
K	2,22	0,17	7,66	6,11	3,05	2,04	1,27	1,19	1,09
Na	2,56	0,085	3,32	4,31	2,15	1,44	1,9	1,51	1,19
As	12,30	0,10	0,81	1,16	0,58	0,39	1,14	0,58	0,39
Br	226,00	5,55	2,46	2,54	1,27	0,85	2,03	1,19	0,82
Ce	67,00	1,82	2,72	2,24	1,12	0,75	1,84	1,06	0,73

			Matériau Siliceux						
Elément	x	σ_x	RSD(%)	z – scores			u – scores		
				k = 0,5	k = 1,0	k = 1,5	k = 0,5	k = 1,0	k = 1,5
Cl	19800,00	890,00	4,49	−2,94	−1,47	−0,98	1,14	0,95	0,77
Co	9,74	0,25	2,57	1,02	0,51	0,34	0,93	0,50	0,34
Cr	94,3	2,21	2,34	6,4	3,2	2,13	5,21	3,01	2,07
Cs	3,75	0,18	4,80	0,08	0,04	0,03	0,07	0,04	0,03
Eu	0,995	0,005	0,500	−0,98	−0,49	−0,33	0,98	0,49	0,33
Hf	6,27	0,33	5,26	0,19	0,09	0,06	0,14	0,09	0,06
La	31,500	0,707	2,240	0,90	0,45	0,30	0,81	0,44	0,3
Nd	34,40*	1,08	3,14	6,29	3,14	2,10	4,82	2,9	2,02
Rb	94,80	2,32	2,45	3,79	1,89	1,26	3,12	1,79	1,23
Sc	8,730	0,109	1,250	0,7	0,35	0,23	0,68	0,35	0,23
Si	234150	31945	14	—	—	—	—	—	—
Sm	5,000	0,221	4,420	0,19	0,1	0,06	0,16	0,09	0,06
Ta	1,110	0,087	7,840	2,71	1,35	0,9	1,75	1,17	0,84
Tb	0,594	0,038	6,400	−0,67	−0,33	−0,22	0,55	0,31	0,22
Th	8,750	0,158	1,810	0,08	0,04	0,03	0,08	0,04	0,03
U	2,380	0,175	7,350	−0,24	−0,12	−0,08	0,16	0,1	0,07
V	7,12*	0,25	3,51	−21,52	−10,76	−7,17	21,45	10,75	7,17
Yb	2,38	0,23	9,75	1,57	0,79	0,52	0,86	0,63	0,47
Zn	156	16	11	2,88	1,44	0,96	0,9	0,79	0,67

Tableau 4.3 – Résumé des résultats obtenus avec les z-scores et u-scores calculés pour le matériau Sédiment marin.

			Sédiment marin						
Elément	x	σ_x	RSD(%)	z-scores			u – scores		
				k = 0,5	k = 1,0	k = 1,5	k = 0,5	k = 1,0	k = 1,5
Ca	4,246	0,585	13,780	0,68	0,34	0,23	0,08	0,08	0,07
Fe	4,820	0,241	5,000	−1,67	−0,84	−0,56	0,51	0,45	0,39
K	0,831	0,058	6,980	−3,1	−1,55	−1,03	0,92	0,82	0,71
Na	2,814	0,704	25,020	−2,27	−1,13	−0,76	0,16	0,16	0,16
As	2,814	0,704	25,020	−2,27	−1,13	−0,76	0,16	0,16	0,16
Br	6,55	0,62	9,47	1,10	0,55	0,37	0,57	0,42	0,32
Ce	52,73	2,64	5,01	0,81	0,41	0,27	0,53	0,35	0,25
Co	16,4	2,1	13,0	1,77	0,89	0,59	0,62	0,53	0,44
Cs	0,980	0,245	25,000	−1,98	−0,99	−0,66	0,69	0,59	0,49
Eu	0,658	0,046	6,990	−1,32	−0,66	−0,44	1,06	0,62	0,43
Hf	2,760	0,221	8,010	1,49	0,75	0,5	0,92	0,63	0,46
La	6,505	0,325	5,000	−0,53	−0,27	−0,18	0,41	0,25	0,17
Rb	48,723*	7,796	16,000	15,17	7,58	5,06	2,61	2,5	2,34
Sb	0,723	0,181	25,030	1,85	0,92	0,62	0,52	0,47	0,41
Sc	33,178	0,998	3,010	−0,7	−0,35	−0,23	0,59	0,33	0,23
Sm	2,213	0,122	5,510	−0,29	−0,15	−0,1	0,23	0,14	0,09
Th	1,283	0,180	14,030	0,91	0,46	0,3	0,42	0,33	0,26
U	2,131	0,053	2,490	6,6	3,3	2,2	5,92	3,2	2,17
Yb	2,033	0,223	10,970	2,41	1,21	0,8	1,2	0,91	0,69

Tableau 4.4 – Résumé des résultats obtenus avec les z-scores et u-scores calculés pour le matériau Tissu animal.

			Tissu animal						
Elément	x	σ_x	RSD(%)	z-scores			u – scores		
				k = 0, 5	k = 1, 0	k = 1, 5	k = 0, 5	k = 1, 0	k = 1, 5
Ag	7,594	0,683	8,990	−6, 5	−3, 25	−2, 17	4,49	2,88	2,05
As	15,4	1,5	10,0	−2, 72	−1, 36	−0, 91	1,4	1,05	0,79
Br	460,7	13,8	3,0	−1, 02	−0, 51	−0, 34	0,75	0,46	0,32
Ce	2,09	0,52	25,02	1,18	0,59	0,39	0,3	0,28	0,25
Co	1,596	0,088	5,510	−1, 25	−0, 62	−0, 42	1,03	0,59	0,41
Cr	11, 65*	1,01	8,70	19,88	9,94	6,63	6,06	5,36	4,59
Cs	0,271	0,046	16,970	−0, 15	−0, 07	−0, 05	0,08	0,06	0,04
Fe	1056,7	52,8	5,0	−0, 45	−0, 22	−0, 15	0,22	0,17	0,13
K	11537,5	1269,1	11,0	−3, 76	−1, 88	−1, 25	0,7	0,67	0, 62 =
La	1,045	0,146	13,970	−0, 04	−0, 02	−0, 01	0,02	0,01	0,01
Na	38975,1	1169,2	3,1	−5, 63	−2, 81	−1, 88	2,86	2,15	1,63
Sc	0,304	0,049	16,120	0	0	0	0	0	0
Sm	0,194	0,004	2,060	0,42	0,21	0,14	0,41	0,21	0,14
Th	0,401	0,056	13,970	0,03	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01
Zn	161,00	7,41	4,60	−0, 97	−0, 49	−0, 32	0,62	0,42	0,3

Les résultats obtenus (à un intervalle de confiance à 95% pour les quatre analyses répétées), ainsi que les valeurs certifiées / recommandées / informatives sont présentés dans les [66, 65]. L'exactitude et la précision de la méthodologie ont été évaluées en analysant les matériaux de référence, Feuilles de Pêcher (SRM 1547) pour les matériaux biologiques, le Sol-7 (AIEA) pour les matériaux de référence géologiques et le Sédiment de la Rivière Buffalo (NIST SRM2704) pour les sédiments marins de l'AIEA-433 en même temps que les tests d'essais. Le couplage a été effectué par type de matrice afin d'éliminer l'effet du facteur d'autoabsorption et d'auto-protection [71]. Tous les éléments dont les résultats de concentration révèlent un écart relatif supérieur à 10% ont été écartés de l'inter-comparaison à la source. Les figures 4.2, 4.3, 4.4, 4.5 montrent la différence normalisée ou le z – score pour chaque élément dans les matériaux analysés. L'écart-type cible (σ_b) a été choisi en considérant que le laboratoire devrait avoir un biais relatif égal ou supérieur à 25% ($2 \sigma_b$, $\sigma_b = 12,5\%$). Une valeur fixe de σ_b a l'avantage que les z – scores qui en dérivent peuvent être comparés d'un cycle à l'autre pour montrer les tendances générales du laboratoire. Si $|Z| < 2$, la performance est jugée satisfaisante, montrant que l'écart relatif par rapport à la valeur recommandée est égal ou supérieur à 25%. Les z – scores de 2 à

3 indiquent que les résultats sont de qualité douteuse [72].

On observe que pour presque tous les éléments, $|Z| < 2$ et que les données étaient aléatoirement supérieures ou inférieures aux valeurs certifiées ou recommandées, ne montrant aucune erreur analytique systématique.

Dans la Plante terrestre, seuls le *Cr* et *Sb* ont présenté un $|Z| > 2$. Dans le cas de *Sb*, l'écart peut être attribué au faible niveau de concentration de cet élément, proche de la limite de détection. Le chrome nécessite une attention particulière vu son $z - score$ élevé. Les résultats obtenus pour les autres éléments ne diffèrent par des valeurs attribuées avec un $u - score$ inférieur à 1,64. En analysant le $z - score$ des concentrations mesurées des éléments, ces derniers ont été divisés en deux catégories. La première catégorie comporte les éléments qui peuvent être analysés à une très haute précision dans les matrices de plantes et qui assemble le *Br*, *La*, *Sc* et l'*Na*. Par contre le *Cr* et le *Sb*, qui présente la deuxième catégorie doivent être écartés des analyses. Une investigation poncée est nécessaire pour la détection de la source d'erreur et qui peut inclure l'effet d'autoabsorption de la matrice et des éventuelles interférences détaillées dans la section 2.7.5.

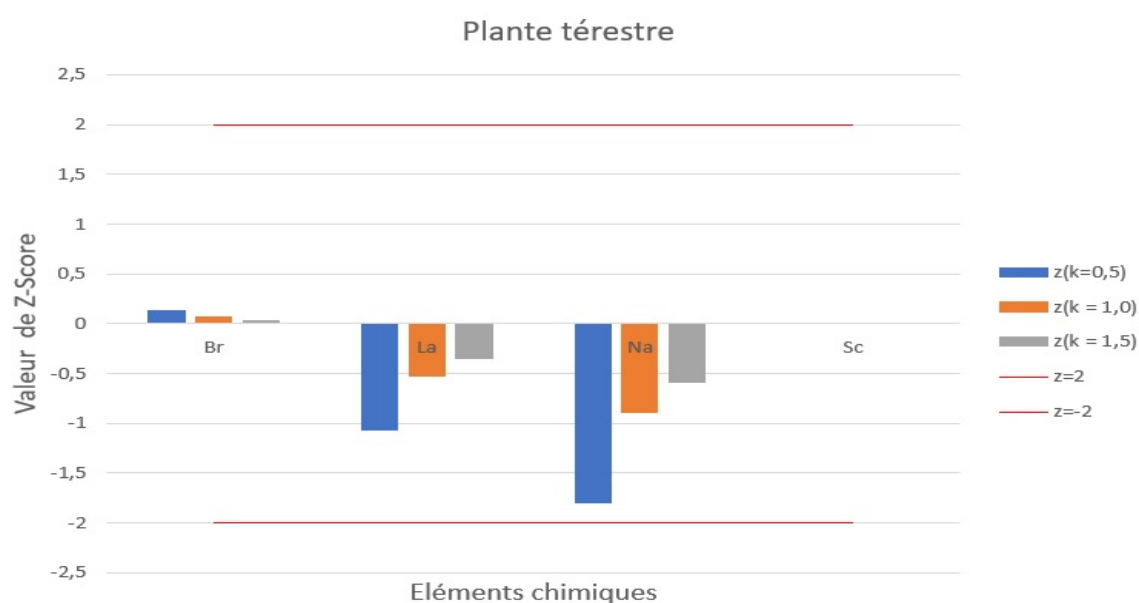


Figure 4.2 – Présentation graphique des z-scores pour les résultats de la plante terrestre .

Les résultats rapportés pour le Matériau siliceux sont présentés dans la figure 4.3. On peut remarquer que tous les 27 éléments présentent un $|Z| < 2$ à l'exception du *Ca*, *Nd* et *V*. Les éléments analysés ont été également groupés, cette fois-ci, en trois catégories. La première catégorie comporte les éléments qui peuvent être analysés à une très haute précision dans les matrices Siliceuse et qui assemble l' *Al*, *As*, *Co*, *Cs*, *Hf*, *La*, *Sc*, *Sm*, *Th* et *U*. Les éléments *Ce*, *Br*, *Cl*, *Rb*, *Ta* et *Zn* font partie du deuxième groupe qui représente ceux qui peuvent être caractérisés de façon routinière. Les éléments écartés qui nécessitent une attention, représentent la troisième catégorie (*Ca*, *Nd* et *V*).

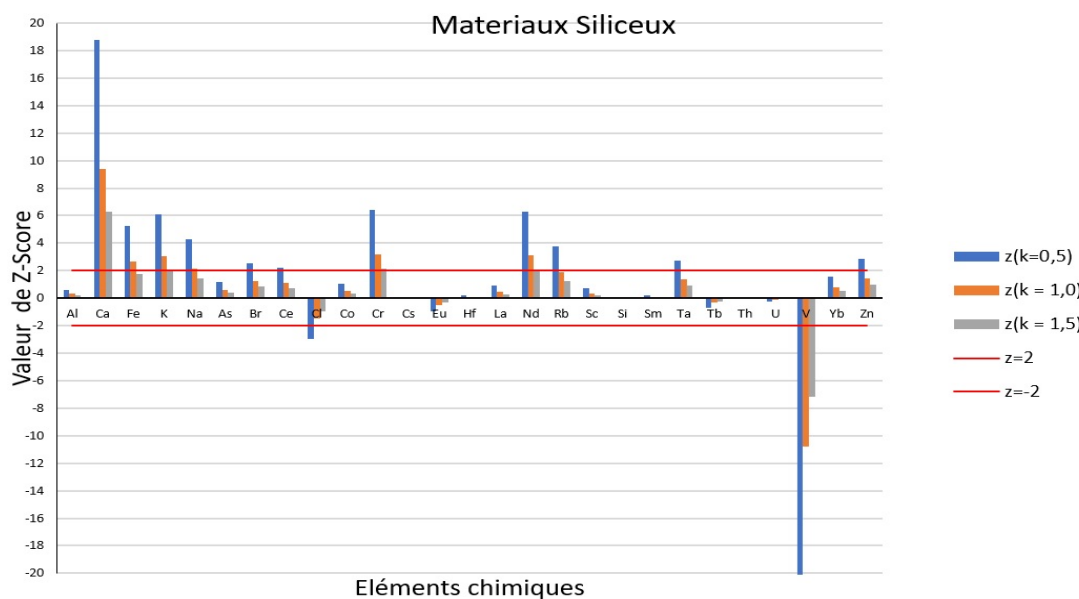


Figure 4.3 – Présentation graphique des z-scores pour les résultats du matériaux siliceux.

Les résultats rapportés pour le Sédiment marin sont présentés dans la figure 4.4. On peut remarquer que tous les 19 éléments présentent un $|Z| < 2$ à l'exception du *Rb* et l'*U*. Les éléments *Ca*, *Fe*, *As*, *Br*, *Ce*, *Co*, *Cs*, *Eu*, *Hf*, *La*, *Sb*, *Sc*, *Sm* et *Th* peuvent être analysés avec une très grande précision dans ce type de matrice. Le *K*, *Na* et le *Yb* peuvent être le sujet d'une analyse de routine. Par contre le *Rb* et l'*U* nécessitent une attention particulière afin de détecter les sources d'erreurs associées.

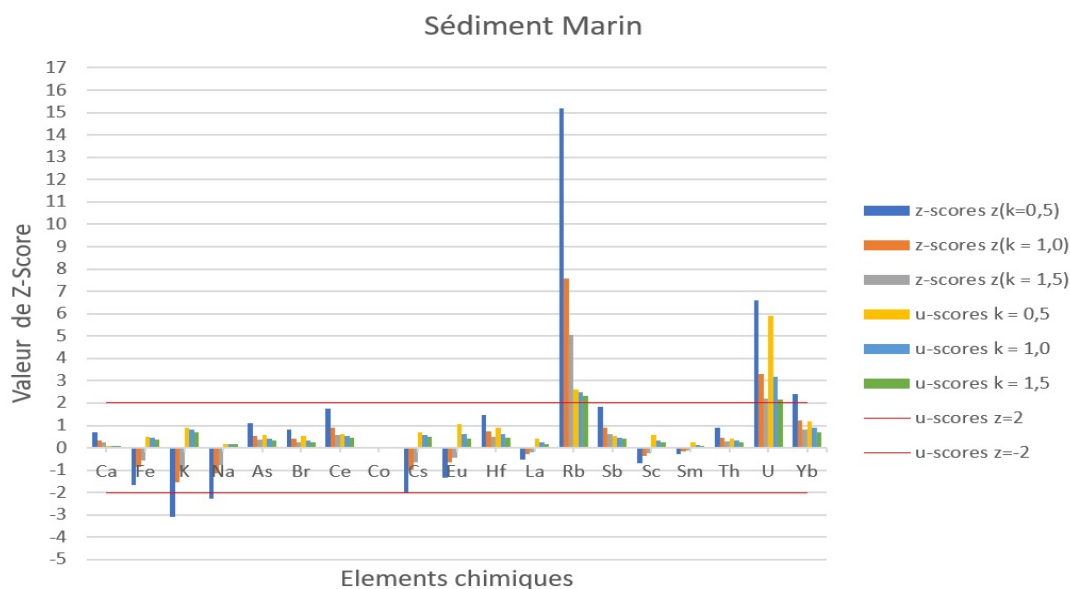


Figure 4.4 – Présentation graphique des z-scores pour les résultats du sédiment marin.

Les résultats rapportés pour le Tissu animal sont présentés dans la figure 4.5. On peut remarquer que tous les 15 éléments présentent un $|Z| < 2$ à l'exception du *Cr*. Les résultats du $z - score$ des éléments *Br*, *Ce*, *Co*, *Cs*, *Fe*, *La*, *Sc*, *Sm*, *Th* et le *Zn* ont démontrés que ces

éléments sont classés dans la catégorie des éléments à analyser, dans des matrices de tissu animal, avec une très grande précision. As et le K sont classés parmi ceux à analyser d'une façon routinière.

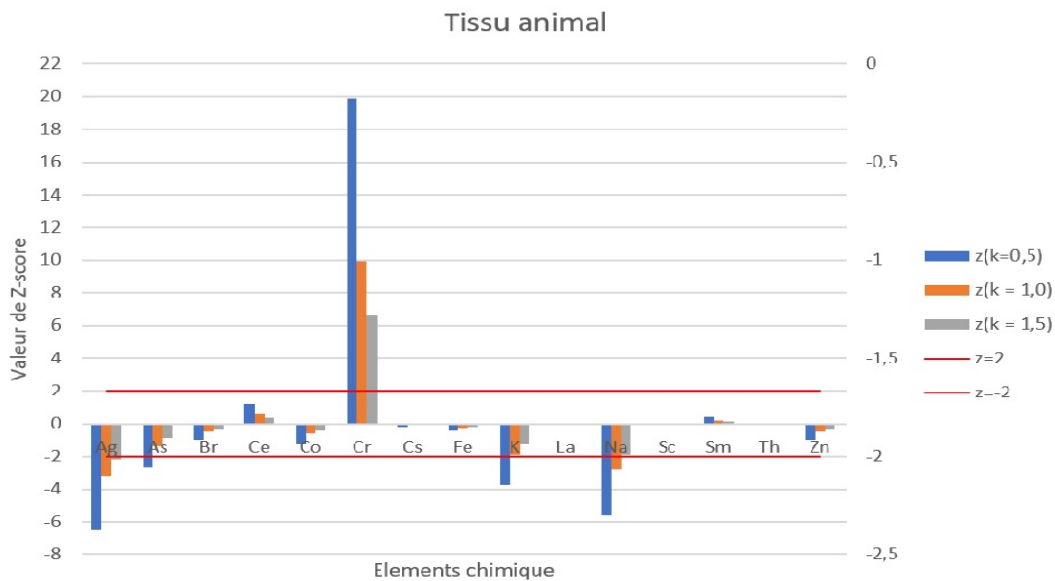


Figure 4.5 – Présentation graphique des z – scores pour les résultats du tissu animal.

4.5 Conclusions

Le programme PT est conçu pour compléter, et non remplacer, le programme de contrôle qualité (QC) interne d'un laboratoire. En outre, ce programme identifie des problèmes d'analyse que les contrôles internes du laboratoire ne révèlent pas.

En analysant les résultats obtenus au sein du laboratoire d'AAN du CENM, le taux de réussite est révélé important lors de ces tests. Cela indique que la calibration du système, comme l'éta-lonnage de la balance, la caractérisation des positions d'irradiation et des détecteurs $Ge(HP)$, a été effectuée avec soin.

Dans une projection à court terme du laboratoire en quête d'accréditation, ces mesures constituent un aspect important des exigences de la norme ISO 2027. Le PT joue un rôle très important car il fournit une preuve objective de la compétence du laboratoire. Ces preuves peuvent être utilisées pour améliorer ses performances et/ou donner une crédibilité confiante dans la capacité du laboratoire à effectuer une mesure spécifique.

Lors de la participation à des programmes de PT, il est très intéressant d'évaluer la qualité des résultats obtenus et de faire des comparaisons à différents stades. Ces tests ont révélé que le nombre de résultats satisfaisants exprimés par les z – scores acceptés est très important avec quelques éléments qui nécessitent une investigation approfondie afin de les intégrer dans la gamme analytique du laboratoire.

Étapes conceptuelles de mise en œuvre des instruments PGAA/NI marocains : ÉTAPE I & II

5.1 Résumé

La première installation autour du canal tangentiel du réacteur de recherche TRIGA Mark II comprend des instruments combinés pour l'analyse par activation neutronique par les gammas prompts (PGAA) et l'imagerie neutronique (NI). La mise en œuvre de ce projet se divise en trois étapes principales, à savoir l'installation du collimateur et de l'obturateur primaire du faisceau, qui est une section commune pour l'introduction à l'intérieur du réacteur ; l'installation des instruments du système PGAA ; et enfin, l'installation des instruments combinés PGAA/NI. Toute la conception a été planifiée pour ce projet, et des informations détaillées sur les composants de la première et la deuxième phase liées au système PGAA sont décrites dans ce chapitre.

5.2 Abstract

The first installation around the tangential beam tube of the Moroccan TRIGA Mark II research reactor comprises combined instruments for Prompt Gamma Neutron Activation Analysis (PGAA) and Neutron Imaging (NI). The implementation of this project is divided over three main stages, namely the installation of the collimator and the primary beam shutter, which is a common section for introduction inside the reactor ; the PGAA instruments' installation ; and finally, the installation of the PGAA/NI combined instruments. The entire design was planned for this project, and detailed information about the first and the second stage is described in this work.

Keywords : PGAA, neutron fluence rate, beam tube, reactor, collimator

5.3 Introduction

The Moroccan TRIGA Mark II research reactor at the National Center of Nuclear Energy, Sciences and Technology (CNESTEN) is equipped with four beam tubes (NB1, 2, 3 and 4) and a thermal column irradiation facility Figure 5.1. Ongoing upgrade activities around the reactor include the installation of nuclear instruments on the reactor's neutron beams to serve the needs

of some social and economic sectors in Morocco, such as for the environmental, archeological, geological, and industrial sectors. Nuclear instruments that are planned for the near future include Prompt Gamma Neutron Activation Analysis (PGAA), Neutron Imaging (NI) for non-destructive testing, and a Neutron Diffractometer (ND) for matter-based scientific research. The PGAA and NI are to be installed around the beam tube NB1, while the ND will be installed around the NB2 beam tube. The combination of the PGAA and NI instruments on the same (NB1) beam tube is based on beam quality and cost reduction thanks to the use of the same biological shielding. This will result in the use of two modes related to the PGAA (mode I) and the NI (mode II) instruments. For each operating mode, suitable components are positioned in front of the beam stream, as demonstrated in Figure 5.2. This figure illustrates both the common components and those related purely to each instrument mode. In order to simultaneously optimize the technical requirements of the two instruments, it was decided to subdivide the implementation of the two instruments into three stages. The first stage is to install the collimator plug inside the neutron beam and the primary beam shutter (items 2 and 3). The second step is the installation of a neutron guide, an irradiation chamber with *Ge*(HP) spectrometer, and a beam stop (items 4, 6, 7 and 9) with biological

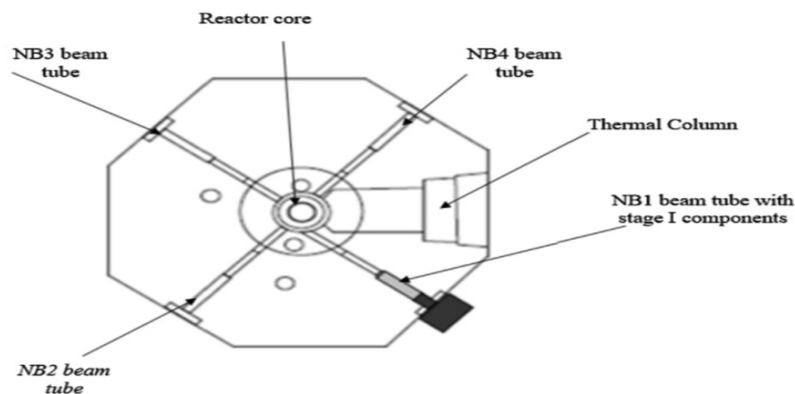


Figure 5.1 – Horizontal cross-section of the TRIGA Mark II research reactor with radial beam ports, including stage I components.

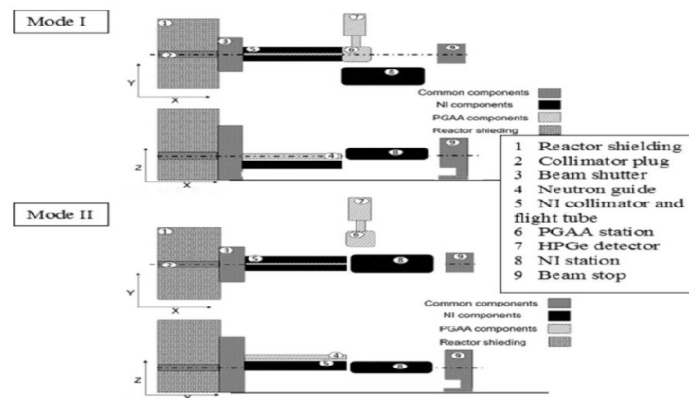


Figure 5.2 – Detailed vertical and horizontal cross-sections of the PGAA/NI components.

shielding. The third step involves the installation of the Neutron Imaging (NI) instrument including the pinhole collimator, the L/D exchanger, flight tubes I, and the NI station [73]. During this stage, a vertical translation system (see Figure 5.7) will be installed to shift between the neutron guide and the NI collimator and flight tube. The stations related to each mode, meanwhile, will be switched horizontally. The work presented below focuses on the first and the second stage detailed description and implementation.

5.4 PGAA/NI implementation stages

5.4.1 Stage I : Installation of the collimator plug and primary beam shutter

5.4.1.1 Collimator plug

The collimator makes it possible to produce a beam of neutrons that are almost parallel at the outlet of the beam tube, with just a small angle of divergence [74]. Equipped with a 10 *cm* sapphire filter, it reduces the fast and epithermal neutron components of the neutron beam emitted by the reactor core [75]. The collimator plug comprises three main blocks, which in turn consist of a succession of carbon steel rings (first block), a succession of high-density borated polyethylene (HDPE-Boron, second block), and a carbon steel fence disc (item 7 in Figure 5.3). The first block is made from a series of 10 *cm* thick carbon steel rings with an aperture diameter ranging from 5.60 *cm* to 6.80 *cm* to allow the neutron beam to pass through. Each ring is coated with a layer of nickel (a few microns thick) to protect against corrosion. These rings are tightly attached to each other to get a total length of 1 meter (item 1 in Figure 5.3). The exterior aperture of the ring, which is located on the reactor core side, is closed with a 1 *mm* thick aluminum window to help with evacuating the collimator, because a vacuum is essential for minimizing the scattering and attenuation of beam neutrons in the air. At the opening of the other end of the same carbon steel block, an aluminum tube (item 2 of Figure 5.3) is affixed to serve as a support upon which the aluminum filter holder is to be mounted (item 6 of Figure 5.3). This filter holder can accommodate two grade B1 sapphire (Al_2O_3) crystal filter units, each with a 5 *cm* diameter and a 5 *cm* length. This grade of sapphire was chosen based on previous studies that demonstrated its suitable neutron-transmission characteristics. This improves the thermal-to-epithermal and thermal-to-fast neutron ratios by a factor of approximately 7.5 and 8, respectively [76]. The second block comprises a succession of high-density borated polyethylene (HDPE-Boron) rings with a 19 *cm* diameter and enclosed by a 3 *mm* thick sheet of HDPE to minimize the gap between it and the beam tube. The assembly of the rings results in a length of approximately 35 *cm* and an aperture of 6.6 *cm* in diameter for the beam. The rings of the 2nd block are connected to those of the 1st block by stacking them on three rods (see item 4 in Figure 5.3) that are screwed into the last carbon steel ring of the first block. At the outer end of

the HDPE-Boron block, a carbon steel fence disc is inserted at the level of the reactor shielding limit. This disc's aperture has been designed to serve as a mounting bracket for the filter holder and the whole assembly's evacuation tube. This assembly is equipped with a pipe (item 8 of Figure 5.3) that connects the collimator's cavity with a vacuum pump. The whole assembly is 140 *cm* in length with an external diameter of around 19.8 *cm*.

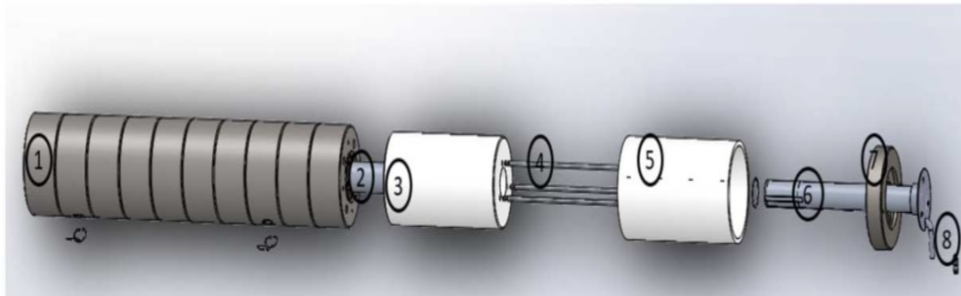


Figure 5.3 – Collimator plug detailed design.

5.4.1.1 Primary beam shutter

The role of the primary beam shutter is to open or close the neutron beam according to the operator's needs. It is positioned close to the reactor wall in front of the beam port. In a closed state, it must attenuate the radiation coming from the beam tube to a level that allows the operator to access the experimental area under the required safety conditions. The primary beam shutter, as shown in Figure 5.4, is a two-position system (i.e., opened or closed) that is operated through a pneumatic mechanism. The main components are a beam stop and a collimator aperture. The beam stop section, as described in Figure 5.5, is made from a succession of polyethylene and borated polyethylene where thermal flux is absorbed while the epithermal flux is moderated and absorbed, and steel layers attenuate fast neutrons [77, 78]. Borated polyethylene and thermal neutron shielding (80% B4C content) also surround this section to attenuate any divergent neutrons. Furthermore, a lead block is used for gamma shielding in both the beam's direction and laterally at the sides. When the primary beam shutter is in the open position, the collimator is placed in the neutron beam's path. The collimator's internal sizes are designed based on optimizing the neutron beam's geometry for the PGAA and NI instruments (see Figure 5.5). High-boron-content layers and lead surround all sides of the collimator, and in addition, some steel plates on the frame serve as additional gamma shielding. To attenuate the high-energy gamma radiation coming from the reactor core, the shutter is fitted with a 10 *cm* "bismuth" filter inserted at the entrance

to the collimator. This filter is also housed within an aluminum support to ensure its cooling at liquid nitrogen temperature. The bismuth filter efficiently reduces high-energy gamma rays originating from the core [79]. The beam shutter's design comprises a moving and a fix-frame fixed to the shutter support which in turn attached to a base plate. The shutter beam stop and collimator aperture are located in a moving frame whose upper side is connected to the fix-frame

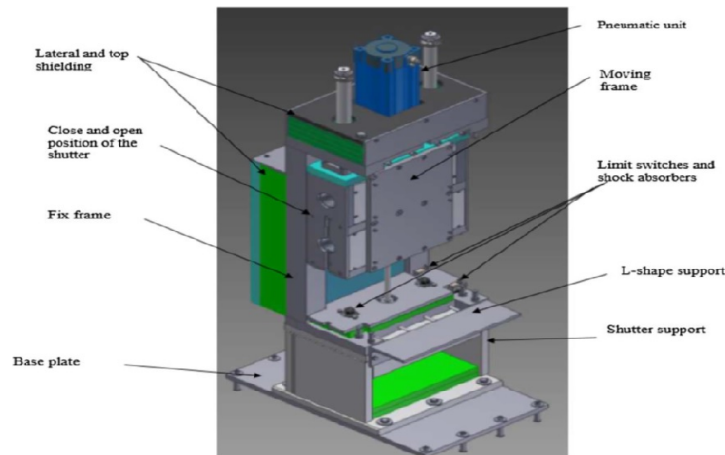


Figure 5.4 – Primary beam shutter detailed design.

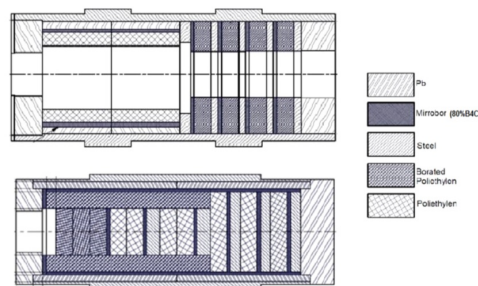


Figure 5.5 – Shutter beam stop and collimator aperture design and material composition.

through two linear ball bushing system (Figure 5.4). The down side position of this moving frame is determined by a steel shaft connected to the fix-frame through the shaft flange. The shutter fix-frame is strengthened with lateral and top shielding. Each lateral shielding consists of five shielding plates, four 25 mm thick polyethylene plates (in total 100 mm) and one 40 mm thick iron plate. The top shielding is of 120 mm total thickness and consists of five plates, four are polyethylene with 25 mm thickness each and on the top a 20 mm iron plate. Inside the shutter fix-frame, the moving part lower position is limited by the pneumatic cylinder's end position, limit switches and shock absorber, in the upper position by bumper screws and limit switches. The shock absorbers are mounted for smooth movement of the moving frame when the shutter is closed. Two limit switches are designed on the bottom and on the top plate for safety reason. The shutter support is a welded and fitted structure. Its connection with the base plate is realized with six screws. On the top plate, in longitudinal direction, two shutter metal plate guides are designed. Each guiding metal plate is fixed with three screws to the shutter support. To reduce the shutter support weight, the material used is aluminum. The lateral holder plates are chosen to be L-shape support to hold the lateral shielding units and position the upper part of the shutter. The base plate dimension is increased in lateral direction to reduce the weight distribution of the device on the floor.

5.4.2 Stage II : PGAA related instruments installation

The second stage, as illustrated in Figure 5.6, is dedicated to the mounting of the neutron guide, beam shaper, evacuated irradiation chamber, Compton suppressor detector assembly system, beam stop, and biological and instrumental shieldings.

5.4.2.1 Neutron guide

This four-meter-long and 100 mm (H) and 25 mm (W) cross-section (see Figure 5.8) neutron guide is used to guide neutrons, with a curvature radius of 266 m, into the irradiation chamber when in PGAA mode (see Figure 5.6). Supplied by Mirrotron Ltd., this guide comprises four units of $L = 1000$ mm long guide each.

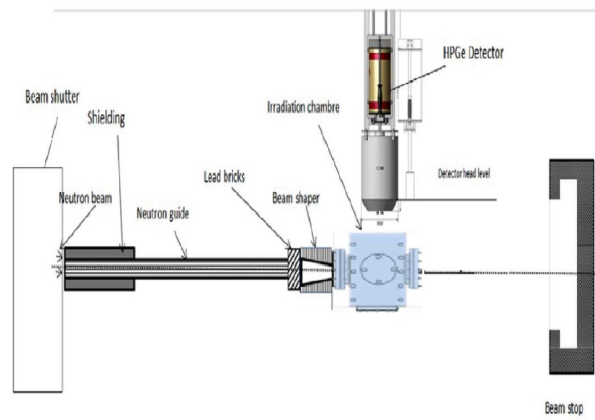


Figure 5.6 – The detailed design of the stage II components (not in scale).

The left, right, top, and bottom sides are made of Ni/Ti -coated 18 mm-thick Borkron NBK-7 (Schott) super-polished glass. Borkron NBK7 glass is manufactured for optical performance within a narrow range of tolerance. According to the current state-of-the-art for guide techniques, the main laboratories and institutes (e.g., ILL, FRMII, NIST, etc.) use Borkron glass guides at the high-radiation area, because its substrate withstands a neutron fluence of at least $2 \times 10^{18} n/cm^2$.

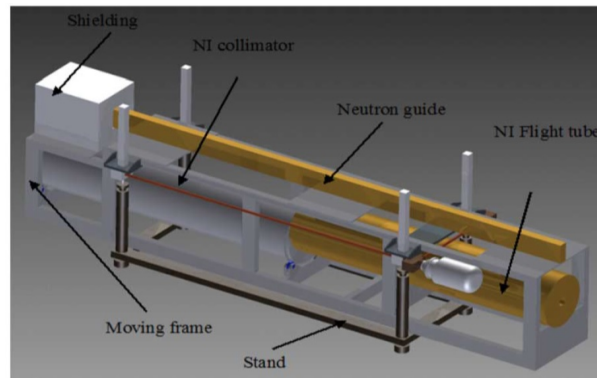


Figure 5.7 – The vertical translation system for switching between the PGAA and NI modes.

The coated substrates are protected from damage from the adjusting screw by small protective plates glued to the position of the alignment screws in the alignment frames. The standard protection plate size is $25\text{ mm} \times 25\text{ mm} \times 2\text{ mm}$ with a length tolerance of $0/-0.5\text{ mm}$. In order to provide neutron protection for the glass neutron guides and additional neutron protection for the environment and background against streaming neutrons, some design solutions were put in place. Accordingly, the first neutron guide unit of the guide's removable section was designed to accommodate a 5 mm thick highboron-content shielding material at the front face (the upstream end) of the neutron guide (see Figure 5.9). Based on experiences in research laboratories, this neutron protection is necessary, and it supports a longer lifetime for the glass guides under radiation. The same procedure was applied to the first guide unit located behind the removable section, the curved sections, and the second end. In addition, the Mirrobtor [80] mask was installed around the neutron guide to cover the gap between the glass guides and the vacuum housing completely.

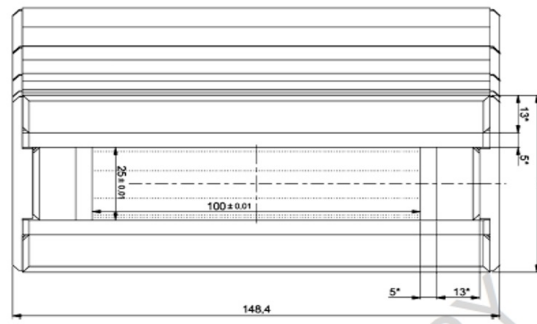


Figure 5.8 – Internal cross section of the neutron guide.

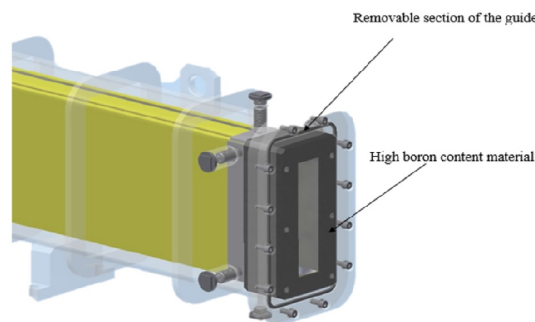


Figure 5.9 – Design view of the integrated neutron protection for the guide.

The entire neutron guide system was installed and aligned with high precision in a vacuum housing, which was then sealed to keep the vacuum stable inside (see Figure 5.10). This vacuum housing also features an integrated alignment mechanism for guidance. The operating vacuum level is around 0.1 mbar with an estimated leak rate of $5 \times 10^{-2}\text{ mbar/l}$ at a sensitivity of 10^{-7} . In its final configuration, this housing vacuum needs to reach a pressure of less than 5×10^{-2}

mbar, which was achieved with a turbo-pump of 50 l/s after installation. For the alignment to the beam, reference marks are provided (thickness of 0.02 mm) at both ends of the unit in the vertical and horizontal axes of the assembled units with a precision of ± 0.01 mm . Reflector nests are also provided for installation/gluing to the guide's vacuum housing for cases where a laser tracker is used for positioning and alignment control.

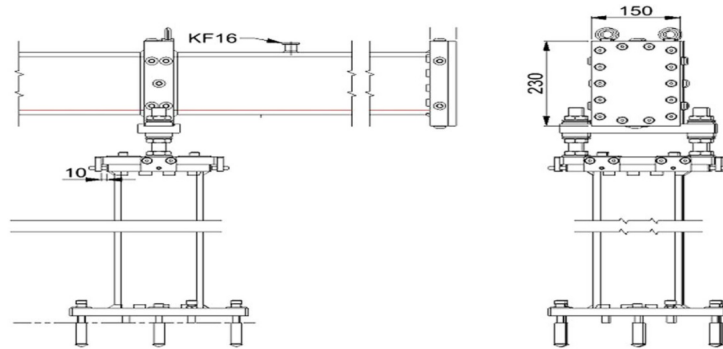


Figure 5.10 – Vacuum housing for the neutron guide, including outside dimensions.

5.4.2.2 Beam shaper

The beam shaper reduces the cross section of the neutron beam ready for final delivery to the sample. It is placed between the neutron guide and the irradiation chamber (Figure 5.6) to adjust for any mismatch between the neutron beam exiting from the guide (cross section 2.5×10 cm^2) and the desired square cross section at the sample position. Square apertures of 2.5×2.5 cm^2 , 2×2 cm^2 , and 1×1 cm^2 for neutron beams are possible for matching different sample sizes without changing the overall length of the beam shaper. This beam shaper operates thanks to an electric step-motor which displaces the suitable opening in front of the beam.

5.4.2.3 Irradiation chamber

The irradiation chamber, meanwhile, comprises an open-top aluminum box, through which a removable sample holder is placed for investigation through PGAA under a vacuum. This is lined with Li-6 enriched material [81, 82] to reduce background gamma radiation in the gamma spectrometer environment. This box is at least 20 cm wide and 50 cm long, with an axis that runs along the neutron beam axis. The two pierced vertical parallel faces of this irradiation chamber are both enclosed with 1 mm thick aluminum windows to carry the neutron beam through it with minimum interaction with its structure. A third opening face on the detector side, also enclosed with a 1 mm thick aluminum window, allows the gamma rays emitted by the sample to reach the detectors. In order to ensure perfect integration of the irradiation chamber, the detection system, and the associated shielding, a base platform has been designed such that it accommodates the whole three components with great tightening accuracy in order to maintain a minimum sample–detector distance of around 20 cm and allows the removal of the irradiation

chamber when necessary (Figure 5.11). This base platform has attached, continuously adjustable legs that allow for a vertical adjustment of $\pm 2.5\text{ cm}$. The legs have “feet” with a large cross-section, and they are sufficiently large to readily allow attachment of this platform, complete with all the equipment above, to a table that is 70 cm higher than the reactor floor.

5.4.2.4 Shielding

Among the challenges linked to this project, there are the installation of the biological and instrumental shielding relating to the first and the second stages of the project implementation. This concerns the connections “beam tube exit” – “beam shutter”, “beam shutter” – “neutron guide” and “neutron guide” – “beam shaper” which are particularly the connections where the beam section is reduced.

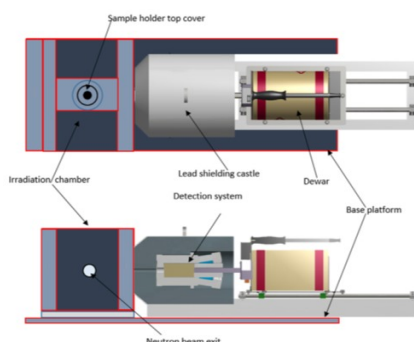


Figure 5.11 – Top and side view of the base platform, including the detection system and the associated shielding.

Thus, the installation of the beam shutter in front of the beam tube, which will later play a crucial role on the performances of the instrument, must be carried out with a good seal. This necessitates the presence of sufficient shielding materials against neutrons and gammas radiation to help isolating this part from the rest of the instrument as considerably as possible. Additional jacket-shielding is added at the first 50-cm of the neutron guide which is connected to the primary beam shutter exit side. This jacket-shielding comprises a succession of materials such as polyethylene, Mirrobor, steel plates and lead.

The “neutron guide” – “beam shaper” connection, which represents the closest hot-spot to the detection system, requires special attention, especially for the choice of adequate shielding. In order to reduce neutron and gammas background in the vicinity of the detection system, two protections are envisaged. The first one is located on the beam shaper side and the second one is situated around the irradiation chamber and the detectors.

A biological shielding based on barite concrete walls (see Figure 5.12) with a minimum density of 3.2 g/cm^3 surrounds the entire facility to maintain the current radiological zoning outside the experimental area. The width of these walls is 60 cm while the height is 200 cm . A base of 20 cm in height and 80 cm in width is distributed below all the wall blocks in order to

reduce the floor load in the experience area. A roof made using the same mixture as the walls, covering the top of the area occupied by the beam shutter, the neutron guide and the beam shaper, is 20 *cm* thick as described in Figure 5.11.

5.4.2.5 Compton suppressor detector assembly system

The Compton suppressor detector assembly system comprises three elements : (a) the high-purity germanium (HPGe), (b) an anti-Compton annulus BGO (bismuth germanium oxide), and (c) BGO annular catchers' detector (see Figure 5.13). The HpGe is a low-background, reverse-electrode n-type coaxial detector, which was fabricated by Canberra Co. (Model GR2519) for improved resistance in neutron radiation environments. With an endcap 76.2 *mm* in diameter and 134.6 *mm* in length, the detector is covered with an aluminum protective window, while the germanium crystal has a relative efficiency of 25% and a resolution of 1.9 *keV* at 1333 *keV* and 0.875 *keV* at 122 *keV*. Equipped with a 7.0-liter dewar, the crystal can be held at nitrogen temperature for five days.

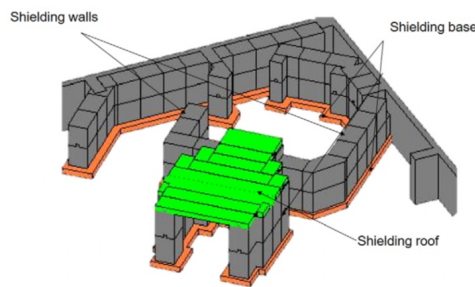


Figure 5.12 – 3D view of the biological shielding designed for the final configuration of the PGAA/NI combined system.

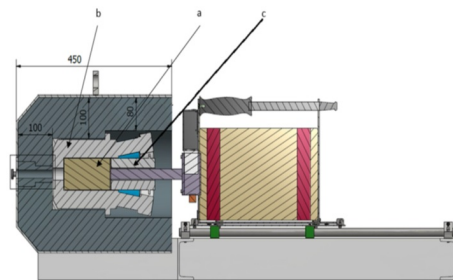


Figure 5.13 – General view of the detection system, including the HpGe, annulus BGO, and BGO catchers detector with lead shielding.

An extension at the level of the neck between the germanium crystal endcap and the cylindrical preamplifier (model 2002CSL) has been applied to make space for the BGO catchers (c) with good compatibility, as shown in Figure 5.13. The anti-Compton annulus BGO detector comprises eight optically separated segments set at an angle of 25° in a vertical configuration to

[illegible]

146

interior and exterior diameters of the assembly are 20 and 76 *mm*, respectively. The assembly of the two BGO crystals results in a length of 50 *cm* and a total diameter of 67 *cm*. Including the photomultiplier, built-in voltage divider, and aluminum can, the length of the catcher's detector is 127.8 *cm*. As illustrated in Figure 5.13, the whole system is accommodated in a lead shielding castle with 10 *cm* thickness on all sides. The front face of this shielding is also 10 *cm* thick lead with an aperture that is 3 *cm* in diameter for prompt-gamma radiation coming from the sample. Two pieces, the lead collimator and lead plug, are designed to be used to collimate the gamma radiation reaching the HpGe detector and protect against scattering radiation when the NI instrument mode is being used, respectively. As depicted in Figure 5.16, both of these are 10 *cm* t-shaped with board and deep external diameters of 60 *mm* and 40 *mm*, respectively. The lead collimator, meanwhile, has an aperture of 20 *mm* in diameter, which differs from the plug that closes the castle aperture (Figure 5.16).

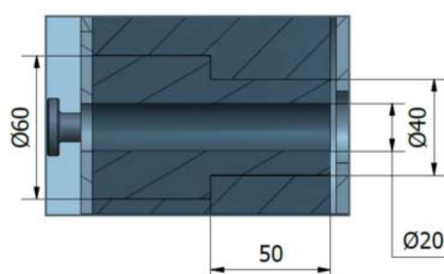


Figure 5.16 – Detailed design for lead collimator.



Figure 5.17 – The Lynx® DSA fully integrated DSP.

Data processing and Compton suppression are insured by using two Lynx® DSA fully integrated, DSP-based (Digital Signal Processor) multichannel analyzers (Figure 5.17). The first one collects signals, summed and preamplified, coming from the BGOs, while the second is connected to the HPGe detector preamplifier.

As a fully programmable, multi-range, high-voltage power supply of 150–1500 *VDC* or 1500–5000 *VDC*, the Lynx® provides the possibility to use positive and negative polarities with a large range of detectors, such as HPGe, NaI, LEGe, and PIPS. Furthermore, the coincidence/anticoincidence gating features with an adjustable digital signal delay ranging from 0 to

160 μs in 0.2 μs steps provides a coincidence window for advanced coincidence timing applications. Demonstrating a loss-free counting capability, this Lynx® version was conceived for use in pulse height analysis, dual-loss free counting, multichannel scaling, multispectral scaling, and time-stamped list modes.

It can also operate with the Mirion Genie™ 2000, Abacos, and Apex® spectroscopy software packages, as well as function independently with a Java-enabled web browser [83].

5.4.2.6 Beamstop

The beam stopper must on the one hand attenuate the neutron beam as much as possible so that the experimental measurements are not impacted and on the other hand keep the dose level at experimental area within the regulatory limits. It therefore includes an open face carbon steel case, large enough to cover the cross section of the beam with a minimum neutron backscattering, lined inside with polyethylene, a material with a high content of boron and lead.

5.5 Conclusion

Combined PGAA/NI instruments are to be installed at the NB1 beam tube of the Moroccan TRIGA Mark II research reactor. This combined instrumentation comprises a collimator plug, a beam shutter, and a beam stop as shared components. The remaining components for the PGAA and NI instruments are to be alternated either vertically or horizontally depending on the space available. In order to simultaneously meet the technical requirements of the two instruments, it was decided to subdivide the installation of the two instruments into three stages. The first stage relates to the common components that play a key role in the quality of the neutron beam, as well as the background level in the experimental area. This stage also makes it possible to choose appropriate positions for the two stations, as well as establish the dimensions for the beam stop.

Caractérisation du flux neutronique des canaux latéraux du réacteur marocain TRIGA Mark II

6.1 Résumé

Le réacteur de recherche TRIGA Mark II est équipé de quatre canaux de faisceau à neutron horizontaux et d'une colonne thermique. Les canaux tangentiel (NB1) et percé (NB2), qui font l'objet de cette étude, sont respectivement dédiés aux installations du système d'Analyse par Activation Neutronique et l'Imagerie par Neutron, et la Diffraction Neutronique. Une caractérisation neutronique préliminaire est nécessaire pour chaque canal. Les paramètres de base du faisceau, y compris le flux de neutrons, ont été mesurés avec des détecteurs d'activation à seuil pour les deux canaux de faisceau (NB1, NB2). La mesure de l'activité par spectrométrie gamma a été réalisée avec un détecteur au germanium de haute pureté pour évaluer le flux de neutrons à travers de multiples analyses de détecteurs d'activation à seuil. Les résultats ont été comparés à ceux obtenus en utilisant un modèle de simulation de Monte Carlo pour le réacteur. Une comparaison entre les résultats expérimentaux et simulés a révélé un bon niveau de concordance.

6.2 Abstract

The TRIGA Mark II research reactor is equipped with four horizontal beam tubes and one thermal column. The tangential (NB1) and Percy (NB2) beam tube, which are the subject of this study, are dedicated to Prompt Gamma Neutron Activation Analysis and Neutron Imaging, and (Neutron Diffraction) facilities, respectively. A preliminary neutron characterization is needed for each beam tube. Basic beam parameters, including neutron flux, were measured with threshold activation detectors for the two beam tubes (NB1, NB2). Activity measurement through gamma spectrometry was performed with a high-purity germanium detector to evaluate the neutron flux through multiple analyses of activation detectors. The results were compared with those obtained using an approximated Monte Carlo simulation model for the reactor. A comparison between the experimental and simulated results revealed a good level of agreement.

Keywords : Neutron flux, Neutron beam, Activation detectors, MCNP6.

6.3 Introduction

The TRIGA Mark II research reactor (TMIIRR) is located at the National Centre for Nuclear Energy, Sciences and Technology (CNESTEN), Morocco. Its purpose is to contribute to the development of various socio-economic sectors in the country, such as the environment and geochemistry, agriculture, health, industry, cultural heritage, and human sciences.

The TMIIRR is equipped with four lateral beam tubes (NB1, NB2, NB3, and NB4) to allow the installation of various nuclear facilities around the reactor, such as Prompt Gamma Neutron Activation Analysis (PGAA), Neutron Imaging (NI), Neutron Diffraction (ND), and so on. The installation of these facilities requires a preliminary neutron flux characterization, because this will contribute to effectively optimizing the performance and shielding of these facilities.

Prompt Gamma Analysis Activation (PGAA) is a very widely applied technique to simultaneously qualify and quantify the elemental composition of unknown samples, ranging in mass from micrograms to a few grams. This non-destructive technique typically measures in several minutes to several hours per sample. The possibility of detecting a small amount of light elements in a matrix comprised of high-Z elements is another characteristic.

Neutron beam characterization is a crucial step before implementing any facility around a nuclear reactor or other neutron source, because it gives a clear idea about the quality of the neutron beam and its suitability for a particular facility or application. Many laboratories around the world characterize their beam facilities and validate them with Monte Carlo models to achieve clear neutron source specifications, either in terms of spectra determination or spatial neutron distribution. For instance, the Tehran Research Reactor (TRR) performed the first beam characterization for their NRAD facility in 2016 [84]. For instance, J. V. Sandberg et al. [85] used multicomponent activation detectors for measuring neutron energy spectra in the Triga research reactor of Helsinki University of Technology, Finland in 1982. D. Turkoglu et al. [86] characterized a new external neutron beam facility at the Ohio State University using foil activation analysis results and also by simulating a full reactor core model in the MCNP Monte Carlo code. Similarly, the HRPT Instrument around the Swiss spallation neutron source (SINQ), Talanov et al. [87] validated their MCNP model through the irradiation of detector foils. Viererbl et al. performed as well a neutron beam characterization for the LVR-15 research reactor using detector foils and validated it with an MCNP model. Meanwhile, neutron activation analysis was used by M. Albarqi et al. [88] to determine the thermal and epithermal neutron flux and its spatial distribution at the beam port of the Missouri University of Science and Technology Research Reactor in 2019. All the above authors reported experimental results showing a good level of agreement with the Monte Carlo models. It is under the frame of these experiences that our work was based. Detector foils were irradiated in the NB1 and NB2 beam tube of the TMIIRR to characterize the neutron flux, and an MCNP6 model was used for validation.

For nuclear analysis techniques such as PGAA, NI, and ND, accurate spectral characteristics for neutrons and neutron flux are important for evaluating the impact on the experiment and the

potential accuracy of the methods used. Similar experiments were performed by Tiyaapun et al. [89] with an accuracy ranging from 2 % to 23 % when comparing experimental and calculated results.

Ongoing efforts to characterize neutron beams at the Moroccan TMIIRR for radio isotopes production and neutron activation analysis have been pursued in recent years by Bounouira et al. [90] using detector foils. The most recent attempts comprised detector foil irradiation and measurements. Monte Carlo code was also used to compare with measurement results. The characterization here is concerned with the NB1 and NB2 beam tube, and this forms the subject of this paper.

6.4 Materials And Methods

6.4.1 Triga research reactor description

The TRIGA Mark II reactor is an open pool type research reactor that can be operated at 2 MW maximum power. The core is located near the bottom of an aluminium tank filled with water with 2.5 m in diameter and approximately 8.8 m deep. Water acts as a moderator and provides adequate protection for the operators standing on top of the reactor. The fuel consists of a mixture of uranium (8.5% wt., enriched at 19.7% in ^{235}U), zirconium hydride that provides a moderation effectiveness strongly dependent on fuel temperature and encapsulated in a stainless steel cladding. The reactor is controlled by five boron carbide control rods while the core consists of 101 fuel elements and 17 graphite elements. To serve the scientific community, TMIIRR is equipped with several irradiation facilities divided into two families in-core and out-core irradiation facilities.

In-core irradiation facilities comprise a pneumatic transfer system (PTS) and a rotary specimen rack (RSR) which are dedicated to neutron activation analysis and the central thimble for radio-isotopes production such as Iodine-131 from the irradiation of TeO_2 targets.

Out-core irradiation facilities are represented by a Thermal Column (TC) and four beam ports. The TC is a graphite thermal column, 1.2-m by 1.2-m by 1.65-m, extending from the reflector through the concrete structure, provides a source of well thermalized neutrons suitable for physical research or irradiation of biological specimens. A high density concrete mobile door with a removable 20-cm concrete stopper protects the exterior face of this column. The four horizontal beam ports consist of two sections of 15-cm and 20-cm in diameter, extending through the concrete shielding to the face of the reflector, allow for the extraction of core radiation or the insertion of samples for the irradiation. Two (NB3, NB4) of the beam tubes extend radially to the reflector, a third (NB2) penetrates the reflector to the edge of the core and the fourth (NB1) is tangent to the core.

6.4.2 Experimental device description

The experimental device is conceived to permit the insertion of the threshold monitors at the desired position without any eventual stuck inside the beam tube. This device, designed for the irradiation of flux monitors, is composed of two elements. The first is a plastic support (PS) in the form of a Marinelli beaker, 14-*cm* in diameter and 10-*cm* long, with an annular base and a closed top where the vials have been welded to serve as housing for threshold monitors. The welding positions of the vials, numbered from 1 to 9 as shown in Figure 6.1, have been chosen so that the measurements will be representative to determine the integrated flux along the cross section of the beam tube. The second element is a PVC tube whose diameter is large enough that slid over the annular part of the PS. This element acts like a holder of the monitor-holder (PS). In order to avoid an eventual disconnection, the PS and the PVC tube, that was sufficiently long to reach the bottom of each beam tube, have been welded. Both the device and the PVC insertion tube were manufactured in house, firstly to ensure that the device fitted with the actual dimensions (diameter and length) of the beam tube and secondly to achieve better accuracy for device positioning.

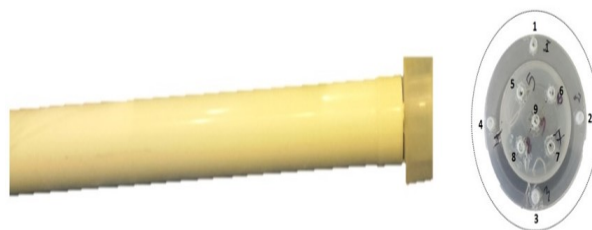


Figure 6.1 – On the right PS with front sealed nine PE vials used to position activation detector foils, on the left the experimental assembly for the insertion of the PS inside the beam tube.

The high purity PE vials, commonly used in neutron activation analysis, has a cylindrical shape with an outer diameter and height respectively of 9.3-*mm* and 5.8-*mm*. Its frontal thickness (cover) is 0.3-*mm* while the lateral one is 0.65-*mm*.

Neutron activation experiments were carried out on site using four available high-purity activation detector foils with threshold reactions covering most of the expected neutron spectrum. Table 6.1 presents the type and specification of each activation detector foil that was used in this experiment.

Eighteen sets of the four labelled activation detectors were prepared, sealed in polyethylene (PE) bags and each packed (set) in the PE vials already welded to the PS.

Activation detectors used in this experiment, manufactured by GoodFellow, are $Al-0.1Au$, Zn , Ni and Ti . The gold monitor is 1-*mm* diameter while the others are 0.05-*mm*, 0.125-*mm* and 0.125-*mm* thick respectively for Zn , Ni and Ti (Table 6.1). All foil activation detectors were prepared as disc shape of about 5-*cm* diameter while the $Al-0.1\%Au$ wire was prepared such that the average weight is about 20-*mg*. These activation detectors were placed respectively

from the bottom of the PE vial in the following order : Ti , Ni , Zn and Au . This order was chosen to minimize the effect of neutrons self-shielding. Nine sets were positioned onto the nine positions of the PS (Figure 6.1) to form a single package for one experiment.

Tableau 6.1 – Flux monitors used in the experiment and specifications

Detector Type	Shape	Thickness (mm)	Purity (%)
Au	Wire	1	0.1
Ni	Foil	0.125	99.95
Ti	Foil	0.125	99.99+
Zn	Foil	0.05	99.99+

6.4.3 Activation and Measurement

The activation of all detector foils was achieved by introducing the whole assembly (see Figure 6.2) into the beam tube so that the nine threshold detector sets will be on the plane perpendicular to the channel axes in depth of $310 - cm$ and $353 - cm$ from the beam tube exit respectively for the NB1 and NB2.

Each package of nine detector sets was irradiated for 30 and 60 minutes under 10 and $50kW$, respectively, within NB1 (A position) and NB2 (B position) (see Figure 6.2). The various threshold reactions considered in this experiment are presented in Table 6.1.

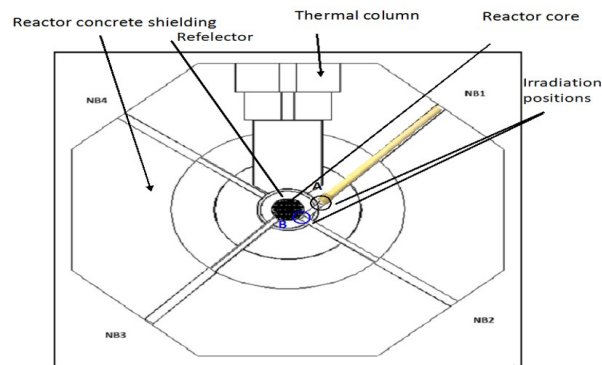


Figure 6.2 – Top view of the TMR-II reactor and irradiation positions (A position in NB1 and B position in NB2).

Tableau 6.2 – Flux monitors used in the experiment and specifications

Foil	Reaction	Half-life
Gold	$^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$	2.6952 d
Nickel	$^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$	70.88 d
Nickel	$^{64}\text{Ni}(n, \gamma)^{65}\text{Ni}$	2.517 h
Nickel	$^{60}\text{Ni}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$	5.271 y
Titanium	$^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$	83.83 d
Titanium	$^{47}\text{Ti}(n, p)^{47}\text{Sc}$	3.351 d
Titanium	$^{48}\text{Ti}(n, p)^{48}\text{Sc}$	1.8208 d
Zinc	$^{64}\text{Zn}(n, \gamma)^{65}\text{Zn}$	244.26 d
Zinc	$^{64}\text{Zn}(n, p)^{64}\text{Cu}$	12.7 h
Zinc	$^{68}\text{Zn}(n, \gamma)^{69\text{m}}\text{Zn}$	13.76 h

Following irradiation, all individual foil or wire detectors were removed from the nine vials, and they were counted individually using the calibrated high purity germanium detector. The counting time was based upon the induced activity and the half-life of the specific reaction being measured. This was needed to minimize detector dead-time while also maximizing the total counts and obtaining the best possible statistics.

The reaction rate was calculated by using the activities measured under the photopic corresponding to each monitor. Table 6.2 illustrates monitors used, reaction types with corresponding isotopes product, half-life of each isotope, gamma radiation energy measured and the reaction threshold. An average activity has been calculated for multigamma isotopes emitters.

6.5 Methods

The gamma lines taken into account during the radioactivity measurements are those due to the reactions $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$, $^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$, $^{47}\text{Ti}(n, p)^{47}\text{Sc}$, $^{48}\text{Ti}(n, p)^{48}\text{Sc}$, $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$, $^{64}\text{Zn}(n, \gamma)^{65}\text{Zn}$ and $^{68}\text{Zn}(n, \gamma)^{69\text{m}}\text{Zn}$ whose values are presented in the Table 6.2.

All Monte Carlo calculations were performed through the transport Monte Carlo MCNP6 [91] code and the ENDF 7.1 V2013 data libraries.

An approximated MCNP6 model for the TMIIRR was created. This model (see Figure 6.3) included the reactor core, thermal column and biological shielding, with it containing 101 fuel rods and 17 graphite bars, a graphite reflector, a light water moderator, and the four horizontal beam tubes. The MCNP6 input was prepared in such a way that a very quick setup of any desired core configuration. The MCNP6 calculations were run with 3,000,000,000 active histories. A total of 3,000,000 histories per cycle were used and 1,010 cycle of neutrons. The initial effective multiplication factor (k_{eff}) value was chosen to be 1.04069 and the first 10 cycles were skipped to obtain a well-distributed neutron source. To account for thermal neutron scattering, the ap-

appropriate $s(\alpha, \beta)$ treatment was applied to graphite, zirconium hydride and water to simulate the low-energy neutron interactions. The model was subjected to test the KCODE criticality mode with fresh fuel loaded in the reactor core. The keff was then obtained to be 1.04160 ± 0.00001 .

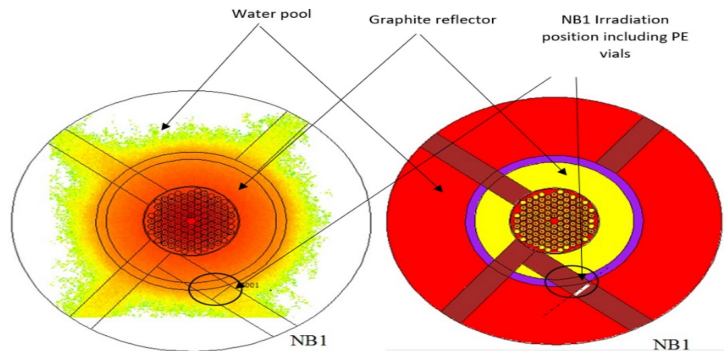


Figure 6.3 – MCNP model for TMR II with calculation positions and particle source distribution.

The experimental device was modelled in such a way that the comparison between the results of measurements and those of the simulation will be as representative as possible. The MCNP6 model of the PE vials was denoted by five areas limited by the intersection of several planes and cylinders. These four areas are the cover which measures 0.3 mm , the base measuring 0.3 mm , the side with a thickness of 0.650 mm and the interior of the vial which will house the flux monitors. The monitors were represented, in the form of discs, by the intersection of cylinders of 5 cm in diameter and parallel planes with the exception of gold which has a different shape (wire). The latter was represented in cylindrical form positioned horizontally in the medium of the area between the bottom of the vial cover and the top surface of the Zn monitor (see Figure 6.4). The distances between the planes represent the thicknesses of the foil monitors. This has been applied for all nine monitors. All the foil flux monitors have been placed, stuck to each other, in the bottom of the vial. The PS and the PVC tube were not taken into consideration in this MCNP6 model.

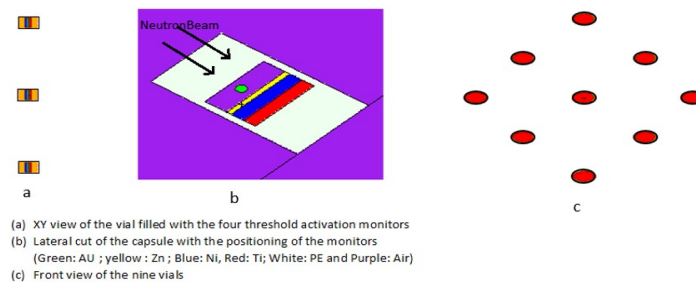


Figure 6.4 – MCNP6 model of the PE vials with the associated threshold monitors (scale is not respected).

The F2 tally was used to determine the flux at the surfaces limiting the threshold detectors. In order for the comparison between the experimental and calculated results to be accurate, we calculated the neutron flux at approximately the same positions as in the experiment (see Figure

6.4), and the flux was also bin averaged to the energy groupings (0.0, 0.4 eV), (0.4 eV, 10 keV), and (10 keV, 20 MeV) for the nine PS positions for comparison with the experimental results.

6.6 Results And Discussion

The isotope's total activity was calculated as the area under the associated gamma peak and calculated using a non-linear least-squares algorithm provided by the detector software in order to remove background effects. The measured activity was then extrapolated to saturation. The neutron flux averages were calculated using measurement and MCNP6 code for the NB1 and NB2 beam tube. Once irradiation-induced activity was measured, the neutron flux was determined consequently based on the reaction rate which are presented in Table 6.3. The measured averaged values of thermal (0.0, 0.4 eV), epithermal (0.4 eV, 10 keV), and fast (10 keV, 20 MeV) neutron fluxes for both beam tubes, under respectively 10-kW and 50-kW operational core power, linearly extrapolated to 2 MW, are presented with the calculated ones for comparison.

Tableau 6.3 – Reaction rates associated to each reaction used for measurements.

	RR(s^{-1})NB1		
Position	$^{197}\text{Au}(n, g)^{198}\text{Au}$	$^{46}\text{Ti}(n, p)^{47}\text{Sc}$	$^{47}\text{Ti}(n, p)^{47}\text{Sc}$
1	$7.78E^{-12}$	$1.17E^{-16}$	$2.41E^{-16}$
2	$7.77E^{-12}$	$1.37E^{-16}$	$2.43E^{-16}$
3	$7.98E^{-12}$	$1.35E^{-16}$	$2.72E^{-16}$
4	$5.90E^{-12}$	$1.20E^{-16}$	$2.04E^{-16}$
5	$5.53E^{-12}$	$1.27E^{-16}$	$2.07E^{-16}$
6	$5.35E^{-12}$	$1.38E^{-16}$	$2.16E^{-16}$
7	$5.33E^{-12}$	$1.20E^{-16}$	$2.01E^{-16}$
8	$5.45E^{-12}$	$1.12E^{-16}$	$1.97E^{-16}$
9	$5.36E^{-12}$	$1.22E^{-16}$	$2.18E^{-16}$
Average	$6.27E^{-12}$	$1.25E^{-16}$	$2.22E^{-16}$
RSD	19.01%	7.50%	11.27%
Position	$^{48}\text{Ti}(n, p)^{48}\text{Sc}$	$^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$	$^{64}\text{Zn}(n, p)^{65}\text{Zn}$
1	$3.66E^{-18}$	$2.68E^{-16}$	$4.13E^{-14}$
2	$3.59E^{-18}$	$2.90E^{-16}$	$4.40E^{-14}$
3	$4.11E^{-18}$	$4.02E^{-16}$	$4.15E^{-14}$
4	$3.04E^{-18}$	$3.65E^{-16}$	$4.80E^{-14}$

5	$3.09E^{-18}$	$3.32E^{-16}$	$4.47E^{-14}$
6	$3.37E^{-18}$	$3.43E^{-16}$	$3.88E^{-14}$
7	$2.98E^{-18}$	$3.51E^{-16}$	$4.12E^{-14}$
8	$3.03E^{-18}$	$3.07E^{-16}$	$3.68E^{-14}$
9	$3.66E^{-18}$	$3.93E^{-16}$	$4.58E^{-14}$
Average	$3.39E^{-18}$	$3.39E^{-16}$	$4.25E^{-14}$
RSD	11.50%	13.37%	8.27%
Position		$^{68}\text{Zn}(n, p)^{69m}\text{Zn}$	
1		$4.51E^{-15}$	
2		$4.51E^{-15}$	
3		$4.59E^{-15}$	
4		$4.63E^{-15}$	
5		$4.36E^{-15}$	
6		$4.38E^{-15}$	
7		$4.35E^{-15}$	
8		$4.48E^{-15}$	
9		$4.35E^{-15}$	
Average		$4.46E^{-15}$	
RSD		2.40%	
Position	RR(s^{-1})NB2		
	$^{197}\text{Au}(n, g)^{198}\text{Au}$	$^{46}\text{Ti}(n, p)^{47}\text{Sc}$	$^{47}\text{Ti}(n, p)^{47}\text{Sc}$
1	$4.59E^{-11}$	$3.46E^{-16}$	$7.15E^{-16}$
2	$4.75E^{-11}$	$4.16E^{-16}$	$7.38E^{-16}$
3	$4.49E^{-11}$	$3.45E^{-16}$	$6.98E^{-16}$
4	$4.92E^{-11}$	$4.17E^{-16}$	$7.06E^{-16}$
5	$4.53E^{-11}$	$4.75E^{-16}$	$7.77E^{-16}$
6	$4.76E^{-11}$	$5.08E^{-16}$	$7.93E^{-16}$
7	$4.38E^{-11}$	$4.60E^{-16}$	$7.74E^{-16}$
8	$4.67E^{-11}$	$4.39E^{-16}$	$7.69E^{-16}$
9	$4.59E^{-11}$	$4.50E^{-16}$	$8.00E^{-16}$
Average	$4.63E^{-11}$	$4.29E^{-16}$	$7.52E^{-16}$
RSD	3.54%	12.78%	5.14%

Position	$^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$	$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$	$^{64}\text{Zn}(n,p)^{65}\text{Zn}$
1	$1.08E^{-17}$	$5.37E^{-15}$	$2.56E^{-13}$
2	$1.09E^{-17}$	$5.89E^{-15}$	$2.30E^{-13}$
3	$1.05E^{-17}$	$5.01E^{-15}$	$2.39E^{-13}$
4	$1.05E^{-17}$	$5.16E^{-15}$	$2.57E^{-13}$
5	$1.16E^{-17}$	$6.31E^{-15}$	$2.15E^{-13}$
6	$1.24E^{-17}$	$3.33E^{-15}$	$2.53E^{-13}$
7	$1.14E^{-17}$	$5.45E^{-15}$	$2.24E^{-13}$
8	$1.18E^{-17}$	$5.66E^{-15}$	$2.51E^{-13}$
9	$1.35E^{-17}$	$6.38E^{-15}$	$2.14E^{-13}$
Average	$1.15E^{-17}$	$5.40E^{-15}$	$2.38E^{-13}$
RSD	8.36%	16.82%	7.36%
Position	$^{68}\text{Zn}(n,p)^{69\text{m}}\text{Zn}$		
1	$1.23E^{-14}$		
2	$2.45E^{-14}$		
3	$2.42E^{-14}$		
4	$1.27E^{-14}$		
5	$2.35E^{-14}$		
6	$1.24E^{-14}$		
7	$2.29E^{-14}$		
8	$1.21E^{-14}$		
9	$1.03E^{-15}$		
Average	$1.62E^{-14}$		
RSD	49.83%		

The neutron flux results obtained for the nine positions using the measurement and MCNP6 code are shown in Table 4 and 5 for NB1 and NB2 respectively. A relative standard deviation (RSD¹) of around 17.93 % and 10.27 % is observed respectively for the measured and calculated values of the average total flux at the level of the NB1 beam tube. With regards to the NB2 beam tube, 8.84 % and 4.44 % are the RSDs calculated respectively for the results obtained by measurement and MCNP6 code.

1. RSD = (Standard deviation/Average) * 100%

Tableau 6.4 – Measured and Calculated Neutron Flux at the NB1 Beam Tube for the Nine Positions for the Three Energy Groups Including the Total

	Average total neutron flux NB1 ($n.cm^{-2}.s^{-1}$)				
	Measurement		MCNP6		
Position	Measurement	Err.	Calculation	Err.	(Meas.-Cacl.)/Meas.
1	$3.46E^{+12}$	$6.20E^{+11}$	$4.50E^{+12}$	$9.58E^{+11}$	30.26%
2	$3.46E^{+12}$	$6.20E^{+11}$	$4.33E^{+12}$	$6.15E^{+11}$	24.97%
3	$3.60E^{+12}$	$6.45E^{+11}$	$3.36E^{+12}$	$6.18E^{+11}$	6.77%
4	$2.69E^{+12}$	$4.82E^{+11}$	$3.53E^{+12}$	$5.37E^{+11}$	31.36%
5	$2.51E^{+12}$	$4.51E^{+11}$	$4.11E^{+12}$	$4.80E^{+11}$	63.28%
6	$2.44E^{+12}$	$4.38E^{+11}$	$3.43E^{+12}$	$5.42E^{+11}$	40.43%
7	$2.44E^{+12}$	$4.37E^{+11}$	$3.80E^{+12}$	$6.34E^{+11}$	56.00%
8	$2.47E^{+12}$	$4.43E^{+11}$	$4.03E^{+12}$	$5.44E^{+11}$	63.20%
9	$2.47E^{+12}$	$4.42E^{+11}$	$4.03E^{+12}$	$6.54E^{+11}$	63.63%
Average	$2.84E^{+12}$		$3.90E^{+12}$		37.53%
RSD(%)	17.93%		10.27%		
	Average thermal neutron flux NB1 ($n.cm^{-2}.s^{-1}$) (0.0 eV, 0.4 eV)				
	Measurement		MCNP6		
Position	Measurement	Err.	Calculation	Err.	(Meas.-Cacl.)/Meas.
1	$2.22E^{+12}$	$3.33E^{+11}$	$2.83E^{+12}$	$1.01E^{+12}$	27.44%
2	$2.22E^{+12}$	$3.33E^{+11}$	$2.43E^{+12}$	$3.27E^{+11}$	9.75%
3	$2.28E^{+12}$	$3.42E^{+11}$	$1.90E^{+12}$	$1.19E^{+11}$	16.76%
4	$1.68E^{+12}$	$2.53E^{+11}$	$1.96E^{+12}$	$2.03E^{+11}$	16.13%
5	$1.58E^{+12}$	$2.37E^{+11}$	$2.35E^{+12}$	$2.61E^{+11}$	49.11%
6	$1.53E^{+12}$	$2.29E^{+11}$	$1.95E^{+12}$	$1.54E^{+11}$	27.62%
7	$1.52E^{+12}$	$2.28E^{+11}$	$2.15E^{+12}$	$1.94E^{+11}$	41.14%
8	$1.56E^{+12}$	$2.33E^{+11}$	$2.30E^{+12}$	$2.24E^{+11}$	48.10%
9	$1.53E^{+12}$	$2.29E^{+11}$	$2.30E^{+12}$	$1.77E^{+11}$	50.50%
Average	$1.79E^{+12}$	$2.69E^{+11}$	$2.24E^{+12}$	$2.96E^{+11}$	25.19%
RSD	19.01%		13.17%		
	Average epithermal neutron flux NB1 ($n.cm^{-2}.s^{-1}$) (0.4 eV, 10 keV)				
	Measurement		MCNP6		
Position	Measurement	Err.	Calculation	Err.	(Meas.-Cacl.)/Meas.
1	$7.38E^{+11}$	$1.11E^{+11}$	$5.44E^{+11}$	$1.94E^{+11}$	26.24%
2	$7.36E^{+11}$	$1.10E^{+11}$	$4.68E^{+11}$	$6.28E^{+10}$	36.46%
3	$7.57E^{+11}$	$1.14E^{+11}$	$3.65E^{+11}$	$2.29E^{+10}$	51.80%
4	$5.60E^{+11}$	$8.39E^{+10}$	$3.76E^{+11}$	$3.91E^{+10}$	32.77%
5	$5.24E^{+11}$	$7.86E^{+10}$	$4.53E^{+11}$	$5.02E^{+10}$	13.68%
6	$5.07E^{+11}$	$7.61E^{+10}$	$3.75E^{+11}$	$2.96E^{+10}$	26.13%
7	$5.05E^{+11}$	$7.58E^{+10}$	$4.13E^{+11}$	$3.72E^{+10}$	18.31%
8	$5.17E^{+11}$	$7.75E^{+10}$	$4.43E^{+11}$	$4.31E^{+10}$	14.25%
9	$5.08E^{+11}$	$7.62E^{+10}$	$4.42E^{+11}$	$3.40E^{+10}$	12.87%
Average	$5.95E^{+11}$		$4.31E^{+11}$		27.53%
RSD(%)	19.01%		13.17%		

	Average fast neutron flux NB1 ($n.cm^{-2}.s^{-1}$) (10 keV, 17 MeV) (6.4)				
	Measurement		MCNP6		
Position	Measurement	Err. (%)	Calculation	Err. (%)	(Meas.-Cacl.)/Meas.
1	$4.99E^{+11}$	$7.49E^{+10}$	$6.67E^{+11}$	$9.16E^{+10}$	33.51%
2	$5.08E^{+11}$	$7.62E^{+10}$	$6.23E^{+11}$	$1.97E^{+11}$	22.64%
3	$5.65E^{+11}$	$8.47E^{+10}$	$5.01E^{+11}$	$1.55E^{+11}$	11.32%
4	$4.45E^{+11}$	$6.67E^{+10}$	$5.34E^{+11}$	$1.66E^{+11}$	20.16%
5	$4.13E^{+11}$	$6.19E^{+10}$	$5.99E^{+11}$	$1.34E^{+11}$	45.08%
6	$4.08E^{+11}$	$6.12E^{+10}$	$4.94E^{+11}$	$1.43E^{+11}$	21.09%
7	$4.10E^{+11}$	$6.15E^{+10}$	$5.72E^{+11}$	$1.70E^{+11}$	39.57%
8	$3.99E^{+11}$	$5.98E^{+10}$	$5.80E^{+11}$	$1.50E^{+11}$	45.47%
9	$4.29E^{+11}$	$6.43E^{+10}$	$5.79E^{+11}$	$1.69E^{+11}$	35.13%
Average	$4.53E^{+11}$	$6.79E^{+10}$	$5.72E^{+11}$	$1.53E^{+11}$	26.36%
RSD(%)	12.77%		9.76%		

The average total neutron flux for the NB1 beam tube, as shown in Table 6.4, show a relatively good agreement between the measured and calculated results with 37.53% difference. Neutron flux components for the NB1 beam tube, show a concordance between the calculated and measured results with a maximum difference of 27.53% which corresponds to the average neutron flux related to the energy group (0.4 eV, 10 keV). Figure 6.5 illustrates the distribution of the neutron flux in the studied positions obtained for the measured and calculated values in the NB1 beam tube for the total and the three energy groups of the neutron flux. A fall in the neutron flux measured in the NB1 beam tube is observed between the position numbers 1, 2, 3 and 4, 5, 6, 7, 8, 9 for the three energy groups, which does also appear in the calculations obtained by the code MCNP6. The maximum of this drop is around 41.56% corresponding to the energy group (0.0, 0.4 eV) between the positions 3 and 4 of the measured results.

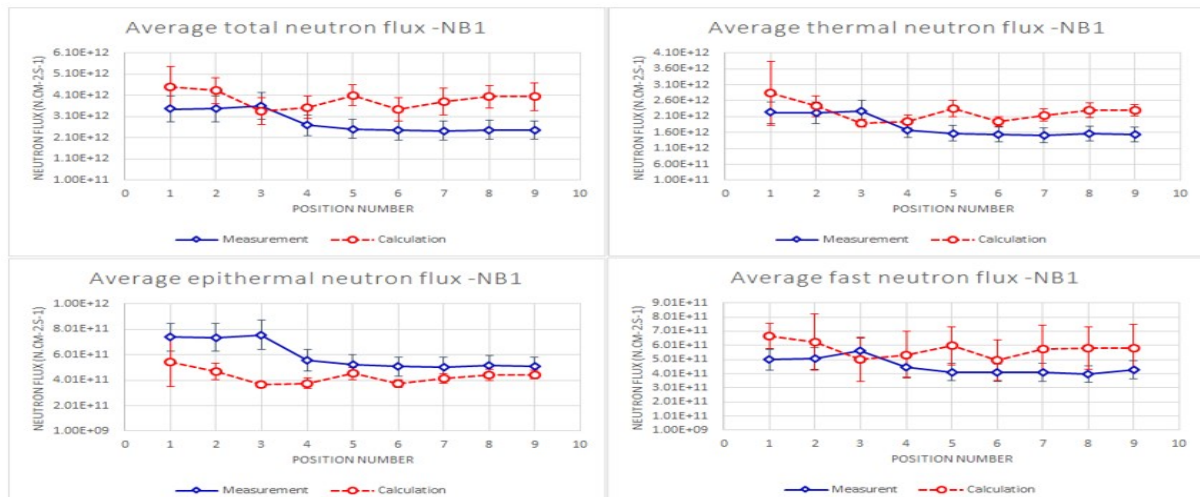


Figure 6.5 – Neutron Flux Distribution in the Nine Studied Positions Obtained for the Measured and Calculated Values in the NB1 Beam Tube for the Three Energy Groups.

The total average neutron flux again shows a good level of agreement between the measured and calculated values for the NB2 beam tube with 20.01% difference (Table 6.5). The investigation related separately to the total and the three components of the flux shows that the curves keep relatively the same shape for both the measured and calculated values (Figure 6.6). The corresponding RSDs are 27.87%, 26.67% and 22.82% related respectively to (0.0, 0.4 eV), (0.4 eV, 10 keV), and (10 keV, 20 MeV) energy ranges. It can be noticed that the positions (5, 6, 7, 8 and 9) closest to the axis of the beam represent a good agreement between measurements and calculations with respect to the others.

Tableau 6.5 – Reaction rates associated to each reaction used for measurements.

	Average total neutron flux NB2 ($n.cm^{-2}.s^{-1}$)				
	Measurement		MCNP6		
Position	Measurement	Err.	Calculation	Err.	(Meas.-Cacl.)/Meas.
1	$1.18E^{+13}$	$1.77E^{+12}$	$9.20E^{+12}$	$1.07E^{+12}$	21.93%
2	$1.40E^{+13}$	$2.09E^{+12}$	$9.74E^{+12}$	$1.11E^{+12}$	30.21%
3	$1.05E^{+13}$	$1.58E^{+12}$	$9.50E^{+12}$	$1.05E^{+12}$	9.69%
4	$1.29E^{+13}$	$1.93E^{+12}$	$1.03E^{+13}$	$1.15E^{+12}$	19.66%
5	$1.12E^{+13}$	$1.68E^{+12}$	$9.40E^{+12}$	$1.07E^{+12}$	16.16%
6	$1.26E^{+13}$	$1.88E^{+12}$	$9.87E^{+12}$	$1.12E^{+12}$	21.33%
7	$1.09E^{+13}$	$1.64E^{+12}$	$8.85E^{+12}$	$1.04E^{+12}$	18.96%
8	$1.20E^{+13}$	$1.80E^{+12}$	$9.53E^{+12}$	$1.10E^{+12}$	20.77%
9	$1.19E^{+13}$	$1.78E^{+12}$	$9.72E^{+12}$	$1.08E^{+12}$	18.07%
Average	$1.20E^{+13}$		$9.57E^{+12}$		20.01%
RSD(%)	8.84%		4.44%		
	Average thermal neutron flux NB2($n.cm^{-2}.s^{-1}$) (0.0 eV, 0.4 eV)				
	Measurement		MCNP6		
Position	Measurement	Err.	Calculation	Err.	(Meas.-Cacl.)/Meas.
1	$5.61E^{+12}$	$8.41E^{+11}$	$7.47E^{+12}$	$7.47E^{+11}$	33.19%
2	$6.50E^{+12}$	$9.75E^{+11}$	$7.20E^{+12}$	$7.20E^{+11}$	10.83%
3	$5.40E^{+12}$	$8.10E^{+11}$	$6.98E^{+12}$	$6.98E^{+11}$	29.18%
4	$5.88E^{+12}$	$8.83E^{+11}$	$7.37E^{+12}$	$7.37E^{+11}$	25.29%
5	$5.36E^{+12}$	$8.04E^{+11}$	$6.92E^{+12}$	$6.92E^{+11}$	29.21%
6	$6.05E^{+12}$	$9.07E^{+11}$	$7.99E^{+12}$	$7.99E^{+11}$	32.13%
7	$5.50E^{+12}$	$8.25E^{+11}$	$7.29E^{+12}$	$7.29E^{+11}$	32.51%
8	$6.13E^{+12}$	$9.20E^{+11}$	$7.72E^{+12}$	$7.72E^{+11}$	25.89%
9	$5.51E^{+12}$	$8.27E^{+11}$	$7.48E^{+12}$	$7.48E^{+11}$	35.64%
Average	$5.77E^{+12}$	$5.85E^{+10}$	$7.38E^{+12}$	$7.85E^{+11}$	27.87%
RSD(%)	6.76%		4.58%		

	Average epithermal neutron flux NB2 ($n.cm^{-2}.s^{-1}$) (0.4 eV, 10 keV)				
	Measurement		MCNP6		
Position	Measurement	Err.	Calculation	Err.	(Meas.-Cacl.)/Meas.
1	$2.58E^{+12}$	$5.17E^{+11}$	$1.78E^{+12}$	$2.68E^{+11}$	30.93%
2	$3.13E^{+12}$	$6.25E^{+11}$	$1.95E^{+12}$	$2.93E^{+11}$	37.59%
3	$2.22E^{+12}$	$4.44E^{+11}$	$1.84E^{+12}$	$2.77E^{+11}$	16.87%
4	$2.90E^{+12}$	$5.81E^{+11}$	$2.28E^{+12}$	$3.41E^{+11}$	21.58%
5	$2.49E^{+12}$	$4.99E^{+11}$	$1.85E^{+12}$	$2.78E^{+11}$	25.73%
6	$2.83E^{+12}$	$5.66E^{+11}$	$2.02E^{+12}$	$3.04E^{+11}$	28.45%
7	$2.38E^{+12}$	$4.76E^{+11}$	$2.07E^{+12}$	$3.10E^{+11}$	13.09%
8	$2.63E^{+12}$	$5.26E^{+11}$	$1.96E^{+12}$	$2.94E^{+11}$	25.43%
9	$2.69E^{+12}$	$5.38E^{+11}$	$1.73E^{+12}$	$2.59E^{+11}$	35.69%
Average	$2.65E^{+12}$	$5.53E^{+10}$	$1.94E^{+12}$		26.67%
RSD(%)	10.44%		8.60%		
	Average fast neutron flux NB2 ($n.cm^{-2}.s^{-1}$)(10 keV, 17 MeV)				
	Measurement		MCNP6		
Position	Measurement	Err.	Calculation	Err.	(Meas.-Cacl.)/Meas.
1	$3.59E^{+12}$	$7.18E^{+11}$	$2.44E^{+12}$	$2.44E^{+11}$	31.94%
2	$4.34E^{+12}$	$8.68E^{+11}$	$2.98E^{+12}$	$2.98E^{+11}$	31.26%
3	$2.90E^{+12}$	$5.80E^{+11}$	$2.60E^{+12}$	$2.60E^{+11}$	10.49%
4	$4.09E^{+12}$	$8.18E^{+11}$	$2.76E^{+12}$	$2.76E^{+11}$	32.44%
5	$3.36E^{+12}$	$6.72E^{+11}$	$2.87E^{+12}$	$2.87E^{+11}$	14.63%
6	$3.68E^{+12}$	$7.35E^{+11}$	$2.61E^{+12}$	$2.61E^{+11}$	28.88%
7	$3.03E^{+12}$	$6.07E^{+11}$	$2.82E^{+12}$	$2.82E^{+11}$	6.98%
8	$3.27E^{+12}$	$6.53E^{+11}$	$2.73E^{+12}$	$2.73E^{+11}$	16.50%
9	$3.65E^{+12}$	$7.31E^{+11}$	$2.81E^{+12}$	$2.81E^{+11}$	23.04%
Average	$3.55E^{+12}$	$7.09E^{+11}$	$2.74E^{+12}$	$2.74E^{+11}$	22.82%
RSD(%)	13.18%		5.95%		

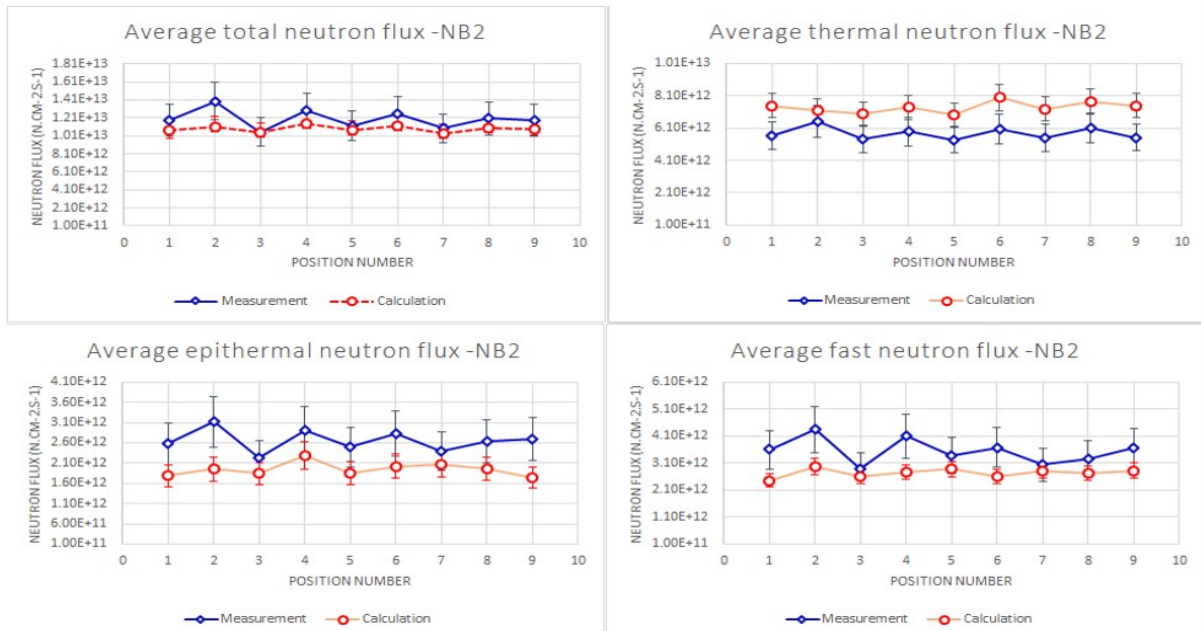


Figure 6.6 – Neutron Flux Distribution in the Nine Studied Positions Obtained for the Measured and Calculated Values in the NB2 Beam Tube for the Three Energy Group.

Knowing that the real flux present in the beam tube has undergone thermalization as well as a possible backscattering of neutrons because of the experimental device, a comparison of the fluxes with and without the PE vials was carried out by calculation. The correction factors were determined for the three groups of energies in order to have significant flux values. The results show a decrease of 7.30% and 14.81% and 19.31% respectively for the thermal, epithermal and fast neutron flux.

6.7 Conclusion

This preliminary neutron flux characterization for the NB1 and NB2 beam tube was performed successfully using threshold activation detectors and MCNP6 code calculations. The results are considered preliminary, but they can be used as input for setting up the PGAA/NI and ND around the NB1 and NB2 beam tube respectively. On the other hand, as a future investigation, the flux evaluation and validation warrant further investigation that may involve more threshold activation detector at a sufficiently high power to obtain good measurement accuracy and a more precise MCNP6 model for the TMIIRR.

Conclusion Générale

L'installation et la mise au point d'une technique d'analyse nucléaire couvrant une gamme analytique aussi large et précise telle l'analyse par activation neutronique (AAN) représente actuellement un défi majeur pour les nouveaux laboratoires instaurant une telle technique non conventionnelle. En effet, conscient de l'intérêt que représente l'AAN pour la caractérisation des matériaux dans les domaines de la recherche scientifique appliquée et ses vastes applications dans les secteurs sociaux économiques, ce travail de thèse a pour objectif d'explicitier l'état de l'art des connaissances, méthodes et outils liés aux différents processus de cette technique. Il a pour objectif de fournir aux lecteurs une compréhension des principes fondamentaux de base de l'AAN et d'expliquer pourquoi et quand elle doit être utilisée, pourquoi elle fonctionne comme tel, ce qu'elle a à offrir et comment elle devrait être appliquée. En addition, il explicite les différentes étapes de la méthode, à savoir la caractérisation des instruments, les protocoles de préparation, d'irradiation et de mesures, tout en soulignant les différentes sources d'incertitudes et d'interférences, ainsi que les aspects métrologie et d'applicabilité de la technique.

La mise en œuvre de l'AAN nécessite une connaissance de base de la méthode. Elle suppose que les paramètres expérimentaux de l'échantillon et des masses standards à savoir : l'activation, la décroissance (refroidissement), et les temps de comptage, soient optimisés pour chaque mesure. Elle suppose également que les équipements d'irradiation neutronique et les systèmes de spectrométrie gamma soient caractérisés et optimisés de manière appropriée, et que le choix de l'installation d'irradiation et du système de détection soit convenable pour la mesure effectuée. Une conception expérimentale minutieusement réfléchie est souvent le meilleur moyen de réduire les incertitudes.

Les sources d'incertitude qui représentent un maillon fort dans toutes les techniques analytiques ont été bien détaillées pour chaque composant et pour chaque étape du processus d'analyse par activation neutronique y compris celles liées aux interférences et aux données nucléaires. Des méthodes pour évaluer chacun de ces composants qui impacte significativement les résultats de mesures ont été évoquées pour que ce travail soit un retour d'expérience pour la communauté future d'AAN. Les principales sources d'incertitudes proviennent soit des protocoles d'analyses soit de la caractérisation des installations.

Les deux principales installations clés utilisées dans les laboratoires d'AAN, se composent des détecteurs à semi-conducteur, en générale à base de germanium hyper pur et les différents installations d'irradiations conçues pour recevoir des échantillons d'activation. Les méthodes et les résultats de caractérisation de ces installations ont été explicitées dans ce travail; il s'agit

de la détermination de la courbe d'efficacité photoélectrique des détecteurs ainsi que d'autres paramètres en fonction de l'énergie des rayons gamma pour les positions de mesures et des paramètres (α , f , Φ_{th} , Φ_{ep} , Φ_{rap}) pour chaque installation d'irradiation, particulièrement les systèmes dédiés aux courtes et aux longues irradiations. Une validation de la méthode d'analyse s'avère indispensable après chaque caractérisation.

La validation interne et externe est considéré comme une étape avancée dans le cycle de vie d'une méthode analytique. Elle consiste à analyser différentes matrices de Matériaux Standards de Référence et effectuer une évaluation suivie par l'identification des sources d'erreurs et d'éventuelle corrections et améliorations dans le protocole. D'une manière générale, on peut conclure qu'un accord a été trouvé entre les résultats des tests et les valeurs certifiées et non certifiées pour les Matériaux de référence dans la grande majorité des cas. Ainsi, la méthode de normalisation k_0 de l'AAN a été mise en œuvre et validée avec succès avec l'utilisation du programme k_0 -IAEA. Cette étape a permis au laboratoire d'identifier les éléments à analyser d'une façon routinière et ceux qui nécessitent des améliorations et une attention particulière. Malgré que cette validation interne s'avère un maillon fort pour notre laboratoire, une évaluation des performances du laboratoire par la participation aux tests d'inter-comparaison représente une avancée pour le processus d'accréditation.

Les tests d'inter-comparaison aide à mettre en évidence les variations entre laboratoires et, dans certaines circonstances, les erreurs systématiques. Les programmes d'inter-comparaison et d'autres types de comparaison inter-laboratoires sont acceptés comme étant un moyen important de surveiller le degré d'équivalence des résultats de mesure aux niveaux national et international. Lors de la participation à des programmes d'inter-comparaison, il est très intéressant d'évaluer la qualité des résultats obtenus et de faire des comparaisons à différents stades. Ces tests ont révélé que le nombre de résultats satisfaisants est très important. Les éléments qui nécessitent une investigation approfondie afin de les intégrer dans la gamme analytique sont le « *Cr* et *Sb* », « *Ca*, *Nd* et *V* », « *Rb* et *l'U* » et le « *Cr* » respectivement dans les matrices Plante terrestre, Matériel siliceux, Sédiment marin et Tissu animal.

Vu l'ampleur de ce sujet de thèse, plusieurs axes de recherche ont été développés dans le cadre de ce travail de thèse qui ont fait l'objet de plusieurs PFE et thèses doctorales. Parmi les travaux publiés, le développement d'une nouvelle méthode de caractérisation de l'acide phosphorique par l'AAN; qui permet de surmonter les risques de sûreté que peut provoquer l'introduction des acides dans le cœur du réacteur. L'utilisation de la technique d'activation neutronique pour la caractérisation des canaux latéraux du réacteur TRIGA du CENM couplé au code de modélisation Monte Carlo MCNP; cela va permettre d'introduire l'aspect modélisation pour la quantification des contributions de certains phénomènes nucléaires qui sont considérés comme source d'erreur dans l'AAN. Enfin, un système intégral pour l'analyse par activation

neutronique par les gammas prompts a été conçu pour compléter la gamme analytique du laboratoire. Cela va faire l'une des rares installations dans la région qui permettra la quantification non destructive des éléments légers dans une multitude de matrices.

Appendice

Tableaux des rayons gamma observés dans les réactions d’activation neutroniques sont présentés en quatre tableaux.

L’analyse des spectres mesurés par les détecteurs à base de $Ge(HP)$, acquise après l’activation neutronique, implique l’identification des composants (Pics) spectraux. Cette procédure commence généralement par la comparaison des énergies de pic observés avec une liste de pics spectraux connus pour déterminer les isotopes qui pourraient contribuer au spectre observé. Une fois que les contributeurs sont provisoirement identifiés, une liste des pics ordonnés par isotope est consultée pour confirmer ou nier la présence du contributeur provisoirement suspecté. Le succès de ce processus dépend de l’exhaustivité et de la précision des tabulations, ainsi que des résultats de l’analyse des énergies et des intensités des pics spectraux. Dans cette appendice, nous avons tenté de fournir une liste suffisamment complète et précise des pics de rayons gamma et des pics d’échappement importants, en utilisant la dernière littérature disponible. Le tableau 6.6 présente une liste de ces pics classés par ordre croissant et montrant les pics d’énergie, le nom de l’isotope, l’élément associé, la période demi-vie en minute et le rapport d’embranchement en pourcentage (ou probabilité d’émission).

Un autre sujet qui doit être développé avant de passer à une discussion détaillée des tableaux est le concept de listage des pics spectraux plutôt que de simples pics de rayons gamma. La distinction entre les pics de rayons gamma et les pics d’échappement, pics d’annihilation, etc., peut ne pas être facile, surtout si l’analyse est effectuée par ordinateur. En incluant ces pics proéminents dans la liste, ce problème est évité. Parce que leurs intensités dépendent de la taille du détecteur, de la géométrie de comptage et de la taille du blindage et de la configuration. Cependant, il est nécessaire de savoir quels pics proviennent des rayons gamma et quels sont les pics d’échappements/ annihilation. Une liste de ces derniers est présentée dans le tableau 6.7.

Les données du tableau 6.6 proviennent de la base de données IUPAC version 2015. Les données sont répertoriées par ordre croissant d’énergie pour faciliter la comparaison avec les pics observés. Avec chaque entrée se trouve le nom de l’isotope, l’élément chimique, la période demi-vie et le rapport d’embranchement ou la probabilité d’émission. La deuxième colonne contient le nom de l’isotope de huit caractères ou moins, symbolisé $XX - AAAm^*$ (XX = symbole de l’élément chimique ; AAA = nombre de masse ; m = métastable et $*$ = interférent). Le symbole de l’élément chimique est donné dans la colonne suivante.

Le tableau 6.7 contient toutes les raies d’échappement susceptible d’être détectées. Ce tableau est organisé de la même manière que le premier avec la spécification du type d’échappement « simple ou double » à la dernière colonne.

Le tableau 6.8 est composé de trois sous tableau regroupant les trois familles d’isotope : courte, moyenne et longue période avec leurs raies abondantes. Chaque tableau est composé

de 4 colonnes. La première contient le symbole chimique de l'élément, la deuxième contient l'isotope associé, la troisième contient la période demi-vie et la dernière contient l'énergie de la raie dominante utilisées dans la pratique. Ce tableau permettra aux utilisateur de choisir le type d'irradiation convenable pour chaque élément d'intérêt.

Afin de faciliter le travail aux utilisateurs de l'AAN, le tableau 6.8 assemble les isotopes groupés par leur période demi-vie.

Le tableau 6.9 comporte les différentes interférences induites par les neutrons rapides. Les trois premières colonnes sont présentées de la même manière que celle du tableau 6.8 avec deux autres colonnes contenant respectivement l'élément interférent et sa section efficace d'interaction. Ce tableau présente les deux types de réactions (n,p) et (n, α).

Tableau 6.6 – Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de K0 (2015) [93].

Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de k_0 (2015)				
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$
58,6	^{60m}Co	Co	10,5	2,089
63,1	^{169}Yb	Yb	46123,2	44,213
63,6	^{188m}Re	Re	18,6	22,583
67,8	^{182}Ta	Ta	164736,0	41,217
69,7	^{153}Sm	Sm	2790,0	4,312
70,4	$^{111m*}\text{Pd}$	Pd	330,0	30,641
74,7	^{239}U	U	23,5	48,101
75,4	^{233}Pa	Th	38836,8	1,408
80,2	^{131}I	Te	11550,2	2,331
80,6	^{166}Ho	Ho	1609,8	6,330
80,9	^{101}Mo	Mo	14,6	4,771
84,3	^{170}Tm	Tm	185184,0	3,260
84,7	^{182}Ta	Ta	164736,0	2,851
86,8	^{233}Pa	Th	38836,8	1,991
86,8	^{160}Tb	Tb	104112,0	13,380
88,0	$^{109m*}\text{Ag}$	Pd	807,6	3,610
88,4	^{176m}Lu	Lu	218,1	8,899
89,4	^{175}Hf	Hf	100800,0	2,354
89,7	^{117}Cd	Cd	149,4	4,071
91,1	^{147}Nd	Nd	15811,2	27,899

Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de k_0 (2015) 6.6				
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$
92,2	^{82}Br	Br	2118,0	0,760
93,6	^{169}Yb	Yb	46123,2	2,557
94,7	^{165}Dy	Dy	140,0	3,580
94,7	^{233}Pa	Th	38836,8	10,997
96,7	^{75}Se	Se	172484,6	3,440
97,0	$^{149*}Nd$	Nd	103,7	1,635
97,1	$^{104m*}Rh$	Rh	4,3	2,985
97,4	^{153}Sm	Sm	2790,0	0,758
97,4	^{153}Gd	Gd	346176,0	30,206
98,4	^{233}Pa	Th	38836,8	17,154
100,0	$^{151*}Pm$	Nd	1704,0	2,536
100,1	^{182}Ta	Ta	164736,0	14,435
101,9	$^{151*}Pm$	Nd	1704,0	1,282
102,3	$^{161*}Gd$	Gd	3,7	17,395
103,2	^{153}Sm	Sm	2790,0	28,298
103,2	^{153}Gd	Gd	346176,0	21,701
103,7	^{239}Np	U	3394,1	19,975
103,9	^{233}Pa	Th	38836,8	0,743
104,0	^{233}Pa	Th	38836,8	0,881
104,3	^{155}Sm	Sm	22,3	74,570
104,8	$^{151*}Pm$	Nd	1704,0	3,512
106,0	^{188m}Re	Re	18,6	10,823
106,1	^{239}Np	U	3394,1	27,246
108,2	$^{165m*}Dy$	Dy	1,3	3,374
109,8	^{169}Yb	Yb	46123,2	16,883
111,6	^{171}Er	Er	451,0	21,115
112,5	^{72}Ga	Ga	846,0	0,134
112,9	^{177}Lu	Lu	9691,2	33,522
113,7	^{182}Ta	Ta	164736,0	2,010
113,8	^{175}Yb	Yb	6026,4	1,932

Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de k_0 (2015) 6.6				
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$
114,3	$^{149*}Nd$	Nd	103,7	19,941
114,4	^{233}Pa	Th	38836,8	2,221
116,7	^{171}Er	Er	451,0	2,359
118,2	^{169}Yb	Yb	46123,2	1,840
120,5	^{147}Nd	Nd	15811,2	0,350
121,1	^{75}Se	Se	172484,6	17,942
121,5	^{71}Zn	Zn	2,5	3,028
121,8	^{152}Eu	Eu	7121498,4	28,419
121,8	^{152m}Eu	Eu	558,7	7,157
122,6	^{186}Re	Re	5353,9	0,530
122,7	^{177}Yb	Yb	114,7	3,719
123,1	^{154}Eu	Eu	4519574,3	40,558
123,8	^{131}Ba	Ba	16560,0	28,159
124,0	^{171}Er	Er	451,0	9,412
129,4	^{191}Os	Os	22176,0	29,013
129,6	^{105m}Rh	Ru	266,4	20,000
129,8	^{105}Ru	Ru	266,4	5,867
130,5	^{169}Yb	Yb	46123,2	11,205
133,0	^{181}Hf	Hf	61041,6	41,836
133,5	^{181}Hf	Hf	61041,6	48,720
133,6	^{131}Ba	Ba	16560,0	2,339
134,0	^{197m}Hg	Hg	1428,0	33,992
134,2	^{187}W	W	1423,2	8,315
136,0	^{75}Se	Se	172484,6	60,329
136,4	^{181}Hf	Hf	61041,6	6,443
137,2	^{186}Re	Re	5353,9	8,219
137,4	^{82}Br	Br	2118,0	0,152
137,7	^{175}Yb	Yb	6026,4	0,117
138,3	^{116m}In	In	54,4	3,723
138,9	^{193}Os	Os	1806,6	3,808

Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de k_0 (2015) 6.6				
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$
139,0	^{193}Os	Os	1806,6	3,872
139,3	^{177}Yb	Yb	114,7	1,469
139,7	^{75m}Ge	Ge	0,8	38,795
140,5	^{99m}Tc	Mo	3956,4	89,065
141,4	^{155}Sm	Sm	22,3	1,978
142,1	^{193}Os	Os	1806,6	0,068
142,5	$^{46m*}\text{Sc}$	Sc	0,3	62,003
142,7	^{59}Fe	Fe	64080,0	0,967
143,2	^{49}Ca	Ca	8,7	0,035
144,9	^{175}Yb	Yb	6026,4	0,326
145,4	^{141}Ce	Ce	46814,4	48,202
149,1	^{105}Ru	Ru	266,4	1,813
150,6	^{177}Yb	Yb	114,7	20,272
151,2	$^{85m*}\text{Sr}$	Sr	67,6	12,794
152,4	^{182}Ta	Ta	164736,0	7,354
153,8	$^{165m*}\text{Dy}$	Dy	1,3	0,264
155,0	^{188}Re	Re	1020,6	14,951
155,9	$^{149*}\text{Nd}$	Nd	103,7	6,007
156,0	^{188m}Re	Re	18,6	0,646
156,0	^{117m}Sn	Sn	19584,0	2,052
156,4	^{182}Ta	Ta	164736,0	2,823
158,4	^{199}Au	Pt	4520,2	3,69E+3
158,5	^{117m}Sn	Sn	19584,0	86,404
158,6	$^{117*}\text{In}$	Cd	201,6	86,957
158,6	^{117m}Sn	Sn	19584,0	84,498
159,4	^{47}Sc	Ca	6531,8	68,016
159,7	^{77m}Ge	Ge	0,9	11,280
163,3	$^{151*}\text{Pm}$	Nd	1704,0	2,432
165,2	$^{161*}\text{Gd}$	Gd	3,7	2,362
165,9	^{139}Ba	Ba	83,1	23,718

Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de k_0 (2015) 6.6				
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$
167,8	$^{-151*}Pm$	Nd	1704,0	9,247
170,7	^{27}Mg	Mg	9,5	0,857
172,2	$^{111m*}Pd$	Pd	330,0	38,754
176,2	$^{70*}Ga$	Ga	21,1	0,239
177,0	$^{151*}Pm$	Nd	1704,0	4,682
177,2	^{169}Yb	Yb	46123,2	22,540
179,4	^{182}Ta	Ta	164736,0	3,293
179,7	^{101}Tc	Mo	14,6	0,639
179,8	^{82}Br	Br	2118,0	0,010
180,9	^{193}Os	Os	1806,6	0,339
181,1	^{99}Mo	Mo	3956,4	5,951
184,1	^{101}Tc	Mo	14,6	1,297
185,8	$^{199*}Pt$	Pt	30,8	1,170
188,6	$^{149*}Nd$	Nd	103,7	1,901
188,9	^{109m}Pd	Pd	4,7	55,097
190,3	^{114m}In	In	71294,4	16,100
191,7	$^{199*}Pt$	Pt	30,8	0,857
191,9	^{101}Mo	Mo	14,6	19,215
192,3	^{59}Fe	Fe	64080,0	2,749
192,4	^{101}Mo	Mo	14,6	22,157
195,9	^{101}Mo	Mo	14,6	2,942
196,6	^{147}Nd	Nd	15811,2	0,200
197,0	^{160}Tb	Tb	104112,0	5,161
198,0	^{169}Yb	Yb	46123,2	35,544
198,4	^{182}Ta	Ta	164736,0	1,540
198,6	^{75}Se	Se	172484,6	1,449
198,6	$^{75*}Ge$	Ge	82,8	1,165
198,9	$^{149*}Nd$	Nd	103,7	1,467
202,5	^{90m}Y	Y	191,4	97,239
203,7	^{205}Hg	Hg	5,2	2,201

Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de k_0 (2015) 6.6				
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$
208,1	$^{149*}Nd$	Nd	103,7	2,811
208,2	^{199}Au	Pt	4520,2	809,746
208,4	^{177}Lu	Lu	9691,2	57,674
209,0	$^{151*}Pm$	Nd	1704,0	1,730
209,8	^{239}Np	U	3394,1	3,260
210,6	^{171}Er	Er	451,0	0,675
211,0	$^{77*}Ge$	Ge	678,0	30,564
211,3	$^{149*}Nd$	Nd	103,7	25,899
214,3	^{179m}Hf	Hf	0,3	17,700
214,9	$^{107m*}Pd$	Pd	0,4	68,702
215,6	^{160}Tb	Tb	104112,0	4,046
215,7	^{97}Ru	Ru	4176,0	86,174
216,1	^{131}Ba	Ba	16560,0	19,856
219,1	^{193}Os	Os	1806,6	0,275
221,5	^{82}Br	Br	2118,0	2,346
222,1	^{182}Ta	Ta	164736,0	8,080
226,0	^{159}Gd	Gd	1113,6	0,162
226,4	^{239}Np	U	3394,1	0,224
228,1	^{239}Np	U	3394,1	11,534
228,2	^{239}Np	U	3394,1	11,325
229,3	^{182}Ta	Ta	164736,0	3,881
231,6	^{143}Ce	Ce	1986,0	2,093
231,9	$^{85m*}Sr$	Sr	67,6	84,401
235,7	^{95}Zr	Zr	92188,8	0,236
237,1	^{171}Er	Er	451,0	0,324
239,6	^{131}Ba	Ba	16560,0	2,332
240,1	$^{151*}Pm$	Nd	1704,0	3,824
240,2	$^{149*}Nd$	Nd	103,7	3,801
244,7	^{152}Eu	Eu	7121498,4	7,638
245,7	^{155}Sm	Sm	22,3	3,706

Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de k_0 (2015) 6.6				
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$
246,5	$^{199*}Pt$	Pt	30,8	0,777
248,0	^{154}Eu	Eu	4519574,3	7,036
249,4	^{131}Ba	Ba	16560,0	2,744
251,6	^{193}Os	Os	1806,6	0,216
254,2	$^{97*}Zr$	Zr	1004,4	1,351
255,1	^{113}Sn	Sn	165744,0	1,821
255,7	$^{151*}Nd$	Nd	12,4	16,430
260,9	^{115}Cd	Cd	3207,6	1,934
262,8	^{105}Ru	Ru	266,4	6,987
264,1	^{182}Ta	Ta	164736,0	3,860
264,4	$^{77*}Ge$	Ge	678,0	53,918
264,6	$^{75*}Ge$	Ge	82,8	11,399
264,7	^{75}Se	Se	172484,6	61,975
267,7	$^{149*}Nd$	Nd	103,7	5,711
270,2	$^{149*}Nd$	Nd	103,7	10,438
273,3	^{117}Cd	Cd	149,4	27,905
273,5	^{82}Br	Br	2118,0	0,805
275,2	^{151}Pm	Nd	1704,0	6,750
275,4	^{147}Nd	Nd	15811,2	0,782
275,9	$^{133m*}Ba$	Ba	2334,0	17,502
277,6	^{239}Np	U	3394,1	14,208
279,0	^{197m}Hg	Hg	1428,0	4,898
279,2	^{203}Hg	Hg	67118,4	80,823
280,4	^{193}Os	Os	1806,6	1,274
282,5	^{175}Yb	Yb	6026,4	2,995
283,6	$^{161*}Gd$	Gd	3,7	6,269
284,3	^{131}I	Te	11550,2	6,199
285,8	^{239}Np	U	3394,1	0,765
286,0	^{149}Pm	Nd	3184,8	3,100
289,3	^{72}Ga	Ga	846,0	0,194

Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de k_0 (2015) 6.6				
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$
293,3	^{143}Ce	Ce	1986,0	42,795
293,5	^{194}Ir	Ir	1158,0	2,594
295,9	^{171}Er	Er	451,0	29,659
296,0	^{192}Ir	Ir	106310,9	28,712
298,6	^{160}Tb	Tb	104112,0	26,282
298,8	^{193}Os	Os	1806,6	0,201
300,1	^{233}Pa	Th	38836,8	6,693
303,9	^{75}Se	Se	172484,6	1,325
306,1	^{105}Rh	Ru	2121,6	5,404
306,8	^{101}Tc	Mo	14,6	87,992
307,7	^{169}Yb	Yb	46123,2	9,406
308,3	^{171}Er	Er	451,0	64,396
308,5	^{192}Ir	Ir	106310,9	29,697
309,1	^{109}Pd	Pd	807,6	0,004
311,1	^{109}Pd	Pd	807,6	0,037
311,4	^{109}Pd	Pd	807,6	0,033
311,9	^{233}Pa	Th	38836,8	38,597
312,7	^{42}K	K	741,6	0,301
314,9	$^{161*}\text{Gd}$	Gd	3,7	22,737
315,3	$^{117m*}\text{In}$	Cd	201,6	19,101
315,9	^{239}Np	U	3394,1	1,538
316,4	^{105}Ru	Ru	266,4	11,520
316,5	^{192}Ir	Ir	106310,9	82,323
317,0	$^{199*}\text{Pt}$	Pt	30,8	1,752
318,9	^{105}Rh	Ru	2121,6	19,101
319,4	^{147}Nd	Nd	15811,2	1,854
320,1	^{51}Ti	Ti	5,8	93,104
320,1	^{51}Cr	Cr	39888,0	10,081
321,6	^{193}Os	Os	1806,6	1,267
324,5	^{97}Ru	Ru	4176,0	10,226

Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de k_0 (2015) 6.6				
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$
326,1	^{105}Ru	Ru	266,4	1,104
326,6	$^{149*}Nd$	Nd	103,7	4,481
328,4	^{194}Ir	Ir	1158,0	13,341
328,8	^{140}La	La	2416,3	20,427
331,9	^{125m}Sn	Sn	9,5	97,199
332,1	$^{125*}Sn$	Sn	13881,6	1,235
334,8	^{59}Fe	Fe	64080,0	0,278
335,8	^{124}Sb	Sb	86688,0	0,080
336,2	^{115m}In	Cd	3207,6	63,674
336,6	^{72}Ga	Ga	846,0	0,108
338,1	$^{161*}Gd$	Gd	3,7	1,709
340,1	$^{151*}Pm$	Nd	1704,0	22,500
340,5	^{233}Pa	Th	38836,8	4,518
343,4	^{175}Hf	Hf	100800,0	87,032
344,2	^{152m}Eu	Eu	558,7	2,408
344,3	^{152}Eu	Eu	7121498,4	26,421
344,5	^{117}Cd	Cd	149,4	17,075
344,9	$^{151*}Pm$	Nd	1704,0	2,120
345,9	^{181}Hf	Hf	61041,6	13,998
348,3	^{159}Gd	Gd	1113,6	0,166
349,1	$^{149*}Nd$	Nd	103,7	1,457
350,2	^{105}Ru	Ru	266,4	1,349
350,6	^{143}Ce	Ce	1986,0	3,193
355,4	$^{97*}Zr$	Zr	1004,4	2,168
360,9	$^{161*}Gd$	Gd	3,7	60,044
361,5	$^{165m*}Dy$	Dy	1,3	0,580
361,7	^{165}Dy	Dy	140,0	0,838
361,8	^{193}Os	Os	1806,6	0,271
363,5	^{159}Gd	Gd	1113,6	8,299
364,5	^{131}I	Te	11550,2	81,180

Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de k_0 (2015) 6.6				
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$
366,3	^{65}Ni	Ni	151,0	4,662
366,4	^{99}Mo	Mo	3956,4	1,199
366,9	$^{117m*}\text{Cd}$	Cd	201,6	3,327
367,4	$^{77*}\text{Ge}$	Ge	678,0	15,204
373,2	^{131}Ba	Ba	16560,0	13,863
375,4	^{233}Pa	Th	38836,8	0,688
381,2	^{72}Ga	Ga	846,0	0,276
387,5	^{193}Os	Os	1806,6	1,231
388,5	^{87m}Sr	Sr	168,2	81,868
391,3	$^{111m*}\text{Pd}$	Pd	330,0	19,993
391,7	^{113m}In	Sn	165744,0	64,897
392,5	^{160}Tb	Tb	104112,0	1,336
393,4	^{105}Ru	Ru	266,4	3,909
396,3	^{175}Yb	Yb	6026,4	6,400
398,2	^{147}Nd	Nd	15811,2	0,793
398,5	^{233}Pa	Th	38836,8	1,418
400,0	^{124}Sb	Sb	86688,0	0,529
400,7	^{75}Se	Se	172484,6	11,852
401,2	^{82}Br	Br	2118,0	0,091
411,1	^{152}Eu	Eu	7121498,4	2,198
411,8	^{198}Au	Au	3880,8	95,602
413,5	$^{111m*}\text{Pd}$	Pd	330,0	6,592
413,5	^{105}Ru	Ru	266,4	2,352
414,4	^{109}Pd	Pd	807,6	0,019
415,5	$^{111m*}\text{Pd}$	Pd	330,0	6,085
415,8	^{233}Pa	Th	38836,8	1,777
416,3	$^{77*}\text{Ge}$	Ge	678,0	23,981
416,9	^{116m}In	In	54,4	27,792
419,1	$^{75*}\text{Ge}$	Ge	82,8	0,185
423,7	$^{149*}\text{Nd}$	Nd	103,7	7,878

Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de k_0 (2015) 6.6				
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$
428,4	^{72}Ga	Ga	846,0	0,201
432,5	^{140}La	La	2416,3	2,989
433,0	^{175}Hf	Hf	100800,0	1,700
434,0	^{108}Ag	Ag	2,4	0,466
434,2	^{117}Cd	Cd	149,4	10,198
438,6	^{69m}Zn	Zn	825,6	94,762
439,9	^{147}Nd	Nd	15811,2	1,154
440,9	$^{151*}\text{Pm}$	Nd	1704,0	1,509
442,9	^{128}I	I	25,0	16,901
443,2	^{180m}Hf	Hf	330,0	82,089
443,6	$^{149*}\text{Nd}$	Nd	103,7	1,196
444,0	^{124}Sb	Sb	86688,0	0,350
444,0	^{152}Eu	Eu	7121498,4	3,086
445,7	$^{151*}\text{Pm}$	Nd	1704,0	4,006
446,8	^{110m}Ag	Ag	359712,0	3,703
460,5	^{193}Os	Os	1806,6	3,950
468,1	^{192}Ir	Ir	106310,9	47,323
468,8	$^{75*}\text{Ge}$	Ge	82,8	0,227
469,4	^{105}Ru	Ru	266,4	17,387
469,5	^{105}Ru	Ru	266,4	18,507
469,9	$^{125*}\text{Sn}$	Sn	13881,6	1,522
474,7	$^{199*}\text{Pt}$	Pt	30,8	0,415
475,4	^{134}Cs	Cs	1086107,4	1,459
478,0	^{188}Re	Re	1020,6	1,018
479,2	^{72}Ga	Ga	846,0	0,092
479,5	^{90m}Y	Y	191,4	91,883
479,6	^{187}W	W	1423,2	21,854
480,1	$^{161*}\text{Gd}$	Gd	3,7	2,296
482,2	^{181}Hf	Hf	61041,6	80,494
482,3	^{152}Eu	Eu	7121498,4	0,027

Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de k_0 (2015) 6.6				
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$
486,5	^{131}Ba	Ba	16560,0	2,484
487,0	^{140}La	La	2416,3	45,338
489,2	^{47}Ca	Ca	6531,8	7,085
492,4	^{115}Cd	Cd	3207,6	8,018
493,8	$^{199*}\text{Pt}$	Pt	30,8	5,730
496,3	^{131}Ba	Ba	16560,0	46,787
497,1	^{103}Ru	Ru	56664,0	91,005
498,4	^{124m}Sb	Sb	20,2	25,000
499,3	^{105}Ru	Ru	266,4	2,107
499,7	^{101}Mo	Mo	14,6	1,492
500,7	^{180m}Hf	Hf	330,0	14,240
505,9	^{101}Mo	Mo	14,6	12,483
507,6	$^{97*}\text{Zr}$	Zr	1004,4	5,041
510,1	^{108}Ag	Ag	2,4	0,592
511,0	^{64}Cu	Cu	762,0	35,138
511,6	^{71}Zn	Zn	2,5	43,056
514,0	^{85}Sr	Sr	93369,6	95,711
515,5	$^{165m*}\text{Dy}$	Dy	1,3	1,660
525,6	$^{111m*}\text{Pd}$	Pd	330,0	4,817
526,6	^{128}I	I	25,0	1,615
527,9	^{115}Cd	Cd	3207,6	38,283
529,5	$^{161*}\text{Gd}$	Gd	3,7	1,276
530,6	^{47}Ca	Ca	6531,8	0,098
531,0	^{147}Nd	Nd	15811,2	12,473
531,4	^{101}Tc	Mo	14,6	1,182
540,5	$^{149*}\text{Nd}$	Nd	103,7	6,647
543,0	$^{199*}\text{Pt}$	Pt	30,8	5,162
545,1	^{101}Tc	Mo	14,6	5,874
551,5	^{187}W	W	1423,2	5,085
552,9	$^{117*}\text{In}$	Cd	201,6	100,000

Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de k_0 (2015) 6.6				
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$
554,3	^{82}Br	Br	2118,0	72,034
555,8	^{104}Rh	Rh	4,3	2,225
556,1	$^{86m*}Rb$	Rb	1,0	100,000
556,4	$^{149*}Nd$	Nd	103,7	1,093
557,0	^{103}Ru	Ru	56664,0	0,847
557,4	^{193}Os	Os	1806,6	1,324
557,9	^{193}Os	Os	1806,6	1,808
558,0	$^{77*}Ge$	Ge	678,0	17,868
558,4	^{114m}In	In	71294,4	4,344
559,1	^{76}As	As	1574,4	45,014
559,2	^{76}As	As	1574,4	46,319
559,3	^{193}Os	Os	1806,6	0,485
562,9	^{152m}Eu	Eu	558,7	0,237
563,2	^{134}Cs	Cs	1086107,4	8,485
563,2	^{76}As	As	1574,4	1,305
564,2	^{122}Sb	Sb	3922,6	69,304
569,3	^{97}Ru	Ru	4176,0	0,885
569,3	^{134}Cs	Cs	1086107,4	15,044
571,5	^{76}As	As	1574,4	0,140
575,0	$^{111m*}Pd$	Pd	330,0	11,771
585,0	^{131}Ba	Ba	16560,0	1,191
590,1	^{101}Mo	Mo	14,6	21,998
591,8	^{154}Eu	Eu	4519574,3	4,902
592,1	^{185}Os	Os	134784,0	1,330
601,0	^{72}Ga	Ga	846,0	5,613
602,4	$^{97*}Zr$	Zr	1004,4	1,411
602,5	^{109}Pd	Pd	807,6	0,008
602,7	^{124}Sb	Sb	86688,0	97,787
602,7	^{124m}Sb	Sb	20,2	25,000
604,7	^{134}Cs	Cs	1086107,4	97,561

Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de k_0 (2015) 6.6				
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$
606,4	^{82}Br	Br	2118,0	1,192
608,6	^{51}Ti	Ti	5,8	1,182
610,3	^{103}Ru	Ru	56664,0	5,680
616,6	^{80}Br	Br	265,3	6,690
617,7	$^{75*}Ge$	Ge	82,8	0,089
618,3	^{187}W	W	1423,2	6,365
618,9	^{108}Ag	Ag	2,4	0,273
619,1	^{82}Br	Br	2118,0	43,886
620,1	^{131}Ba	Ba	16560,0	1,690
620,4	^{110m}Ag	Ag	359712,0	2,777
625,5	^{187}W	W	1423,2	1,009
630,0	^{72}Ga	Ga	846,0	27,244
631,8	$^{117m*}Cd$	Cd	201,6	2,799
631,8	$^{77*}Ge$	Ge	678,0	8,150
632,8	$^{111m*}Pd$	Pd	330,0	13,184
633,0	^{108}Ag	Ag	2,4	1,760
633,0	^{188}Re	Re	1020,6	1,314
633,2	^{188}Re	Re	1020,6	1,470
633,4	^{165}Dy	Dy	140,0	0,564
635,0	^{188}Re	Re	1020,6	0,155
636,2	$^{151*}Pm$	Nd	1704,0	1,418
636,3	^{109}Pd	Pd	807,6	0,010
637,0	^{131}I	Te	11550,2	7,097
639,4	^{80}Br	Br	265,3	0,231
645,1	^{194}Ir	Ir	1158	1,221
645,8	^{124m}Sb	Sb	20,2	25
645,9	^{124}Sb	Sb	86688	7,301
646,1	^{185}Os	Os	134784	81,003
647,3	^{109}Pd	Pd	807,6	0,025
657,1	^{76}As	As	1574,4	6,16

Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de k_0 (2015) 6.6				
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$
657,5	^{110}Ag	Ag	0,4	4,5
657,8	^{110m}Ag	Ag	359712	95,29
657,9	^{97}Nb	Zr	1004,4	93,373
664,6	^{143}Ce	Ce	1986	5,702
665,3	^{76}As	As	1574,4	0,364
665,8	^{80}Br	Br	265,3	1,179
675,9	^{198}Au	Au	3880,8	0,804
676,4	^{105}Ru	Ru	266,4	15,733
677,6	^{110m}Ag	Ag	359712	10,7
681,8	^{90m}Y	Y	191,4	0,323
685,7	^{187}W	W	1423,2	27,299
685,9	^{147}Nd	Nd	15811,2	0,733
687	^{110m}Ag	Ag	359712	6,616
692,4	^{154}Eu	Eu	4519574,3	1,739
692,7	^{122}Sb	Sb	3922,6	3,766
694,2	$^{111m*}\text{Pd}$	Pd	330	7,389
695,6	^{101}Mo	Mo	14,6	7,395
698,4	^{82}Br	Br	2118	28,39
702,6	^{94m}Nb	Nb	6,3	0,003
703,8	$^{97*}\text{Zr}$	Zr	1004,4	1,01
703,8	^{80}Br	Br	265,3	0,183
706,7	^{110m}Ag	Ag	359712	16,417
706,8	^{110m}Ag	Ag	359712	16,662
709,3	^{124}Sb	Sb	86688	1,421
713	^{101}Mo	Mo	14,6	3,631
713,8	^{124}Sb	Sb	86688	2,385
714,4	$^{77*}\text{Ge}$	Ge	678	8,934
714,6	$^{199*}\text{Pt}$	Pt	30,8	0,672
715,3	^{165}Dy	Dy	140	0,524
715,6	^{101}Tc	Mo	14,6	0,689

Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de k_0 (2015) 6.6				
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$
717,4	^{185}Os	Os	134784	4,119
717,7	$^{151*}\text{Pm}$	Nd	1704	4,045
721,9	^{143}Ce	Ce	1986	5,453
722,8	^{124}Sb	Sb	86688	10,538
723,3	^{154}Eu	Eu	4519574,3	20,245
724,2	^{95}Zr	Zr	92188,8	42,18
724,3	^{105}Ru	Ru	266,4	47,307
725,2	^{114m}In	In	71294,4	4,405
739,5	^{99}Mo	Mo	3956,4	12,131
740,1	^{76}As	As	1574,4	0,117
743,4	^{97m}Nb	Zr	1004,4	93,656
744,3	^{110m}Ag	Ag	359712	4,601
756,7	^{95}Zr	Zr	92188,8	52,133
756,9	^{154}Eu	Eu	4519574,3	4,902
762,7	$^{117m*}\text{Cd}$	Cd	201,6	1,73
763,9	^{110m}Ag	Ag	359712	22,516
765,3	^{160}Tb	Tb	104112	2,123
765,8	^{95}Nb	Zr	92188,8	95,595
767,1	^{47}Ca	Ca	6531,8	0,188
771,7	^{76}As	As	1574,4	0,121
772,9	^{187}W	W	1423,2	4,128
776,5	^{82}Br	Br	2118	83,535
777,9	^{99}Mo	Mo	3956,4	4,259
778,9	^{152}Eu	Eu	7121498,4	12,655
781,4	^{109}Pd	Pd	807,6	0,01
786,4	^{72}Ga	Ga	846	3,236
791,7	$^{199*}\text{Pt}$	Pt	30,8	0,383
795,9	^{134}Cs	Cs	1086107,4	85,058
802	^{134}Cs	Cs	1086107,4	8,424
807,9	^{47}Ca	Ca	6531,8	7,132

Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de k_0 (2015) 6.6				
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$
810,2	^{72}Ga	Ga	846	2,03
815,8	^{140}La	La	2416,3	23,63
818	^{110m}Ag	Ag	359712	7,324
818,7	^{116m}In	In	54,4	12,385
822,5	$^{125*}\text{Sn}$	Sn	13881,6	4,526
826,2	^{60m}Co	Co	10,5	0,008
827,8	^{82}Br	Br	2118	24,183
829,5	^{188}Re	Re	1020,6	0,418
831,8	^{117}Cd	Cd	149,4	2,213
834	^{72}Ga	Ga	846	95,63
841,6	^{152m}Eu	Eu	558,7	14,603
843,8	^{27}Mg	Mg	9,5	71,793
846,8	^{56}Mn	Mn	154,7	98,864
856,1	^{49}Ca	Ca	8,7	0,13
860,4	$^{117m*}\text{Cd}$	Cd	201,6	7,92
867,4	^{152}Eu	Eu	7121498,4	4,174
867,6	^{76}As	As	1574,4	0,13
867,8	^{140}La	La	2416,3	5,587
870,9	^{101}Mo	Mo	14,6	2,282
871	^{94m}Nb	Nb	6,3	0,5
873,2	^{154}Eu	Eu	4519574,3	12,347
874,8	^{185}Os	Os	134784	6,61
875,9	^{105}Ru	Ru	266,4	2,592
877,4	^{101}Mo	Mo	14,6	4,055
879,4	^{160}Tb	Tb	104112	30,01
880,7	^{117}Cd	Cd	149,4	4,119
884,7	^{110m}Ag	Ag	359712	73,237
889,3	^{46}Sc	Sc	120715,2	100
894,2	^{72}Ga	Ga	846	9,984
898	^{88}Rb	Rb	17,8	13,768

Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de k_0 (2015) 6.6				
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$
898,9	^{177}Yb	Yb	114,7	0,707
915,6	$^{125*}\text{Sn}$	Sn	13881,6	4,246
919,6	^{140}La	La	2416,3	2,676
925,2	^{140}La	La	2416,3	7,046
928,6	^{51}Ti	Ti	5,8	6,597
931,3	^{188}Re	Re	1020,6	0,548
931,4	$^{117m*}\text{Cd}$	Cd	201,6	3,639
934,1	^{101}Mo	Mo	14,6	4,638
937,5	^{110m}Ag	Ag	359712	34,577
938,7	^{194}Ir	Ir	1158	0,612
941,8	^{177}Yb	Yb	114,7	1,104
945,7	^{117}Cd	Cd	149,4	1,502
952	^{82}Br	Br	2118	0,378
962,3	^{160}Tb	Tb	104112	9,716
963,3	^{152m}Eu	Eu	558,7	12,041
964,1	^{152}Eu	Eu	7121498,4	14,343
965,1	^{160}Tb	Tb	104112	34,406
966,2	^{160}Tb	Tb	104112	24,976
968,2	^{124}Sb	Sb	86688	1,827
968,3	$^{199*}\text{Pt}$	Pt	30,8	0,404
969,4	^{105}Ru	Ru	266,4	2,181
970,6	^{72}Ga	Ga	846	1,117
987,3	^{49}Ca	Ca	8,7	0,076
996,4	^{154}Eu	Eu	4519574,3	10,440
1001,7	^{182}Ta	Ta	164736	2,213
1004,7	^{154}Eu	Eu	4519574,3	17,903
1007,6	^{82}Br	Br	2118	1,338
1011,1	^{101}Mo	Mo	14,6	0,994
1012,4	^{101}Mo	Mo	14,6	16,38
1012,5	^{101}Mo	Mo	14,6	15,372

Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de k_0 (2015) 6.6				
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$
1014,4	^{27}Mg	Mg	9,5	27,809
1021,3	$^{97*}Zr$	Zr	1004,4	1,344
1024,4	^{97}Nb	Zr	1004,4	1,077
1028,1	^{177}Yb	Yb	114,7	0,667
1029,1	$^{117m*}Cd$	Cd	201,6	11,698
1038,6	^{134}Cs	Cs	1086107,4	1
1039,2	^{66}Cu	Cu	5,1	7,399
1039,2	$^{70*}Ga$	Ga	21,1	0,65
1047,6	^{131}Ba	Ba	16560	1,3
1050,7	^{72}Ga	Ga	846	7,003
1051,7	^{117}Cd	Cd	149,4	4,458
1066	$^{117m*}Cd$	Cd	201,6	23,071
1067,1	$^{125*}Sn$	Sn	13881,6	10
1077	^{86}Rb	Rb	26827,2	8,64
1080,2	^{177}Yb	Yb	114,7	6,077
1081,3	^{82}Br	Br	2118	0,642
1085,2	$^{77*}Ge$	Ge	678	6,544
1085,9	^{152}Eu	Eu	7121498,4	10,147
1088,9	$^{125*}Sn$	Sn	13881,6	5,668
1089,7	^{152}Eu	Eu	7121498,4	1,685
1097,3	^{116m}In	In	54,4	58,975
1099,3	^{59}Fe	Fe	64080	56,509
1112,1	^{152}Eu	Eu	7121498,4	13,477
1115,1	^{160}Tb	Tb	104112	1,575
1115,5	^{65}Zn	Zn	351792	50,619
1115,5	^{65}Ni	Ni	151	15,119
1115,9	$^{111m*}Pd$	Pd	330	4,057
1119,7	^{177}Yb	Yb	114,7	0,621
1120,5	^{46}Sc	Sc	120715,2	100,000
1121,3	^{182}Ta	Ta	164736	37,54

Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de k_0 (2015) 6.6				
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$
1129,9	^{76}As	As	1574,4	0,126
1142,5	^{117}Cd	Cd	149,4	1,644
1144,5	^{49}Ca	Ca	8,7	0,11
1148	$^{97*}\text{Zr}$	Zr	1004,4	2,532
1149,8	^{177}Yb	Yb	114,7	0,671
1150,8	^{194}Ir	Ir	1158	0,605
1157,5	^{182}Ta	Ta	164736	1,059
1161	^{101}Mo	Mo	14,6	4,824
1168	^{134}Cs	Cs	1086107,4	1,8
1173,2	^{60}Co	Co	2772432	100
1178	^{160}Tb	Tb	104112	15,005
1180,9	$^{151*}\text{Nd}$	Nd	12,4	13,671
1189,1	^{182}Ta	Ta	164736	17,612
1193,3	$^{77*}\text{Ge}$	Ge	678	33,542
1199,9	^{160}Tb	Tb	104112	2,399
1212,9	^{76}As	As	1574,4	1,417
1213	^{152}Eu	Eu	7121498,4	1,401
1215,2	^{72}Ga	Ga	846	0,799
1215,2	^{76}As	As	1574,4	4,893
1216,1	^{76}As	As	1574,4	3,476
1221,4	^{182}Ta	Ta	164736	29,278
1231	^{182}Ta	Ta	164736	12,347
1234,6	$^{117m*}\text{Cd}$	Cd	201,6	11,007
1241,2	^{177}Yb	Yb	114,7	3,673
1251	^{101}Mo	Mo	14,6	5,672
1257,4	^{182}Ta	Ta	164736	1,593
1260,1	^{72}Ga	Ga	846	1,143
1266,2	^{31}Si	Si	157,3	0,07
1271,9	^{160}Tb	Tb	104112	7,486
1274,4	^{154}Eu	Eu	4519574,3	35,27

Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de k_0 (2015) 6.6				
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$
1276,1	$^{97*}Zr$	Zr	1004,4	0,973
1276,8	^{72}Ga	Ga	846	1,585
1289,2	^{182}Ta	Ta	164736	1,443
1291,3	^{72}Ga	Ga	846	0,058
1291,6	^{59}Fe	Fe	64080	43,127
1293,5	^{116m}In	In	54,4	84,408
1293,6	^{41}Ar	Ar	109,3	3,32
1297,1	^{47}Ca	Ca	6531,8	73,953
1299,1	^{152}Eu	Eu	7121498,4	1,603
1303,3	^{117}Cd	Cd	149,4	18,498
1304	^{101}Mo	Mo	14,6	3,446
1312,1	^{160}Tb	Tb	104112	2,861
1314,7	^{152m}Eu	Eu	558,7	1,006
1317,5	^{82}Br	Br	2118	26,967
1325,5	^{124}Sb	Sb	86688	1,411
1332,5	^{60}Co	Co	2772432	100,000
1332,5	^{60m}Co	Co	10,5	0,242
1333,6	^{52}V	V	3,8	0,592
1337,6	^{117}Cd	Cd	149,4	1,589
1339,3	$^{117m*}Cd$	Cd	201,6	2,1
1345,8	^{64}Cu	Cu	762	0,473
1362,7	$^{97*}Zr$	Zr	1004,4	1,351
1365,2	^{134}Cs	Cs	1086107,4	3,033
1366,3	^{88}Rb	Rb	17,8	0,097
1368,2	^{124}Sb	Sb	86688	2,346
1368,6	^{24}Na	Na	897,6	100,000
1379,4	^{166}Ho	Ho	1609,8	0,891
1382,5	^{88}Rb	Rb	17,8	0,703
1384,3	^{110m}Ag	Ag	359712	24,83
1389	^{152m}Eu	Eu	558,7	0,808

Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de k_0 (2015) 6.6				
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$
1408	^{152}Eu	Eu	7121498,4	20,782
1408,9	^{49}Ca	Ca	8,7	0,63
1420,5	^{139}Ba	Ba	83,1	0,26
1432,9	$^{117m*}\text{Cd}$	Cd	201,6	17,059
1439,1	^{76}As	As	1574,4	0,279
1453,6	^{76}As	As	1574,4	0,108
1464	^{72}Ga	Ga	846	3,602
1474,9	^{82}Br	Br	2118	16,404
1475,8	^{110m}Ag	Ag	359712	4,084
1481,8	^{65}Ni	Ni	151	23,588
1505	^{110m}Ag	Ag	359712	13,177
1507,4	^{116m}In	In	54,4	9,915
1524,7	^{42}K	K	741,6	17,9
1526,2	^{124}Sb	Sb	86688	0,387
1532,5	^{101}Mo	Mo	14,6	7,236
1562,3	^{110m}Ag	Ag	359712	1,184
1562,5	^{117}Cd	Cd	149,4	1,399
1575,6	^{142}Pr	Pr	1147,2	3,7
1576,6	^{117}Cd	Cd	149,4	11,146
1581,9	^{166}Ho	Ho	1609,8	0,179
1596,2	^{140}La	La	2416,3	95,374
1596,5	^{154}Eu	Eu	4519574,3	1,79
1596,7	^{72}Ga	Ga	846	4,297
1633,6	^{20}F	F	0,2	100
1642,7	^{38}Cl	Cl	37,2	32,589
1650,4	^{82}Br	Br	2118	0,805
1662,5	^{166}Ho	Ho	1609,8	0,112
1691	^{124}Sb	Sb	86688	46,581
1691,1	$^{111m*}\text{Pd}$	Pd	330	4,745
1723,1	^{117}Cd	Cd	149,4	1,968

Liste des rays gammas générées à partir de la librairie de k_0 (2015) 6.6				
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$
1750,2	$^{97*}Zr$	Zr	1004,4	1,344
1753,8	^{116m}In	In	54,4	2,459
1778,9	^{28}Al	Al	2,2	100
1779,9	^{88}Rb	Rb	17,8	0,204
1787,7	^{76}As	As	1574,4	0,293
1810,7	^{56}Mn	Mn	154,7	26,909
1836	^{88}Rb	Rb	17,8	21,401
1861,1	^{72}Ga	Ga	846	5,321
1997,3	$^{117m*}Cd$	Cd	201,6	26,198
2090,9	^{124}Sb	Sb	86688	5,22
2096,3	^{76}As	As	1574,4	0,549
2112,1	^{116m}In	In	54,4	15,407
2113,1	^{56}Mn	Mn	154,7	14,291
2158,7	^{60m}Co	Co	10,5	7,21E-4
2167,4	^{38}Cl	Cl	37,2	44,003
2201,7	^{72}Ga	Ga	846,0	27,062
2491,0	^{72}Ga	Ga	846,0	7,661
2677,9	^{88}Rb	Rb	17,8	2,004
2754,0	^{24}Na	Na	897,6	98,718
3084,4	^{49}Ca	Ca	8,7	92,069
3103,4	^{37}S	S	5,1	94,231

Tableau 6.7 – Pics d'échappements.

Pics d'échappements					
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$	Type
90,1	^{152}Eu	Eu	7121498,4	13,477	(double)
93,5	^{65}Ni	Ni	151	15,119	(double)
93,5	^{65}Zn	Zn	351792	50,619	(double)
98,5	^{46}Sc	Sc	120715,2	100	(double)
99,3	^{182}Ta	Ta	164736	37,54	(double)
126	$^{97*}\text{Zr}$	Zr	1004,4	2,65	(double)
151,2	^{60}Co	Co	2772432	100	(double)
156	^{160}Tb	Tb	104112	15,005	(double)
158,6	$^{151*}\text{Nd}$	Nd	12,4	13,671	(double)
167,1	^{182}Ta	Ta	164736	17,612	(double)
171,3	$^{77*}\text{Ge}$	Ge	678	33,699	(double)
199,4	^{182}Ta	Ta	164736	29,278	(double)
209	^{182}Ta	Ta	164736	12,347	(double)
229	^{101}Mo	Mo	14,6	5,672	(double)
249,9	^{160}Tb	Tb	104112	7,486	(double)
252,4	^{154}Eu	Eu	4519574,3	35,27	(double)
269,6	^{59}Fe	Fe	64080	43,127	(double)
271,5	^{116m}In	In	54,4	84,408	(double)
275,1	^{47}Ca	Ca	6531,8	73,953	(double)
295,5	^{82}Br	Br	2118	26,967	(double)
310,5	^{60}Co	Co	2772432	100	(double)
323,8	^{64}Cu	Cu	762	0,473	(double)
340,7	$^{97*}\text{Zr}$	Zr	1004,4	1,351	(double)
346,6	^{24}Na	Na	897,6	100	(double)
362,3	^{110m}Ag	Ag	359712	24,83	(double)
386	^{152}Eu	Eu	7121498,4	20,782	(double)
412,1	^{52}V	V	3,8	100	(double)
452,9	^{82}Br	Br	2118	16,404	(double)

Pics d'échappements 6.7					
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$	Type
459,8	^{65}Ni	Ni	151	23,588	(double)
483	^{110m}Ag	Ag	359712	13,177	(double)
485,5	^{116m}In	In	54,4	9,915	(double)
502,7	^{42}K	K	741,6	17,9	(double)
510,5	^{101}Mo	Mo	14,6	7,236	(double)
528,2	^{66}Cu	Cu	5,1	7,399	(simple)
528,2	$^{70*}\text{Ga}$	Ga	21,1	0,65	(simple)
566	^{86}Rb	Rb	26827,2	8,64	(simple)
574,5	^{140}La	La	2416,3	95,374	(double)
601,1	^{152}Eu	Eu	7121498,4	13,477	(simple)
604,5	^{65}Zn	Zn	351792	50,619	(simple)
604,5	^{65}Ni	Ni	151	15,119	(simple)
609,5	^{46}Sc	Sc	120715,2	100	(simple)
610,3	^{182}Ta	Ta	164736	37,54	(simple)
620,7	^{38}Cl	Cl	37,2	32,589	(double)
637	$^{97*}\text{Zr}$	Zr	1004,4	2,65	(simple)
662,2	^{60}Co	Co	2772432	100	(simple)
667	^{160}Tb	Tb	104112	15,005	(simple)
669	^{124}Sb	Sb	86688	46,581	(double)
669,1	$^{111m*}\text{Pd}$	Pd	330	4,745	(double)
669,6	$^{151*}\text{Nd}$	Nd	12,4	13,671	(simple)
678,1	^{182}Ta	Ta	164736	17,612	(simple)
682,3	$^{77*}\text{Ge}$	Ge	678	33,542	(simple)
710,4	^{182}Ta	Ta	164736	29,278	(simple)
720	^{182}Ta	Ta	164736	12,347	(simple)
728,5	$^{97*}\text{Zr}$	Zr	1004,4	1,344	(double)
740	^{101}Mo	Mo	14,6	5,672	(simple)
756,9	^{28}Al	Al	2,2	100	(double)
760,9	^{160}Tb	Tb	104112	7,486	(simple)
763,4	^{154}Eu	Eu	4519574,3	35,27	(simple)

Pics d'échappements 6.7					
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$	Type
765,1	$^{97*}Zr$	Zr	1004,4	0,973	(simple)
780,6	^{59}Fe	Fe	64080	43,127	(simple)
782,5	^{116m}In	In	54,4	84,408	(simple)
786,1	^{47}Ca	Ca	6531,8	73,953	(simple)
788,7	^{56}Mn	Mn	154,7	26,909	(double)
806,5	^{82}Br	Br	2118	26,967	(simple)
814	^{88}Rb	Rb	17,8	21,401	(double)
821,5	^{60}Co	Co	2772432	100	(simple)
834,8	^{64}Cu	Cu	762	0,473	(simple)
839,1	^{72}Ga	Ga	846	5,321	(double)
851,7	$^{97*}Zr$	Zr	1004,4	1,351	(simple)
857,6	^{24}Na	Na	897,6	100	(simple)
873,3	^{110m}Ag	Ag	359712	24,83	(simple)
897	^{152}Eu	Eu	7121498,4	20,782	(simple)
923,1	^{52}V	V	3,8	100	(simple)
963,9	^{82}Br	Br	2118	13,68	(simple)
970,8	^{65}Ni	Ni	151	23,588	(simple)
994	^{110m}Ag	Ag	359712	13,177	(simple)
996,5	^{116m}In	In	54,4	9,915	(simple)
1013,7	^{42}K	K	741,6	17,9	(simple)
1021,5	^{101}Mo	Mo	14,6	7,236	(simple)
1068,9	^{124}Sb	Sb	86688	5,22	(double)
1085,5	^{140}La	La	2416,3	95,374	(simple)
1090,2	^{116m}In	In	54,4	15,407	(double)
1091,1	^{56}Mn	Mn	154,7	14,291	(double)
1131,7	^{38}Cl	Cl	37,2	32,589	(simple)
1145,4	^{38}Cl	Cl	37,2	44,003	(double)
1179,7	^{72}Ga	Ga	846	27,062	(double)
1180	^{124}Sb	Sb	86688	46,581	(simple)
1180,1	$^{111m*}Pd$	Pd	330	4,745	(simple)

Pics d'échappements 6.7					
Energie (keV)	Isotope	Elément	T 1/2(min)	$\gamma\%$	Type
1239,5	$^{97*}Zr$	Zr	1004,4	1,344	(simple)
1267,9	^{28}Al	Al	2,2	100	(simple)
1299,7	^{56}Mn	Mn	154,7	26,909	(simple)
1325	^{88}Rb	Rb	17,8	21,401	(simple)
1350,1	^{72}Ga	Ga	846	5,321	(simple)
1469	^{72}Ga	Ga	846	7,661	(double)
1579,9	^{124}Sb	Sb	86688	5,22	(simple)
1601,2	^{116m}In	In	54,4	15,407	(simple)
1602,1	^{56}Mn	Mn	154,7	14,291	(simple)
1656,4	^{38}Cl	Cl	37,2	44,003	(simple)
1690,7	^{72}Ga	Ga	846	27,062	(simple)
1732	^{24}Na	Na	897,6	98,718	(double)
1980	^{72}Ga	Ga	846	7,661	(simple)
2062,4	^{49}Ca	Ca	8,7	92,069	(double)
2081,4	^{37}S	S	5,1	94,231	(double)
2243	^{24}Na	Na	897,6	98,718	(simple)
2573,4	^{49}Ca	Ca	8,7	92,069	(simple)
2592,4	^{37}S	S	5,1	94,231	(simple)

Tableau 6.8 – Liste des éléments triés par leurs périodes.

Liste des éléments triés par leurs périodes			
Courte périodes			
Eléments	Isotope	Demi-vie	Energies des rais gamma(keV)
Ag	^{110}Ag	24,6 sec	657,8
Al	^{28}Al	2,24 min	1778,9
Ba	^{139}Ba	83,2 min	165,9
Br	^{80}Br	17,7 min	616,2
Br	^{80m}Br	4,42 h	37,1
Ca	^{49}Ca	8,7 min	3084,4
Cl	^{38}Cl	37,3 min	1642,4; 2167,5
Co	^{60m}Co	10,48 min	58,6
Cu	^{66}Cu	5,1 min	1039,4
I	^{128}I	25,0 min	442,3
In	^{116m}In	54,2 min	416,9; 1097,3
K	^{42}K	12,36 h	1524,7
Mg	^{27}Mg	9,45 min	843,8; 1014,4
Mn	^{56}Mn	2,58 h	846,7; 1810,7; 2212
Na	^{24}Na	15,0 h	1368,6; 2754,1
Se	^{77m}Se	17,4 sec	161,7
Sb	^{122m}Sb	4,15 min	61,5
Si^a	^{29}Al	6,6 min	1273
Sn	^{125m}Sn	9 min	332,4
Sr	^{87m}Sr	2,81 h	388,4
Ti	^{51}Ti	5,8 min	320,1
U	^{239}U	23,5 min	74,6
V	^{52}V	3,76 min	1434,1
^aSi est détecté par la réaction $^{29}\text{Si}(n, p)^{29}\text{Al}$			
Moyenne période			
As	^{76}As	26,3 h	559,1
Au	^{198}Au	2,7 j	411,8

Liste des éléments triés par leurs périodes 6.8			
Eléments	Isotope	Demi-vie	Energies des rais gamma(keV)
Moyenne période			
Br	^{82}Br	35,3 h	554,3 ; 776,5
Cu	^{64}Cu	12, h	511
Cd^b	^{115m}In	53,5 h	336,3
Hg	^{197}Hg	64,1 h	77,4
K	^{42}K	12,36 h	1524,7
La	^{140}La	40,23 h	328,8 ; 487,0 ; 1596,2
Mo	^{99}Mo	66,02 h	140,5
Na	^{24}Na	15,02 h	1368,6 ; 2754,1
Sb	^{122}Sb	2,72 j	564
Sm	^{153}Sm	46,7 h	103,2
U^c	^{239}Np	2,35 j	277,7
W	^{187}W	23,9 h	685,8
Zn	^{69m}Zn	13,8 h	438,6
bCd est déterminé à partir de la réaction $^{114}Cd(n, \gamma)^{115}Cd(\beta) \longrightarrow ^{115}In$ cU est déterminé à partir de la réaction $^{238}U(n, \gamma)^{239}U(\beta) \longrightarrow ^{239}Np$			
Longue période			
Ag	^{110m}Ag	249,8 j	657,8
Ce	^{141}Ce	32,5 j	145,4
Cr	^{51}Cr	27,72 j	320
Cs	^{134}Cs	2,06 a	795,8
Co	^{60}Co	5,27 a	1173,2 ; 1332,4
Eu	^{152}Eu	13,4 a	1408
Fe	^{59}Fe	44,5 j	1099,2 ; 1291,6
Fe^d	^{54}Mn	312 j	834,5
Hf	^{181}Hf	42,4 j	482,2
Hg	^{203}Hg	46,6 j	279,2
Ni^e	^{58}Co	70,9 j	810,8
Rb	^{86}Rb	18,7 j	1076,6
Sb	^{124}Sb	60,2 j	1691

Liste des éléments triés par leurs périodes 6.8			
Eléments	Isotope	Demi-vie	Energies des rais gamma(keV)
Longue période			
Sc	^{46}Sc	83,8 j	89,3 ; 1120,5
Se	^{75}Se	119,8 j	136,0 ; 264,7 ; 400,7
Sn	^{113}Sn	114,4 j	391,7
Sr	^{85}Sr	64,84 j	514
Ta	^{182}Ta	115,0 j	1221,4
Th^f	^{233}Pa	27,0 j	311,9
Zn	^{65}Zn	243,8 j	1115,5
Zr	^{95}Zr	64,0 j	756,7
^eFe est déterminé en exploitant la réaction $^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$ ^eNi est déterminé en exploitant la réaction $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$ ^fTh est déterminé en exploitant la réaction $^{232}\text{Th}(n, g)^{233}\text{Th} \rightarrow ^{233}\text{Pa}$			

Tableau 6.9 – Liste des interférences relatives aux neutron rapide.

Interférences (n, p)				
Eléments	Produit d'activation	Demi-vie	Interfèrent	$\sigma_{rapid}(\text{mb})$
Na	^{24}Na	15h	^{24}Mg	1,53
Mg	^{27}Mg	9min	^{27}Al	4
Al	^{28}Al	2min	28Si	6,6
Si	^{31}Si	3h	^{31}P	36
P	^{31}P	14j	^{32}S	69
S	^{35}S	88j	35Cl	78
S	^{37}S	5min	37Cl	0,218
Sc	^{46}Sc	80j	46Ti	12,5
Ti	^{51}Ti	6min	51V	0,87
V	^{52}V	4min	52Cr	1,09
Mn	^{56}Mn	3h	56Fe	1,07
Fe	^{59}Fe	40j	59Co	1,42
Co	^{60}Co	5y	60Ni	2,1
Ni	^{65}Ni	3h	65Cu	0,48
Cu	^{64}Cu	13h	64Zn	31
Cu	^{66}Cu	5min	66Zn	0,62
As	^{76}As	26min	76Se	0,17
Rb	^{88}Rb	18min	88Sr	0,15
Sr	^{89}Sr	50j	89Y	0,31
Interférences (n, α)				
Eléments	Produit d'activation	Demi-vie	Interfèrent	$\sigma_{rapid}(\text{mb})$
Na	^{24}Na	15h	^{27}Al	0,725
Mg	^{27}Mg	9min	^{30}Si	0,155
Al	^{28}Al	2min	^{31}P	1,9
P	^{32}P	14j	^{35}Cl	8,8
V	^{52}V	4min	^{55}Mn	0,11
Cr	^{51}Cr	30j	^{54}Fe	0,6
Mn	^{56}Mn	3h	^{59}Co	0,156

Interférences (n, α) 6.9				
Eléments	Produit d'activation	Demi-vie	Interférent	σ_{rapid} (mb)
Fe	^{59}Fe	40j	^{62}Ni	0,09
Co	^{60}Co	5a	^{63}Cu	0,5
Ni	^{65}Ni	3h	^{68}Zn	0,05
As	^{76}As	26h	^{79}Br	0,02
Sr	^{89}Sr	50j	^{92}Zr	0,01

Bibliographie

- [1] H. Levi, "Semicentennial Lecture", in 7th International Conference Modern Trends in Activation Analysis, Copenhagen, Denmark, 1986.
- [2] J.M. Bowen et al., "Radioactivation Analysis", Oxford University Press, Oxford UK, 1963, p. 295 pp.
- [3] H. L. G. Hevesy, "Artificial Activity of Hafnium and some other Elements, Det. Kgl. Danske Videnskabernes Selskab", Mathematisk-fysiske Meddelelser XV, 1938, p. 11–21.
- [4] G. Boyd, "Method of Activation Analysis", Anal. Chem., 1949, p. 335–347.
- [5] H. Brown et al., "The Neutron Pile as a Tool in Quantitative Analysis; the Gallium and Palladium Content of Iron Meteorites", Science, 109(1949), p. 347–353.
- [6] T. Kohman et al., "Measurement Techniques of Applied Radiochemistry", Anal. Chem., 21(1949), p. 352–364.
- [7] W. Wayne Meinke et al., "Nucleonics", Anal. Chem, 28 (1956), p. 736–756.
- [8] R.C. Plumb et al., "How to minimize errors in neutron activation analysis", Nucleonics, 13(1955), p. 42–46.
- [9] L.H. Rietjens et al., "Influence of distance between source and crystal on detection efficiency of gamma-ray scintillation spectrometers", Physica, 21 (1955), p. 110–116.
- [10] W. Lewis, "Isotope production, how to choose irradiation times", Nucleonics, 12 (1954), p. 30–33.
- [11] G. Leliart et al., "Activation analysis of Vanadium in high alloy steels using Manganese as internal standard", Anal. Chim. Acta, 19 (1958), p. 100–107.
- [12] G. Cook, "Radioactivation analysis in a nuclear reactor", Pure and Applied Chemistry, 1(1960), p. 15–30.
- [13] D. De Soete et al., Neutron activation analysis, London : Wiley-Interscience, 1972.
- [14] Advisory Group of the International Atomic Energy Agency, "Quality assurance in biomedical neutron activation analysis", Anal. Chim. Acta, 165 (1984), p. 1–29.
- [15] H. Kawamura et al., "Analytical quality assurance procedures developed for the IAEA's Reference Asian Man Project (Phase 2)", J. Radioanal. Nucl. Chem., 2000, p. 123–126.
- [16] P. Bode et al., "Accreditation : a prerequisite, also for neutron activation analysis laboratories", J. Radioanal. Nucl. Chem., 179 (1994), p. 141–148.
- [17] M. Rossbach et al., "Quality system implementation in Member States of the IAEA", Accred. Qualit. Assur., 10 (2006), p. 583–589.
- [18] M. Bounakhla et al., "Air pollution assessment of Salé's city (Morocco)", Journal de Physique IV , vol. (Proceedings) 107, May 2003.
- [19] J. Kučera, "The Use of Neutron Activation Analysis in Environmental and Biomedical Research", AIP Conference , Vols. Proceedings 958, 28 (2007).
- [20] K. Embarch et al., "Instrumental neutron activation analysis of Moroccan geological samples using the k_0 -standardization method", Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2000.

- [21] H. Bounouira et al., "Distribution of the Rare Earth Elements in the Sediments of the Bouregreg River (Morocco) Using the Instrumental Neutron Activation Analysis (INAA)", *Journal of Applied Sciences and Environmental Management*, 2009, p. 11(1).
- [22] Table of Isotopes, Eight Edition, R.B. Firestone, V.S. Shirley, Eds., J. Wiley, New York, 1996.
- [23] International Vocabulary of Metrology, "Basic and General Concepts and Associated Terms (VIM) 3rd edition", 2007.
- [24] M. de Bruin, "P.J.M. Korthoven, The Influence of the Chemical Form of Radionuclides on the Shape of the Gamma-Ray Spectrum", *Radiochem. Radioanal. Lett.* 21, , 1975, 287–292.
- [25] H. Daniel, "Influence of Chemical Environment on Lifetimes in Nuclear Physics, in : The Use of selective Nuclear Techniques for the Elucidation of Chemical Bonding", *Topical Issue of Atomic Energy Review v. 17(2)*, 1979, 287–343".
- [26] R. Gehrke et al., "Precise relative γ -ray intensities for calibration of Ge-semiconductor detectors", *Nucl. Instr. Meth.*, 1977, p. 147 405–423.
- [27] F. Girardi et al., "Reactor Neutron Activation Analysis by the Single Comparator Method", *Anal. Chem.*, 1965, p. 37 1085–1092.
- [28] A. Simonits et al., "Single Comparator Methods in Reactor Neutron Activation Analysis", *J. Radioanal. Chem.*, 1975, p. 24 31–46.
- [29] F. de Corte et al., "Recommended nuclear data for use in the k_0 -standardization of neutron activation analysis", *Atomic Data Nuclear Data Tables*, 2003, p. 47–67.
- [30] P. Bode et al., "Variation of Neutron Flux and related Parameters in an Irradiation Container, in Use with k_0 -Based Neutron Activation Analysis", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 157 (1992), p. 301–312.
- [31] M.J.J. Koster-Ammerlaan et al., "A new monitor for routine thermal and epithermal neutron fluence rate monitoring in K_0 INAA", *Appl. Rad. Isotop.*, 2008, p. 1964–1969.
- [32] L. Currie, "Limits for qualitative detection and quantitative determination application to radiochemistry", *Anal. Chem.*, 40 (1968), p. 586–593.
- [33] P. Bode, "Instrumental and organizational aspects of a neutron activation analysis laboratory", University of Technology, Delft, 1996.
- [34] ASTM, "Standard Practice for Determining Neutron Fluence, Fluence Rate, and Spectra by Radioactivation Techniques (E261)", ASTM International, West Conshohocken, PA, 1998.
- [35] R.M. Lindstrom et al., "Neutron irradiation in activation analysis : a new rabbit for the NBSR", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 278 (2008), p. 665–669.
- [36] J.R. Moody et al., "Recommended inorganic chemicals for calibration", *Anal. Chem.*, 60 (1988), p. 1203A–1218A.
- [37] R.R. Greenberg et al., "Instrumental neutron activation analysis for certification of ion-implanted arsenic in silicon", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 245 (2000), p. 57–63.
- [38] C. Yonezawa et al., "Blank analysis of quartz container for instrumental neutron activation analysis", *Bunseki Kagaku*, 39 (1990), p. 25–31.
- [39] K. Heydorn et al., "Gains or losses of ultratrace elements in polyethylene containers", *Talanta*, 29 (1982), p. 1019–1024.
- [40] R.R. Greenberg et al., "High accuracy determination of ^{235}U in nondestructive assay standards by gamma-ray spectrometry", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 111 (1987), p. 177–197.

- [41] J. Copley, "Scattering effects within an absorbing sphere immersed in a field of neutrons", Nucl. Instrum. Methods A307, 1991, p. 389–397.
- [42] M. Blaauw, "The derivation and proper use of Stewart's formula for thermal neutron self-shielding in scattering media", Nucl. Sci. Eng., 124 (1996), p. 431–435.
- [43] R. Zeisler et al., "Instrumental neutron activation analysis : a valuable link in chemical metrology", J. Radioanal. Nucl. Chem., 263 (2005), p. 315–319.
- [44] R.M. Lindstrom et al., "J.R. Vogt (Ed.), Proc. 3rd Int. Conf. Nucl. Methods in Envir. and Energy", Res. (CONF-771072), U. S. Dept. of Energy, Washington, 1977, p. 90–98.
- [45] S. Landsberger, "Update of uranium fission interferences in neutron activation analysis", Chem. Geol., 77 (1989), p. 65–70.
- [46] J. St-Pierre et al., "Effects of reactor temperature and sample mass on the activation of biological and geological materials with a SLOWPOKE reactor", Biol. Trace Elem. Res. 71–72 (1999), p. 481–487.
- [47] I.F. Gonçalves et al., "Monte Carlo calculation of epithermal neutron resonance self-shielding factors in foils of different materials", 56 (2002), Appl. Radiat. Isotop., p. 945–951.
- [48] K. Debertin et al., "Gamma- and X-ray spectrometry with semiconductor detectors", Amsterdam : North-Holland, 1988.
- [49] R.M. Lindstrom et al., "The half-life of ^{76}As ", J. Radioanal. Nucl. Chem., 257 (2003), p. 489–491.
- [50] R.M. Lindstrom et al., "The half-lives of ^{24}Na , ^{43}K , and ^{198}Au ", J. Radioanal. Nucl. Chem., 263 (2005), p. 311–313.
- [51] R.M. Lindstrom et al., "Accuracy and uncertainty in radioactivity measurement for NAA", J. Radioanal. Nucl. Chem., 271 (2007), p. 311–315.
- [52] A. Wyttenbach, "Coincidence losses in activation analysis", J. Radioanal. Chem., 8 (1971), p. 335–343.
- [53] P. Bevington, "Data reduction and error analysis for the physical sciences", New York : McGraw-Hill, 1969.
- [54] R.M. Lindstrom, "SUM and MEAN standard programs for activation analysis", Biol. Trace Elem. Res., 43–45 (1994), p. 597–603.
- [55] R. Greenberg et al., "Evaluation of uncertainties for neutron activation analysis measurements using the comparator method of standardization", National Institute of Standards and Technology, Analytical Chemistry Division, Vols. MD 20899-8395, USA.
- [56] H. Hubbell et al., "Tables of X-ray mass attenuation coefficients and mass energy-absorption coefficients 1 keV to 20 MeV for elements Z=1 to 92 and 48 additional substances of dosimetric interest, NISTIR 5632", NIST Standard Reference Database, 2004, p. 126.
- [57] M.J. Berger et al., "XCOM : Photon cross section database.", 1998. [Online]. Available : <https://www.physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/html/xcom1.html>.
- [58] J. Kragten, "Calculating standard deviations and confidence intervals with a universally applicable spreadsheet technique", 119 (1994), Analyst, p. 2161–2166.
- [59] C. Rees, "Error propagation calculations", Geochim. Cosmochim. Acta, 48 (1984).
- [60] S.L.R. Ellison et al., "Guide EURACHEM / CITAC CG4", 2011.
- [61] P. Robouch et al., "Uncertainty budget for k 0 -NAA", J. Radioanal. Nucl. Chem., 245 (2000), p. 195–197.

- [62] Joint Committee for Guides in Metrology, Evaluation of measurement data – Supplement 1 to the “Guide to the expression of uncertainty in measurement”- Propagation of distributions using a Monte Carlo method JCGM101 :2008, (ISO/IEC Guide 98-3-1).
- [63] L. Hamidatou et al., ”External quality assessment of Algerian neutron activation analysis laboratory”, (IJERM)ISSN, July 2016, pp. 2349- 2058, Volume-03, Issue-07.
- [64] EURACHEM Guide /CITAC, Guide to Quality in Analytical Chemistry, Third edition, QAC2016, 2016.
- [65] TECDOC-PTNAAIAEA17, ”Determination of Major, Minor and Trace Elements in a Land-plant material and a Siliceous material”, Vienna, 2019.
- [66] TECDOC-PTNAAIAEA15, ”Determination of Major, Minor and Trace Elements in a Marine Sediment and in an Animal Tissue”, IAEA, Vienna, 2018.
- [67] Genie TM 2000, spectroscopy software, version 3.2.1, Canberra, 2009.
- [68] P. De Felice et al.,”Fast procedures for coincidence-summing correction in γ -ray spectrometry”, Appl. Radiat., March 2000, Volume 52, Issue 3, Pages 745-752.
- [69] M. Blaauw”,The use of sources emitting coincident γ -rays for determination of absolute efficiency curves of highly efficient Ge detectors”, Nucl Instrum Methods, 1993, p. 332 :493.
- [70] M. THOMPSON, ”Recent trends in inter-laboratory precision at ppb and sub-ppb concentrations in relation to fitness for purpose criteria in proficiency testing”, analyst, 125 (2000), pp. 385-386.
- [71] F. De Corte, ”The k0-standardization method : a move to the optimization of neutron activation analysis”, Ph.D. thesis, GENT University, 1987.
- [72] N. ISO13528, ”Statistical methods for use in proficiency testing by interlaboratory comparison, ISO 13528 :2015(E)”, 2015.
- [73] A. Ouardi et al., ”GEANT4 used for neutron beam design of a neutron imaging facility at TRIGA reactor in Morocco”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 651 (2011), p. 21–27.
- [74] T. Belgia et al., ”Principles of PGAA method, in : Handbook of Prompt Gamma Activation Analysis with Neutron Beams”.2004
- [75] S. Messoloras et al., ”Sapphire filter thickness optimization in neutron scattering instruments”, Review of Sciences Instrumens,71(1) (1999), p. 70.
- [76] A. Jalil, et al., ”Simulation of a collimator and sapphire filter for PGAA facility of the Moroccan TRIGA MARK II research reactor”, Applied Radiation and Isotopes, 150 (2019), p. 14–18.
- [77] J. Sodomka et al., ”The Shielding of the ATLAS Forward Region from the point of view of Materials Technology and some Construction Aspects”, ATLAS Internal Note TECH-NO-033, 12 October 1998.
- [78] B. Vishwanath et al., ”Gamma ray and neutron shielding properties of some alloy materials”, Annals of Nuclear Energy, February 2014, pp. Volume 64, 301-310.
- [79] M. Adib et al., ”On the use of bismuth as a neutron filter”, Radiation Physics and Chemistry, 66(2) (2003), p. 81–88.
- [80] Mirrotron Ltd, Neutron Shielding : Mirrobor™, [Online]. Available : <https://mirrotron.com/en/products/radiation-shielding>.
- [81] M. A. Lone et al., ”MeV neutron production from thermal neutron capture in Li and B compounds” Nucl. Instrum. Meth.,174 (1980). p. 521-529,

- [82] G. L. Molnar et al., "Construction and characterization of the redesigned PGAA facility at The University of Texas at Austin", Nuclear, London/Boston/Dordrecht : ed., Kluwer Academic Publishers, 2004.
- [83] Mirion Technology, "Lynx Digital Signal Analyzer Data Sheet", [Online]. Available : https://mirion.s3.amazonaws.com/cms4_mirion/files/pdf/spec-sheets/ops-509_lynx_dsa_spec_rebrand_5.pdf?1562601666.
- [84] M. H. Choopan Dastjerdi et al., "Design, construction and characterization of a new neutron beam for neutron radiography at the Tehran Research Reactor", NASA Astrophysics Data System (ADS), Volume 818, 11 May 2016, Pages 1-8.
- [85] J. V. Sandberg et al., "Determination of reactor neutron spectra with multicomponent activation detectors", Journal of Radioanalytical Chemistry, 1983, pp. 151-170.
- [86] D. Turkoglu et al., "Characterization of a new external neutron beam facility at the Ohio State University", Journal of Radioanalytical Chemistry, 01 Feb. 2012, Volume 291 : Issue 2, pp. 321-327.
- [87] V. Talanov et al., "Thermal neutron beam characterization at the HRPT instrument at the swiss spallation neutron source", WEPRO077 Proceedings of IPAC 2014, Dresden, Germany, 2014.
- [88] M. Albarqi et al., "Neutron flux characterization of the beam port of the Missouri University of Science and Technology Reactor", Journal of Radioanalytical Chemistry, 321(2019), pp. 109–116.
- [89] K. Tiyaoun et al., "Validation of the MCNP computational model for neutron flux distribution with the neutron activation analysis measurement", in J. Phys. : Conf. Ser. 611012007, 2015.
- [90] H. Bounouira et al., "Neutron flux characterization of the Moroccan Triga Mark II research reactor and validation of the K_0 standardization method of NAA using K_0 -IAEA program", Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2014, Vol. 300, Issue 2.
- [91] MCNP, "A General Monte Carlo N-Particle Transport Code", Version 5 April 24, , 2003 (Revised 10/3/05).
- [92] R. Greenberg et al., "Neutron activation analysis : A primary method of measurement", Spectrochimica Acta Part B : Atomic Spectroscopy, March–April 2011, vol. Volume 66, no. Issues 3–4, pp. 193-241.
- [93] Librairie de K_0 , <http://www.kayzero.com/>, 11, 2016

Résumé

Ce travail de thèse décrit les aspects fondamentaux de la technique d'analyse par Activation Neutronique (AAN) ainsi que les différentes méthodes utilisées. Il s'agit des aspects qui couvrent la théorie fondamentale derrière les techniques d'activation et ceux liés aux protocoles d'analyse depuis la préparation des échantillons jusqu'à la génération des résultats d'analyse. Comme première étape, une caractérisation intégrale des instruments a été effectuée pour le système de détection et pour les positions d'irradiations. Ensuite, en se basant sur le protocole d'analyse suivis par les analystes, toutes les sources d'incertitudes significatives, associées à chaque étape du processus ont été identifiées et étudiées avec une évaluation approfondie de leur impact sur les résultats finaux. Ces derniers ont été soumis à d'autres tests afin d'évaluer les performances du laboratoire. Cette évaluation a été effectuée au niveau interne par l'analyse d'un nombre de MSR de différentes matrices et au niveau externe par la participation aux tests d'inter-comparaisons avec des laboratoires internationaux. Cette participation a permis l'identification des sources d'erreurs liées aux protocoles d'analyse et de catégoriser la gamme analytique du laboratoire. D'autre part, et afin d'élargir la gamme analytique, en incluant les éléments légers tels H, B, C, N, Si, P, S et le Cl et d'éléments lourds tels que le Cd, Sm, Gd, et le Hg, du laboratoire d'AAN, le CNESTEN a décidé d'implémenter un nouvel instrument baptisé Analyse par Activation Neutronique par les Gammas Prompts (PGAA) qui a fait partie des vocations de ce travail de thèse. Un design conceptuel de tous les composants de cet instrument avec un planning des réalisations a été réalisé. L'installation est prévue dans un future proche en plusieurs phases.

Mots- clés : Activation neutronique, MCNP, Triga Mark II, PGAA, Neutron, spectrométrie Gamma

Abstract

This thesis describes the fundamental aspects of the Neutron Activation Analysis (NAA) technique as well as the different methods used. These aspects cover the fundamental theory behind activation techniques and those related to analysis protocols from sample preparation to generation of analysis results. As a first step, a full characterization of the instruments was carried out for detection systems and for the irradiation facilities. Then, based on the analysis protocol followed by analysts, all significant uncertainty sources associated with each step of the process have been identified and investigated with a thorough assessment of their impact on the results. These are subjected to further tests to assess the performance of the laboratory. This assessment was carried out internally by analyzing a number of SRMs of different matrices in different applications and externally by participating in inter-comparison tests with international laboratories. This participation made it possible to identify the sources of errors related to the analysis protocols and to categorize the analytical range of the laboratory. On the other hand, and in order to broaden the analytical range, by including light elements such as H, B, C, N, Si, P, S and Cl and heavy elements such as Cd, Sm, Gd, and the Hg, within the NAA laboratory, CNESTEN decided to implement a new instrument called Prompt Gamma Neutron Activation Analysis (PGAA) which is part of the vocations of this thesis work. A conceptual design of all the components of this instrument with a schedule of acquisitions and achievements has been made. Installation is planned for the near future under several stages.

Key Words: Neutron Activation, MCNP, Triga Mark II, PGAA, Neutron, Gamma Spectrometry