

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ANALYSE PAR ACTIVATION NEUTRONIQUE DE SUBSTANCES AYANT DES
SECTIONS EFFICACES MACROSCOPIQUES ÉLEVÉES POUR L'ABSORPTION
DE NEUTRONS THERMIQUES

MARIN KASSAKOV

DÉPARTAMENT DE GÉNIE PHYSIQUE
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION
DU DIPLÔME DE MAÎTRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES
(GÉNIE ÉNERGÉTIQUE)

OCTOBRE 2006



Library and
Archives Canada

Bibliothèque et
Archives Canada

Published Heritage
Branch

Direction du
Patrimoine de l'édition

395 Wellington Street
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

395, rue Wellington
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Your file Votre référence

ISBN: 978-0-494-25552-0

Our file Notre référence

ISBN: 978-0-494-25552-0

NOTICE:

The author has granted a non-exclusive license allowing Library and Archives Canada to reproduce, publish, archive, preserve, conserve, communicate to the public by telecommunication or on the Internet, loan, distribute and sell theses worldwide, for commercial or non-commercial purposes, in microform, paper, electronic and/or any other formats.

The author retains copyright ownership and moral rights in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

AVIS:

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque et Archives Canada de reproduire, publier, archiver, sauvegarder, conserver, transmettre au public par télécommunication ou par l'Internet, prêter, distribuer et vendre des thèses partout dans le monde, à des fins commerciales ou autres, sur support microforme, papier, électronique et/ou autres formats.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur et des droits moraux qui protègent cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

In compliance with the Canadian Privacy Act some supporting forms may have been removed from this thesis.

Conformément à la loi canadienne sur la protection de la vie privée, quelques formulaires secondaires ont été enlevés de cette thèse.

While these forms may be included in the document page count, their removal does not represent any loss of content from the thesis.

Bien que ces formulaires aient inclus dans la pagination, il n'y aura aucun contenu manquant.


Canada

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Ce mémoire intitulé :

ANALYSE PAR ACTIVATION NEUTRONIQUE DE SUBSTANCES AYANT DES
SECTIONS EFFICACES MACROSCOPIQUES ÉLEVÉES POUR L'ABSORPTION
DE NEUTRONS THERMIQUES

présenté par : KASSAKOV Marin

en vue de l'obtention du diplôme de : Maîtrise és sciences appliquées

a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de :

M. MARLEAU Guy, Ph.D., président

M. KENNEDY Gregory, Ph.D., membre et directeur de recherche

M. ZIKOVSKY Lubomir, Ph.D., membre et codirecteur de recherche

M. JONKMANS Guy, Ph.D., membre

À ma femme Marina.

REMERCIEMENTS

Je remercie tous ceux et celles qui m'ont assisté ou aidé de près ou de loin lors de la réalisation de ma recherche.

Je remercie grandement à mon directeur de recherche Dr Greg Kennedy pour ses conseils judicieux, pour son intérêt dans la réussite du projet et son support compétent pour la résolution des problèmes.

Je tiens aussi à remercier à Dr Lubomir Zikovsky pour son aide et ses conseils.

Je remercie particulièrement à Monsieur Jean Saint-Pierre et Madame Rahma Kada pour leurs conseils et leur assistance lors de mes expériences d'irradiation avec le SLOWPOPKE.

Je remercie particulièrement à mes collègues et amis Monsieur Jacques Raza et Monsieur Thomas Desseaux pour tous leurs conseils et support.

J'aimerais remercier tous mes professeurs de l'Institut de génie nucléaire pour la formation solide qu'ils m'ont donnée.

RÉSUMÉ

L'analyse par activation neutronique (AAN) est une méthode avec laquelle on peut faire une analyse quantitative des éléments chimiques. Selon la pratique existante, dans la plupart des cas, on utilise l'AAN pour découvrir des éléments traces ayant de grande section efficaces d'activation. La présence de ces éléments à des concentrations élevées peut compliquer l'analyse. Cette complication vient du fait que ces éléments changent le flux neutronique et rendent l'analyse moins exacte. À cause de l'absorption d'une fraction substantielle des neutrons thermiques dans le site d'irradiation, la relation entre la masse d'un élément et l'activité produite est souvent non - linéaire.

Le but général de cette étude était, d'une façon expérimentale, de vérifier la validité d'une théorie d'auto absorption et de développer un modèle permettant de l'utiliser dans l'AAN. Notre recherche était limitée dans la région des neutrons thermiques.

Le facteur d'auto absorption est défini comme le rapport de l'activité mesurée sur l'activité d'un échantillon similaire mais n'ayant pas d'absorption de neutrons et ce facteur est identique au rapport du flux moyen dans l'échantillon sur le flux moyen dans un échantillon qui n'absorbe pas de neutrons.

L'objectif principal de trouver la relation entre la quantité d'un élément absorbeur de neutrons et le flux thermique moyen dans un échantillon a été atteint. L'applicabilité et la

validité de cette relation pour tous les sites d'irradiation et toutes les géométries d'échantillons ont été étudiées. Les résultats obtenus de ces études nous ont permis de raffiner la formule décrivant le phénomène d'auto absorption pour des échantillons cylindriques d'éléments ayant une grande section efficace d'absorption de neutrons thermiques. La nouvelle formule tient compte de la réflexion des neutrons par l'eau ou le béryllium entourant le site d'irradiation, ainsi que de toutes les géométries d'échantillons et de sites d'irradiation.

ABSTRACT

Neutron activation analysis (NAA) is a method for the quantitative determination of the chemical elements in various materials. Traditionally NAA has been used to detect trace elements with large activation cross-sections. The presence of these elements at high concentrations may complicate the analysis. The complication arises because these elements may change the neutron flux and thus affect the accuracy of the analysis. With the absorption of a significant fraction of the thermal neutrons in the irradiation site, the relation between the mass of an element and induced activity is often non-linear.

The principal aim of this study was to verify, experimentally, the validity of a neutron self-shielding theory and to develop a model for the use of this theory in NAA. Our research is limited to thermal neutrons.

The self-shielding factor is defined as the ratio of the measured activity to the activity of a similar sample with no neutron absorption. This factor is identical to the ratio of the neutron flux in the sample to the average flux in a sample without neutron absorption.

The main objective, to find the relation between the quantity of a neutron absorbing element and the average neutron flux in a sample, was achieved. The applicability and the validity of this relation for all the irradiation sites and all sample geometries were studied. The results of these studies allowed us to refine the formula describing the phenomenon

of neutron self-shielding for cylindrical samples with a large cross-section for thermal neutron absorption. The new formula takes into account the reflection of neutrons in the water or the beryllium surrounding the irradiation site, for all sample geometries and all the irradiation sites.

TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE	iv
REMERCIEMENTS.....	v
RÉSUMÉ	vi
ABSTRACT.....	viii
TABLE DES MATIÈRES	x
LISTE DES TABLEAUX	xiv
LISTE DES FIGURES	xv
LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS	xvii
 INTRODUCTION	 1
Définition du problème et des objectifs de l'étude	2
Approche adoptée	2
 CHAPITRE I - GÉNÉRALITÉS	 4
1.1 Radioactivité	4
1.1.1 Types de rayonnements.....	5
1.1.1.1 Le rayonnement alpha (α)	5
1.1.1.2 Le rayonnement bêta (β)	6
1.1.1.3 Le rayonnement gamma (γ)	8
1.1.1.4 Le rayonnement neutronique (n).....	8

1.1.2	Réactions nucléaires.....	10
1.1.2.1	Types de réaction nucléaires	10
1.1.2.2	Interactions neutrons – noyaux	11
1.1.2.3	Sections efficaces.....	12
1.1.2.4	Mécanismes d'interaction	13
1.2	Description et application de l'analyse par activation neutronique (AAN).....	16
1.2.1	Principes de base.....	16
1.2.2	Activité gamma.....	17
1.2.3	Interactions des rayons gamma avec la matière.....	18
1.2.3.1	L'absorption photoélectrique.....	19
1.2.3.2	La diffusion Compton.....	19
1.2.3.3	La production de paires.....	20
1.2.4	Activité induite dans l'échantillon	21
1.2.5	Méthodes d'AAN basés sur l'activité induite.....	25
1.2.5.1	Méthode absolue	26
1.2.5.2	Méthode relative	26
1.2.5.3	Méthode semi – absolue.....	27
1.2.6	Effet d'ombre (la théorie d'auto protection)	29
1.2.7	Le temps mort	32
1.2.8	Erreurs statistiques	33
1.2.9	Études récentes en auto absorption.....	34

CHAPITRE II – APPAREILS, MATÉRIELS ET MÉTHODOLOGIE.....	40
2.1 Appareils	40
2.1.1 Le réacteur SLOWPOKE-2	41
2.1.2 Le système de comptage des rayons gamma	47
2.1.3 Balance PG203-S	51
2.2 Matériels	52
2.2.1 Logiciel EPAA «Version 2.20»	52
2.2.2 Choix de substance	58
2.2.3 Capsules utilisées	61
2.2.4 Bouchons de bois	64
2.3 Méthodologie	68
2.3.1 Temps de l'irradiation, de décroissance et de comptage : t_i , t_d , t_c	68
2.3.1.1 Le temps t_c	68
2.3.1.2 Le temps t_d	68
2.3.1.3 Le temps t_i	69
2.3.2 Détermination de temps réel d'irradiation t_i par une série d'expériences avec les échantillons d'aluminium (Al)	71
2.3.3 Détermination de flux relatif dans les sites 6 et 8 par rapport au site 1	83
2.3.4 Auto protection de neutrons thermiques : méthodologie expérimentale	93
2.3.4.1 Préparation des échantillons	93
2.3.4.2 Comptage	96

2.3.4.3 Traitement électronique des échantillons avec EPAA.....	97
2.3.4.4 Équations décrivant la courbe théorique.....	97
2.3.4.5 Traitement des données avec les tableaux électroniques en Excel.....	101
 CHAPITRE III – RÉSULTATS ET DISCUSSION.....	108
3.1 Résultats.....	108
3.1.1 Détermination de la relation entre le facteur d’auto protection et la masse de l’élément absorbeur.....	108
3.1.2 L’influence de la géométrie du site d’irradiation et de la géométrie des échantillons sur les résultats expérimentaux.....	116
3.1.3 Définition de la constante de géométrie.....	131
3.1.4 Vérification de la théorie d’influence de la géométrie.....	133
 CONCLUSION.....	147
RÉFÉRENCES	149

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 2.1	Résultats pour le t_i dans le site 1	75
Tableau 2.2	Résultats pour le t_i dans le site 2	76
Tableau 2.3	Résultats pour le t_i dans le site 8	77
Tableau 2.4	Résultats pour le t_i dans le site 1 avec changement de la masse	79
Tableau 2.5	Résultats pour le t_i dans le site 2 avec changement de la masse	80
Tableau 2.6	Résultats compilés pour le t_i	81
Tableau 2.7	Les résultats pour les flux thermiques dans le site 1, 6, 8.....	92
Tableau 2.8	Tableau – protocole.....	102
Tableau 2.9	Tableau général.....	104
Tableau 2.10	Tableau - plot	106

LISTE DES FIGURES

Figure 1.1	Le spectre d'énergie continu des particules β	7
Figure 1.2	La courbe universelle pour des différents éléments irradiés dans un flux thermique. (Goçkalves 2002)	39
Figure 2.1	Laboratoire SLOWPOKE, École Polytechnique de Montréal	43
Figure 2.2	Assemblage du réacteur SLOWPOKE-2 avec cœur, réflecteur et tubes d'irradiation (EACL, 1975, n° 69)	44
Figure 2.3	Système de comptage des rayons gamma du laboratoire SLOWPOKE, le détecteur C	48
Figure 2.4	Le détecteur C refroidi de l'azote liquide	49
Figure 2.5	Le détecteur au Germanium ultra pur (HPGe) à haute efficacité.....	50
Figure.2.6	Balance PG203-S	52
Figure 2.7	Les capsules de différentes grandeurs utilisées	62
Figure 2.8	Capsule moyenne à l'intérieur d'une capsule grande.....	63
Figure 2.9	Capsule petite à l'intérieur d'une capsule grande	64
Figure 2.10	Forme cylindrique d'échantillon assurée par un bouchon.....	65
Figure 2.11	Trois types de bouchons utilisés	66
Figure 3.1	La courbe théorique et les résultats expérimentaux dans le site 8 de mars 2004.....	112
Figure 3.2	La courbe théorique et les résultats expérimentaux dans les sites 6 et 8 d'avril 2004.....	114

Figure 3.3	La différence entre deux sites d'irradiation 6 et 8	117
Figure 3.4	Les courbes des sites 8, 6, 1 avec les mêmes échantillons de NaCl	119
Figure 3.5	Les courbes des sites 8, 6 et 1, séries N et M avec NaCl.....	121
Figure 3.6	Les courbes des sites 8, 6 et 1, séries N et M avec NaCl. Echelle logarithmique	122
Figure 3.7	Les différences géométriques entre les deux sites d'irradiation	124
Figure 3.8	Les plaques - indicateurs en cuivre.....	128
Figure 3.9	Les résultats des mesures des plaques en cuivre.....	129
Figure 3.10	Visualisation des cylindres en cuivre.....	130
Figure 3.11	La courbe théorique et les résultats expérimentaux dans le site 6 avec $K_g = 0$	134
Figure 3.12	La courbe théorique et les résultats expérimentaux dans le site 6 avec $K_g = 0,42$	136
Figure 3.13	La courbe théorique et les résultats expérimentaux dans le site 8 avec $K_g = 0.42$	138
Figure 3.14	La courbe théorique et les résultats expérimentaux dans le site 1 avec $K_g = 0,42$	141
Figure 3.15	La courbe théorique et les résultats expérimentaux dans les sites 6 et 8 avec $K = 0.36$ et $K_g = 0.5$	145
Figure 3.16	La courbe théorique et les résultats expérimentaux dans le site 1 avec $K = 0.29$ et $K_g = 0,5$	146

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

A	l'aire du pic
A_1	paramètre de $G_{th}(Z)$
A_2	paramètre de $G_{th}(Z)$
A_S	l'activité de saturation
A_{std}	surface du pic du standard
A_γ^{td}	l'activité des γ d'énergie ω_γ (en quanta par seconde)
AAN	analyse par activation neutronique
B	bruit de fond au pic de l'élément mesuré, constante de sensibilité
B_I	constante d'activation de l'élément du standard
Bq	Becquerel (désintégration par seconde)
C	concentration de l'élément
C_{EPAA}	concentration calculée par EPAA
D	nombre de désintégrations
EPAA	École Polytechnique Analyse par Activation
f	rapport entre les flux thermiques et épithermiques du réacteur de recherche
G	facteur d'auto absorption
G_{eff}	coefficient d'absorption

G_{res}	facteur d'auto absorption des neutrons épithermiques
G_{th}	facteur d'auto absorption des neutrons thermiques
H	hauteur de l'échantillon cylindrique
I	intensité du rayon γ
K	constante d'activation expérimentale
K_g	constante géométrique
k	constante du réflecteur autour du site d'irradiation
M	nombre moyen de désintégrations
M_a	masse atomique de l'isotope irradié
$M_{a(Cl)}$	masse atomique du Cl
$M_{a(x)}$	masse atomique d'élément X
M_j	masse atomique d'élément j
m	masse de l'élément recherché dans l'échantillon
m_E	masse d'un élément
m_i	masse de l'élément i pour l'énergie des neutrons utilisés (en grammes)
m_j	masse de l'élément j pour l'énergie des neutrons utilisés (en grammes)
m_S	masse du standard
N^*	nombre d'atomes radioactifs formés à la fin de l'irradiation

N_0	nombre de noyaux avant l'irradiation
N_A	nombre d'Avogadro
n	neutron
P	probabilité
p	paramètre de $G_{th}(Z)$
p	proton
Q_0	rapport entre l'intégral de résonance et la section efficace pour les neutrons thermiques
θ	abondance de l'isotope cible dans l'élément considéré (%)
R	rayon de l'échantillon cylindrique en cm
R_s	rayon du site d'irradiation en cm
R.I.	radio-isotope
S	aire du pic
S_{tot}	section efficace totale macroscopique de l'échantillon pour l'énergie des neutrons utilisés (en cm^{-1})
S_{diff}	section efficace de diffusion macroscopique de l'échantillon pour l'énergie des neutrons utilisés (en cm)
SLOWPOKE	Safe Low Power Critical Experiment
$T_{1/2}$	demi-vie
T	surface totale du pic de l'élément mesuré
t_i	temps de l'irradiation
t_d	temps de décroissance

t_c	temps de comptage
t_h	temps du chronomètre
t_l	temps entre le moment où la capsule passe devant la photocellule et le moment où elle arrive dans le site d'irradiation
v	volume de l'échantillon (en cm^3)
W	poids de l'échantillon
Y	facteur géométrique de Z
y_l	facteur de géométrie de l'échantillon
y_2	facteur de la géométrie du site d'irradiation et la capsule
Z	paramètre de G
z	variable de $G_{th}(Z)$
z_0	paramètre de $G_{th}(Z)$
α	rayonnement alpha
β	rayonnement bêta
$\sqrt{\frac{F_y}{F}}$	facteur associé à une résonance isolée pour le nucléide correspondant
γ	rayonnement <i>gamma</i>
ε	efficacité du détecteur
κ	nouvelle constante de k , π et N_A

λ	constante de désintégration du radio-isotope
μ_γ	coefficient d'absorption des γ
σ	section efficace d'élément activé
σ_t	section efficace totale
σ_a	section efficace d'absorption
σ_s	section efficace de diffusion
σ_e	section efficace de diffusion élastique
σ_i	section efficace de diffusion inélastique
σ_j	section efficace de diffusion d'élément j
$\sigma_{th(Cl)}$	section efficace d'absorption des neutrons thermiques pour le Cl
$\sigma_{th(x)}$	section efficace d'absorption des neutrons thermiques pour le élément X
Σ_A	section efficace macroscopique d'absorption de l'échantillon pour l'énergie des neutrons utilisés (en cm^{-1})
Σ_{diff}	section efficace de diffusion macroscopique de l'échantillon pour l'énergie des neutrons utilisés (en cm)
Σ_r	incertitude statistique relative au photopic de l'élément dosé
$\left[\Sigma_{tot}(E_{res}) \right]$	section efficace macroscopique de résonance

$\left[\Sigma_{th} (E_{th}) \right]$	section efficace d'élément correspondant à des neutrons thermiques
ϕ	flux neutronique
ϕ_R	flux neutronique résultant
ϕ_{th}	flux thermique
ϕ_0	flux neutronique initial
ω_γ	énergie caractéristique des rayons γ

Introduction

L'analyse par activation neutronique (AAN) est une méthode avec laquelle on peut faire une analyse quantitative des éléments chimiques. Elle est basée sur l'effet d'activation des éléments chimiques par des neutrons. Après l'irradiation, chaque élément émet ses propres rayons gamma. Ils peuvent être enregistrés par un détecteur convenable. En se basant sur cette mesure, nous pouvons déterminer effectivement les éléments présents dans notre échantillon. L'utilisation du détecteur semi-conducteur augmente considérablement la précision de l'analyse. Selon la pratique existante, dans la plupart des cas, on utilise l'AAN pour découvrir des éléments traces ayant une grande section efficace d'activation. La présence de ces éléments à des concentrations élevées peut compliquer l'analyse.

Cette complication vient du fait que ces éléments changent le flux neutronique et rendent l'analyse moins exacte. À cause de l'absorption d'une fraction substantielle des neutrons thermiques dans le site d'irradiation, la relation entre la masse d'un élément et l'activité produite est souvent non linéaire. En se basant sur une théorie d'auto protection, nous allons essayer de résoudre ce problème et d'augmenter le champ d'utilisation de l'AAN. Le but général de cette étude est, d'une façon expérimentale, de vérifier la validité de cette théorie d'auto protection et de développer un modèle permettant de l'utiliser dans l'AAN. Nous allons nous limiter par la recherche aux neutrons thermiques parce que ces neutrons thermiques constituent plus de 95% du flux neutronique dans les sites

d'irradiations de la plupart de réacteurs de recherche et ils provoquent plus de 95% des réactions de capture neutronique.

Définition du problème et des objectifs de l'étude

Le but principal de notre recherche est de trouver la relation entre la quantité d'un élément absorbeur de neutrons et le flux thermique moyen dans l'échantillon irradié. Bien sûr, pour tout élément, la relation entre le nombre d'atomes de l'élément et le nombre de neutrons absorbés dépendra de la section efficace d'absorption de neutrons thermiques, qui est bien connue pour chaque élément. Mais, est-ce que la relation sera la même pour tous les sites d'irradiation ? Dans plusieurs sites, le flux thermique est loin d'être isotrope, et dans d'autres, les neutrons peuvent être réfléchis sur les matériaux entourant le site et traverser l'échantillon plusieurs fois. Nous voulons que la relation s'applique à tous les échantillons, normalement cylindriques mais de grandeur et d'aspect variables.

Approche adoptée

Le flux neutronique moyen dans un échantillon sera déterminé expérimentalement en mesurant l'activité produite dans l'échantillon et en la comparant à l'activité produite par

un flux neutronique de référence dans un échantillon ou l'absorption de neutrons est négligeable.

Le facteur d'auto protection d'un échantillon est défini comme le rapport de l'activité mesurée sur l'activité d'un échantillon similaire mais n'ayant pas d'absorption de neutrons et ce facteur est identique au rapport du flux moyen dans l'échantillon sur le flux moyen dans un échantillon qui n'absorbe pas de neutrons.

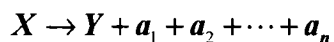
Nous avons à l'École Polytechnique un réacteur nucléaire SLOWPOKE avec 10 sites d'irradiation de dimensions différentes et situés dans de réflecteur en eau ou en béryllium. L'accès aux sites se fait par des systèmes pneumatiques. Nous aurons donc la possibilité d'étudier l'auto absorption dans des conditions variables.

Chapitre I

Généralités

1.1 Radioactivité

Radioactivité : Propriété que possèdent certains éléments chimiques de se transformer spontanément par désintégration en un autre élément par suite d'une modification du noyau de l'atome qui se manifeste par l'émission de radiations :

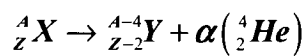


La plupart des éléments dans leur état naturel sont composés d'atomes stables. Cependant, chez un certain nombre d'éléments, le noyau des atomes subit spontanément des modifications appelées désintégrations. On les nomme radioéléments et l'on dit qu'ils sont radioactifs (Loiseaux, 2003). La désintégration radioactive est un phénomène aléatoire, chaque désintégration est un événement indépendant et l'on ne peut pas prévoir quand une désintégration aura lieu.

Cette désintégration se caractérise par des émissions de particules α (*alpha*) et β (*bêta*), et d'un rayonnement γ (*gamma*). Le rayonnement neutronique (*n*) est un type de rayonnement qui peut produire des radioéléments après absorption par des atomes stables.

1.1.1 Types de rayonnements

1.1.1.1 Le rayonnement alpha (α)



Les particules α sont des noyaux de l'atome d'hélium (${}_2^4He$); ce sont des particules lourdes, avec une masse environ 7000 fois plus grande que celle de l'électron, qu'on peut arrêter avec une simple feuille de papier. Dans l'air, leur parcours dépend de l'énergie cinétique avec laquelle les particules sont parties du noyau qui leur donne naissance (quelques cm). La particule α est une particule chargée, composée de deux protons et de deux neutrons extrêmement liés entre eux et animée d'une grande vitesse. L'émission alpha ne concerne que les noyaux lourds présentant un excès de protons (en général $Z > 82$, $A > 200$). Le noyau fils possède donc deux protons et deux neutrons en moins. Toutes les particules α émises par le même type de noyaux ont la même énergie (entre 4 et 9 MeV).

1.1.1.2 Le rayonnement bêta (β)

La particule β correspond à un électron (β^-) chargé négativement ou à un positron (β^+) chargé positivement, animée d'une grande vitesse. Ils accompagnent la transformation d'un neutron en proton (β^-), ou d'un proton en neutron (β^+).

Les radioéléments créés par la capture de neutrons peuvent décroître selon la radioactivité β :

La radioactivité β^-
$${}^A_Z X \xrightarrow{\beta^-} {}^A_{Z+1} Y + e^- + \bar{\nu}_e$$

où un neutron devient proton en émettant un électron et un antineutrino :

$$n \rightarrow p + \beta^- + \bar{\nu}_e$$

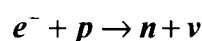
La radioactivité β^+
$${}^A_Z X \xrightarrow{\beta^+} {}^A_{Z-1} Y + e^+ + \nu$$

où un proton devient neutron en émettant un positron et un neutrino :

$$p \rightarrow n + e^+ + \nu$$

La capture électronique
$$e^- + {}^A_Z X \rightarrow {}^A_{Z-1} Y + \nu$$

Un électron du cortège électronique de l'atome, appartenant généralement à la couche K, interagit avec un proton du noyau :



L'électron ou le positron étant des particules légères, les particules β sont beaucoup plus pénétrantes que les particules α . Comme les particules sont chargées, elles interagissent facilement avec la matière. Il faut une feuille métallique de quelques cm d'épaisseur pour arrêter ce rayonnement. Les particules β les plus énergétiques ont un parcours de l'ordre du mètre dans l'air et de quelques millimètres dans les tissus biologiques. Toutes les particules β n'ont pas la même vitesse et leurs spectres sont continus. (Voir Figure 1.1)

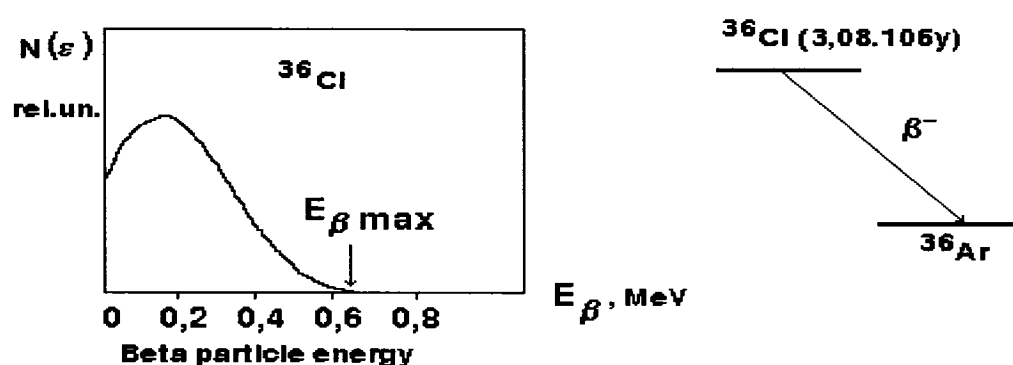


Figure 1.1 : Le spectre d'énergie continu des particules β

1.1.1.3 Le rayonnement gamma (γ)

Le rayonnement gamma (γ) est un rayonnement électromagnétique analogue à celui de la lumière, mais beaucoup plus énergétique. On parle de photons gamma. Leur émission suit généralement une désintégration alpha ou bêta et correspond à un réarrangement des nucléons à l'intérieur du noyau fraîchement transformé. Le photon étant une particule sans masse, elle est très pénétrante et n'étant pas chargée, elle interagit peu avec la matière. Il faut une épaisseur de béton de quelques centimètres pour l'atténuer. Dans l'air, les photons sont détectables à plusieurs centaines de mètres. La différence d'énergie entre les deux niveaux de transition correspond à l'énergie des rayons gamma émis. Le spectre obtenu est un spectre de raies.

1.1.1.4 Le rayonnement neutronique (n)

Au cours de certaines transformations nucléaires, le noyau atomique émet des neutrons (le rayonnement neutronique). Le neutron est une particule élémentaire électriquement neutre dont la masse est relativement semblable à celle du proton ($1,6748 \cdot 10^{-27}$ kg.), spin $\frac{1}{2}$. Il est une particule instable, avec un temps de demi-vie $T_{1/2} = (10,20 \pm 0,3)$ min.

À cause de ses caractéristiques spécifiques le rayonnement neutronique est très pénétrant et très ionisant. Il est très dommageable pour les tissus biologiques. De plus, il induit la

radioactivité dans les matériaux irradiés. En général, l'absorption des neutrons par les matériaux irradiés conduit à l'émission des radiations γ . Les sources de rayonnement neutronique sont :

- les réacteurs nucléaires (fission nucléaire de l' U^{235}),
- les générateurs de neutrons (accélérateurs),
- les sources isotopiques :

Par exemple:

$Be_4^9 (\gamma, n) Be_4^8$: spectre de 0 à 1 MeV.

$Be_4^9 (\alpha, n) C_6^{12}$: spectre de 0 à 6 MeV.

Les neutrons peuvent provoquer avec les noyaux l'une ou plusieurs des réactions suivantes : (n, γ) , (n, p) , (n, α) , $(n, 2n)$, $(n, 3n)$, (n, n') . Cette notation représente la particule qui entre en réaction avec le noyau et la particule ou les particules qui sont émises par le noyau après la réaction.

Pour l'irradiation en neutrons thermiques, il est nécessaire de ralentir les neutrons émis en utilisant un modérateur comme l'eau lourde ou un matériau hydrogéné (eau, paraffine) autour de la source.

1.1.2 Réactions nucléaires

1.1.2.1 Types de réaction nucléaires

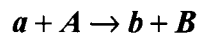
Une réaction nucléaire prend place lorsqu'un noyau réagit avec une particule élémentaire (un neutron ou un proton) ou bien avec un photon ou bien avec un noyau d'autre type (tel qu'un noyau d'hélium ou un noyau de deutérium), en produisant un ou plusieurs autres noyaux différents du premier.

Une réaction nucléaire est aussi accompagnée d'émissions de particules élémentaires (telles que des électrons, des protons ou des neutrons) et des rayons γ .

De façon générale, une réaction nucléaire peut être représentée comme suit :

$$a_1 + a_2 \rightarrow b_1 + b_2 + b_3 + \dots,$$

Ou a_1 et a_2 sont les particules ou noyaux qui réagissent, et $b_1, b_2, b_3...$ sont les particules qui se produisent après la réaction. Principalement, dans des laboratoires, la réaction nucléaire se réalise entre une particule légère a et un noyau cible A . On obtient comme résultat une autre particule b et un nouveau noyau B .



Dans notre cas, seules les réactions nucléaires produites par des neutrons nous intéressent.

1.1.2.2 Interactions neutrons – noyaux

Le neutron est une particule élémentaire stable lorsqu'il est lié à un noyau par les forces nucléaires. Comme il était déjà mentionné dans la section 1.1.1, à l'état libre, il se désintègre en proton avec l'émission d'une particule β^- - et d'un antineutrino. Grâce à leur masse et à leur absence de charge, les neutrons sont les projectiles les plus utilisés pour rendre radioactifs les noyaux de la plupart des éléments.

1.1.2.3 Sections efficaces

Pour décrire les interactions des neutrons avec la matière, il est commode d'utiliser le terme section efficace. Elle mesure la probabilité d'interaction d'un neutron avec un noyau cible, et s'exprime en barns ($1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{cm}^2$). En d'autres termes, la section efficace est la surface fictive que devrait avoir une particule cible pour reproduire la probabilité observée de collision ou de réaction avec une autre particule. Chaque type de réaction (interaction) possède sa propre section efficace. La section efficace totale est la somme des sections efficaces de diffusion et d'absorption :

$$\sigma_t = \sigma_a + \sigma_s,$$

où σ_t est la section efficace totale, σ_s est la section efficace de diffusion et σ_a la section efficace d'absorption. La section efficace de diffusion σ_s comprend la diffusion élastique σ_e et la diffusion inélastique σ_i :

$$\sigma_s = \sigma_e + \sigma_i$$

Quant à la section efficace d'absorption, elle comprend la fission σ_f , la capture radiative, σ_γ , et les réactions de type $(n, 2n)$, $(n, 3n)$, etc. :

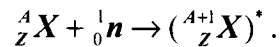
$$\sigma_a = \sigma_f + \sigma_\gamma + \sigma_{n,2n} + \sigma_{n,3n} + \dots$$

Les sections efficaces dépendent de l'énergie du neutron incident et cette dépendance est très complexe. Cependant, on peut favoriser la formation de tel ou tel radio-isotope par le choix de l'énergie des neutrons. Rappelons que les sections pour les réactions (n, γ) ne sont appréciables qu'avec les neutrons thermiques (d'énergie $< 0,5$ eV). Pour certains autres types, comme (n, p) , (n, α) , $(n, 2n)$, $(n, 3n)$ de réactions, elles ne se produisent qu'avec les neutrons rapides (d'énergie $> 0,5$ MeV) (Perdijon, 1967, Rozon, 1992).

1.1.2.4 Mécanismes d'interaction

Lorsqu'un neutron entre en collision avec un noyau, trois types de réactions nucléaires peuvent se produire : la formation d'un noyau composé, la diffusion potentielle ou l'interaction directe.

- **Formation d'un noyau composé** : lors de la formation d'un noyau composé, le neutron incident est absorbé par le noyau cible et un système appelé noyau composé est formé. Si le noyau cible est ${}_Z^AX$ où Z est le nombre de protons du noyau, A est le nombre de nucléons (nombre de masse) et X est le symbole chimique de l'élément, on aura :



Le noyau composé est fortement instable. Il est dans un état d'excitation et ne vit qu'environ 10^{-14} s. avant de se désexciter. La désexcitation du noyau composé s'effectue en émettant des particules α et β ou des rayons γ . On appelle voie de désexcitation le type de réaction nucléaire permettant au noyau composé d'atteindre la stabilité. La diffusion résonnante élastique (n, n) , la diffusion résonnante inélastique (n, n') , capture radiative (n, γ) , fission (n, f) , transmutation (n, p) , réaction (n, α) , $(n, 2n)$, $(n, 3n)$... sont les exemples des différentes voies de désexcitation du noyau composé. De façon générale, les sections efficaces impliquent la capture ou l'absorption du neutron variant inversement avec la vitesse des neutrons. Par ailleurs, la mécanique quantique nous indique qu'un noyau ne peut exister que dans certains états appelés états quantiques. Pour qu'un noyau composé soit formé, il faut donc qu'il se trouve dans un état intermédiaire admissible. S'il existe un état d'excitation du noyau ${}_Z^{A+1}X$ dans le voisinage de $E^* = E + E_b$, (où E^* est l'énergie d'excitation, E – l'énergie cinétique du neutron incident, E_b – l'énergie de liaison) la probabilité de formation d'un noyau composé sera grande, et la section efficace d'interaction sera aussi grande. Au contraire, s'il n'y a pas de niveau permis dans le voisinage de E^* , la section efficace sera beaucoup plus faible. La dépendance des sections efficaces par rapport à l'énergie du neutron incident présentera donc des résonances, qui se traduiront

par des variations très brusques des sections efficaces en fonction de l'énergie des neutrons (Rozon, 1992).

Diffusion potentielle : un type de diffusion élastique pouvant intervenir pour toute énergie du neutron incident. Il n'implique pas la formation d'un noyau composé et représente une collision où l'énergie cinétique totale est conservée. La diffusion potentielle est fonction des forces qui agissent sur le neutron lorsqu'il se déplace dans le voisinage du noyau cible, et ces forces dépendent des dimensions et de la forme du noyau. Le neutron perd une portion de son énergie à chaque collision. C'est le mécanisme de ralentissement des neutrons.

Interaction directe : un mode d'interaction où le neutron de haute énergie entre en collision directe avec un nucléon du noyau. Ce type d'interaction cause l'éjection d'un ou de plusieurs nucléons (proton ou neutron) et l'absorption du neutron incident (Rozon, 1992).

1.2 Description et application de l'analyse par activation neutronique (AAN)

1.2.1 Principes de base

L'analyse par activation neutronique (AAN) est une méthode avec laquelle on peut effectuer une analyse quantitative et qualitative des éléments chimiques. Elle est basée sur l'effet d'activation des éléments chimiques par des neutrons. C'est la méthode la plus importante parmi les autres méthodes d'analyse par activation à cause de sa sensibilité élevée et de la pénétration facile de neutrons dans la matière.

Pour ce qui est de la source des neutrons, le réacteur nucléaire est actuellement la plus intense source et par conséquent la plus utilisée. Les conditions dans un réacteur de recherche sont caractérisées par une température faible (30-50 °C), une pression faible (atmosphérique) et une radioactivité intense (Zikovsky, 1999).

Les noyaux atomiques des substances sont activés par des neutrons, ce qui produit des radio-isotopes qui émettent ses propres radiations (généralement des rayons bêta et gamma- γ).

Les γ peuvent être enregistrés par un détecteur convenable - un spectromètre. En spectrométrie gamma, un radio-isotope créé par le bombardement neutronique d'un élément, peut se reconnaître de deux façons complémentaires :

- Par l'énergie des gammas qu'il émet, à laquelle correspond une énergie égale du pic photoélectrique, qu'on lit en abscisse sur le spectre d'énergie;
- Par sa période de décroissance, qu'on peut déterminer en prenant le spectre d'énergie à intervalles régulières et en traçant la courbe de décroissance de l'activité sous le photopic (Perdijon, 1967).

En se basant sur ces mesures, nous pouvons examiner les éléments présentés dans un échantillon. L'utilisation du détecteur semi-conducteur au Germanium ultra pur (HPGe) à haute efficacité augmente considérablement la précision de l'analyse.

1.2.2 Activité gamma

Les rayons γ sont dus à l'existence de niveaux énergétiques, encore appelés états isométriques, du produit de décroissance. Comme ces états sont très instables, ils finissent par retomber à l'état stable en émettant des rayons γ . Un état isométrique dont la période peut être mesurée, est dit métastable.

Les rayons γ issus du réarrangement des nucléons dans le noyau possèdent une énergie (quelques centaines de keV).

Cette énergie est alors caractéristique du produit de décroissance obtenu comme la période T l'est pour le radio-isotope mère. Il est ainsi possible par la connaissance de ces deux valeurs d'attribuer à quel radio-isotope sont dus les rayons γ . Par conséquent, la mesure de l'activité permet de calculer la quantité de l'élément présente dans l'échantillon (Perdijon, 1967).

1.2.3 Interactions des rayons gamma avec la matière

Parmi les différents types d'interactions des rayons gamma avec la matière, essentiellement trois jouent un rôle important dans la mesure des radiations gamma :

- l'absorption photoélectrique,
- la diffusion Compton,
- la production de paires.

Ces mécanismes permettent le transfert partiel ou total de l'énergie du rayon gamma incident sur un atome du détecteur (germanium), à l'énergie de l'électron qui sera éjecté de l'atome. La détection du rayon gamma incident est corrélée avec la production de l'électron émis.

1.2.3.1 L'absorption photoélectrique

L'effet photoélectrique prédomine pour des rayons gamma incidents de faible énergie (de 10 à 100 keV). Dans cette interaction, un photon gamma incident frappe un électron d'une orbitale interne d'un atome (cible) du détecteur (germanium) et disparaît. L'électron est expulsé et prend alors le nom de photo-électron. (Knoll, 1989).

Le γ incident peut transférer son énergie à un électron interne de l'atome cible car cet atome peut emmagasiner une partie du mouvement de recul (Meyerhof, 1970). Le détecteur peut alors enregistrer un photopic ayant la même énergie que celle du rayon γ incident car l'énergie cinétique de l'électron émis égale pratiquement à celle du γ incident.

1.2.3.2 La diffusion Compton

La diffusion Compton prédomine pour des rayons γ incidents d'énergie comprise entre 100 keV et 10 MeV.

Le photon γ incident (de haute énergie) rebondit sur un électron d'une orbite externe de l'atome cible. Après le choc, une partie de l'énergie du photon γ incident est transférée à l'électron : c'est la diffusion. Le photon γ est dévié avec une énergie moindre que celle

qu'il avait avant la collision et peut par la suite interagir avec un autre électron cible. L'énergie perdue par le photon original est transférée à l'électron cible qui quitte l'atome parent et qui devient lui-même une particule ionisante. Possédant moins d'énergie, le photon émis présente alors une longueur d'onde supérieure (Knoll, 1989).

La diffusion Compton est plus susceptible de se produire avec des électrons qui sont faiblement liés à leur atome parent (appelés parfois électrons « libres »). Il est également beaucoup plus probable que le phénomène se produise à des énergies photoniques faibles.

La diffusion Compton est un effet indésirable (car on ne sait pas retrouver l'origine du photon γ une fois dévié) alors que l'effet photo-électrique est à la base de la détection dans les γ -caméras actuelles, par détection du photon de fluorescence.

1.2.3.3 La production de paires

Pour des γ d'énergie supérieure à 1,02 MeV, le rayon γ incident, qui entre en collision avec un noyau de l'atome cible, peut provoquer la production d'une paire positron-électron. Le positron disparaît peu de temps après par annihilation avec un autre électron.

Comme une énergie de $[2 m_0 . c^2]$ est exigée pour la création de la paire positron-électron,

l'énergie du rayon γ incident doit être au moins de 1,02 MeV (1020 keV) pour que ce phénomène devienne possible. Quand l'énergie du γ incident est plus grande que 1,02 MeV, l'énergie supplémentaire sera alors transférée sous forme d'énergie cinétique à la paire positron-électron (Knoll, 1989).

1.2.4 Activité induite dans l'échantillon

L'activité induite dans l'échantillon est due à la formation de radio-isotopes. Quand N atomes stables sont irradiés par un flux de neutrons ϕ ($\text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$) pendant un temps dt , le nombre d'atomes radioactifs formés N^* est proportionnel à $N\sigma\phi$. En même temps, commence la désintégration des radio-isotopes formés et se décrivant par: $\lambda N^* dt$. Le taux de croissance des radio-isotopes dans l'échantillon est donné par la formule :

$$dN^* = (N\sigma\phi - \lambda N^*) dt \quad (1.1)$$

où λ est la constante de désintégration du radio-isotope produit (s^{-1}) qui est égale à $\ln 2/T$, T est la demi-vie du radio-élément produit.

En intégrant la relation précédente et en supposant que $N^*(0) = 0$, on obtient le nombre d'atomes radioactifs formés à la fin de l'irradiation :

$$N^*(t_i) = \frac{N\sigma\phi}{\lambda}(1 - e^{-\lambda t_i}) \quad (1.2)$$

L'activité induite qui s'exprime en Bq (désintégration par seconde) est obtenue en multipliant par λ l'équation (1.2).

$$A(t_i) = \lambda N^*(t_i) = N\sigma\phi(1 - e^{-\lambda t_i}) \quad (1.3)$$

Le facteur $N\sigma\phi$ est appelé l'activité de saturation A_S . L'équation (1.3) représente une approximation dans laquelle nous supposons que le nombre de noyaux N dans l'échantillon ne varie pas au cours de l'irradiation. En réalité, le nombre de noyaux stables diminue exponentiellement dans le temps en fonction du taux de formation du radio-isotope $N\sigma\phi$. Pendant la période de l'irradiation, on a :

$$N = N_0 e^{-\sigma\phi t_i},$$

Où N_0 est le nombre de noyaux avant l'irradiation.

En remplaçant N par sa valeur exacte dans l'équation (1.1), la relation (1.3) prend la forme suivante :

$$A(t_i) = \lambda N^*(t_i) = \frac{\lambda N_0 \sigma \phi}{\lambda - \sigma \phi} (e^{-\sigma \phi t_i} - e^{-\lambda t_i}) \quad (1.4)$$

Cette approximation est valable dans la plupart des cas.

À $t = 0$, le nombre de noyaux est :

$$N \approx N_0 = \frac{N_A m \theta}{M_a} \quad (1.5)$$

En remplaçant (1.5) dans (1.2), on trouve :

$$A(t_i) = \frac{N_A \sigma \phi \theta m}{M_a} (1 - e^{-\lambda t_i}) \quad (1.6)$$

Où :

N_A est le nombre d'Avogadro;

θ est l'abondance de l'isotope cible dans l'élément considéré (%);

σ est la section efficace de l'élément activé ;

ϕ est le flux neutronique;

m est la masse de l'élément recherché dans l'échantillon (g);

M_a est la masse atomique de l'isotope irradié (g).

λ est la constante de désintégration du radio-isotope.

L'activité de l'échantillon à la fin de l'irradiation (t_i) et après le temps de décroissance (t_d), est :

$$A(t_i, t_d) = A(t_i) e^{-\lambda t_d} \quad (1.7)$$

Le temps de décroissance est défini comme le délai entre la fin de l'irradiation et le début de la mesure de l'activité.

Si on considère l'activité accumulée de l'échantillon, le nombre d'atomes désintégrés pendant une période de temps, après un temps de comptage t_c , on a :

$$A(t_i, t_d, t_c) = \int_0^{t_c} A(t_i, t_d) e^{-\lambda t} dt \quad (1.8)$$

$$A(t_i, t_d, t_c) = \frac{A(t_i, t_d)}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_c}) \quad (1.9)$$

L'activité accumulée est donc :

$$A(t_i, t_d, t_c) = \frac{N_A \sigma \phi \theta m}{M_a \lambda} (1 - e^{-\lambda t_i}) (1 - e^{-\lambda t_c}) e^{-\lambda t_d} \quad (1.10)$$

La formule (1.10) présente l'activité accumulée réelle de R.I. (radio-isotope). Pourtant, l'activité mesurée par un spectromètre dépend de plusieurs autres facteurs. L'équation

fondamentale reliant la surface du pic à la concentration d'un R.I. dans l'échantillon est la suivante :

$$S = \frac{N_A \sigma \phi \theta m \varepsilon I}{M_a \lambda} (1 - e^{-\lambda_i}) (1 - e^{-\lambda_c}) e^{-\lambda_d} \quad (1.11).$$

où :

- S est l'aire du pic;
- I est l'intensité du rayon γ (probabilité d'émission) ;
- ε est l'efficacité du détecteur.

1.2.5 Méthodes d'AAN basé sur l'activité induite

Il existe trois méthodes de mesure de l'activité induite d'un échantillon : la méthode absolue, la méthode relative et la méthode semi-absolue. Ce sont les méthodes les plus modernes et les plus utilisées dans une centaine de laboratoires nucléaires.

1.2.5.1 Méthode absolue

Dans cette méthode, on emploie une relation directe entre les taux de comptage et la masse d'élément dans l'échantillon. Autrement dit, on considère que le nombre de coups comptés sous le photopic est proportionnel à la masse de l'élément activé. Le nombre N de photons d'une intensité du rayon γ I enregistrée au cours du comptage d'une durée t_c avec un détecteur d'une efficacité ε , se donne par la formule :

$$N = \frac{N_A \sigma \phi \theta m \varepsilon I}{M_a \lambda} (1 - e^{-\lambda t_i}) (1 - e^{-\lambda t_c}) e^{-\lambda t_d} \quad (1.12)$$

Où $N = S$ (S est défini en (1.11))

Les mesures peuvent être absolues si on connaît la valeur de tous les paramètres d'irradiation et de comptage. Mais comme c'est rarement le cas, il est préférable de faire des mesures relatives (Perdijon, 1967; Zikovsky, 1999).

1.2.5.2 Méthode relative

Cette méthode consiste en une irradiation simultanée de l'échantillon et de l'étalon contenant des quantités connues m_E , et m_S de l'élément à doser dans l'échantillon et dans

le standard. En comparant les activités A_E et A_S de l'échantillon et du standard, on trouve la masse d'élément qu'on cherche. De cette façon on n'a pas besoin de connaître plusieurs constantes nucléaires (ni ϕ , ni ϵ). En effet, on divise A_E par A_S pour trouver la masse d'un élément m_E :

$$m_E = \frac{A_E m_S}{A_S} e^{(\lambda(t_{de} - t_{ds}))} \quad (1.13)$$

En première approximation, les activités sont proportionnelles aux masses de l'élément dans l'échantillon et dans l'étalon. Donc, on a :

$$E = \frac{C_E S}{C_S} e^{(\lambda(t_{de} - t_{ds}))}, \quad (1.14)$$

Où : $C_E = A_E \epsilon$ et $C_S = A_S \epsilon$ (C_E et C_S sont les taux de comptage enregistrés pour l'échantillon et pour l'étalon). La méthode est plus simple et conséquemment, plus utilisée que la méthode précédente (Zikovsky, 1999).

1.2.5.3 Méthode semi – absolue

La méthode semi - absolue est souvent utilisée dans l'analyse par activation neutronique. Elle consiste à considérer des constantes d'activation expérimentales K , caractérisant

chaque détecteur, pour chaque pic caractéristique et pour chaque position de comptage (Bergerioux, 1979). En fait, une constante d'activation exprime le nombre de coups enregistrés par micro gramme pour un flux donné, lors d'un comptage immédiat après une irradiation infinie pendant un temps infini. Autrement dit, une constante d'activation K est la surface du pic qui est obtenue quand 1 gramme d'élément est irradié dans un flux neutronique de $1 \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ jusqu'à saturation et compté immédiatement à la fin de l'irradiation jusqu'à décroissance totale.

$$S = m \cdot K \cdot \phi \cdot e^{-\lambda_d} \cdot (1 - e^{-\lambda_i}) \cdot (1 - e^{-\lambda_c}) \quad (1.15)$$

Où:

- m est la masse de l'élément (en μg)
- K est la constante d'activation expérimentale (en coups. cm^2 . seconde/ μg .neutrons)
- ϕ est le flux neutronique (en neutrons/ cm^2 /seconde),
- t_i est le temps d'irradiation (en seconde)
- t_d est le temps de décroissance (en seconde)
- t_c est le temps de comptage (en seconde)

L'utilisation de la méthode semi - absolue est justifiée lorsque l'intensité du flux neutronique demeure stable et que le spectre d'énergie des neutrons ne varie pas avec le temps. Dans ma recherche, notamment cette méthode a été utilisée.

1.2.6 Effet d'ombre (la théorie d'auto protection)

La relation entre la masse d'un élément et l'activité produite est souvent non linéaire. Cette « non - linéarité » est provoquée par l'absorption de neutrons à l'intérieur de l'échantillon. Lorsqu'il y a absorption des neutrons dans la masse de l'échantillon (auto absorption), un effet d'ombre est observé. Cet effet est significatif dans le cas d'échantillon d'assez grandes dimensions ou dans le cas d'élément possédant une grande section efficace totale, comme par exemple : *Cd, B, Gd, I, Cl*, etc. (Perdijon, 1967).

Un coefficient d'absorption des neutrons ou facteur d'auto protection peut être alors défini comme étant le rapport du flux moyen à travers l'échantillon sur le flux qu'il y aurait au même endroit en l'absence de l'échantillon (Perdijon, 1967,). L'activité induite due à un radio-isotope se calcule alors en remplaçant ϕ par la relation suivante :

$$\phi' = G_{eff} \cdot \phi,$$

Où G_{eff} est le coefficient d'absorption des neutrons pour l'échantillon et pour l'énergie des neutrons utilisés.

Dans le calcul de G_{eff} , deux cas seraient à considérer (Perdijon, 1967) :

- **Cas où la diffusion est négligeable devant l'absorption :**

Il s'agit du cas des échantillons qui n'ont pas de trop grandes dimensions et qui n'étaient pas constitués pas d'éléments très légers comme l'hydrogène. La section efficace macroscopique d'absorption de l'échantillon est définie comme la somme des sections efficaces de chaque élément composant l'échantillon.

$$\Sigma_A = \left(\frac{N_A}{v} \right) \sum_{i=1}^{i=n} \left(\frac{\sigma_i \cdot m_i}{M_i} \right)$$

Où:

Σ_A est la section efficace macroscopique d'absorption de l'échantillon pour l'énergie des neutrons utilisés (en cm^{-1}).

v est le volume de l'échantillon (en cm^3).

m_i est la masse de l'élément i pour l'énergie des neutrons utilisés (en grammes).

M_i est la masse atomique de l'élément i (en grammes).

σ_i est la section efficace totale de l'élément i pour l'énergie des neutrons utilisés (en cm^2).

Σ_A représente la probabilité que l'absorption se produise pour un neutron qui parcourt 1 cm dans l'échantillon. Σ_A donne une idée de l'ordre de grandeur de l'auto absorption dans l'échantillon.

- **Cas où la diffusion n'est pas négligeable :**

Dans ce cas, il est nécessaire de tenir compte de la section efficace de diffusion macroscopique.

$$\Sigma_{diff} = \left(\frac{N_A}{v} \right) \sum_{j=1}^{j=n} \left(\frac{\sigma_j \cdot m_j}{M_j} \right)$$

Où :

Σ_{diff} est la section efficace de diffusion macroscopique de l'échantillon pour l'énergie des neutrons utilisés (en cm).

m_j est la masse de l'élément j pour l'énergie des neutrons utilisés (en grammes).

M_j est la masse atomique de l'élément j (en grammes).

σ_j est la section efficace de diffusion de l'élément j pour l'énergie des neutrons utilisés (en cm²).

Comme la diffusion ralentit les neutrons, cela pourrait affecter les analyses par activation réalisée avec des neutrons rapides car le seuil d'énergie de la réaction nécessaire pour le dosage ne pourrait être atteint. Il peut y avoir aussi le risque d'augmentation du flux de neutrons thermiques par ralentissement des neutrons épithermiques (d'énergie entre 0,5 eV et 0,5 MeV).

En se basant sur la théorie d'auto absorption qui a été développée au cours de dernières années par J.R.D. Copley (1999) et par I. F. Gonçalves et coll. (1999), nous allons essayer de résoudre ce problème et d'augmenter le champ d'utilisation de l'AAN. Le but général de cette étude est, d'une façon expérimentale, de vérifier la validité de cette théorie et de développer un modèle qui pourrait être utilisé dans l'AAN.

1.2.7 Le temps mort

Le temps mort est le temps pendant lequel le détecteur (le système de comptage) est insensible à l'arrivée d'un autre rayon γ .

Le temps mort peut être dû à des radio-isotopes autres que celui utilisé pour le dosage mais aussi par le radio-isotope à mesurer. Lorsque le temps mort a pour source les autres radio-isotopes, il est préférable de laisser décroître les activités de ces autres radio-isotopes avant de procéder au comptage γ du radio-isotope à mesurer. Essentiellement, pour une bonne condition d'analyse il est préférable d'effectuer le comptage lorsque le temps mort est inférieur à 20%.

1.2.8 Erreurs statistiques

Des lois statistiques décrivent le phénomène aléatoire qu'est la désintégration radioactive.

Un atome radioactif formé peut se désintégrer ou survivre. Cette désintégration radioactive est décrite par la distribution de Poisson.

$$P(D) = \frac{M^{-D} \cdot e^{-M}}{D!}$$

où $P(D)$ est la probabilité d'avoir D désintégrations dans un temps t , pour une substance radioactive qui a une activité $A = M / t$,

où: M est le nombre moyen de désintégrations pendant le comptage $M = A \cdot t_c$

Dans la distribution de Poisson, l'écart type est $M^{1/2}$.

Les calculs lors du comptage sont donc effectués en utilisant l'écart type de $\Sigma = \pm M^{1/2}$, où M est la moyenne.

L'erreur sur la concentration due au comptage est calculée en remplaçant le nombre d'impulsions sous le photopic par l'erreur statistique sur la surface du pic. Cependant, il faut soustraire le bruit de fond de l'activité sous le photopic pour avoir l'activité nette du photopic (Knoll, 1989).

L'incertitude statistique relative Σ_r au photopic de l'élément dosé devient donc:

$$\Sigma_r = \frac{(T + B)^{1/2}}{S}$$

où:

- B** est le bruit de fond au pic de l'élément mesuré,
- S** est la surface nette du pic de l'élément mesuré,
- T** est la surface totale du pic de l'élément mesuré: $T = S + B$.

1.2.9 Études récentes en auto absorption

Il a été déjà mentionné dans la section 1.2.6 qu'en irradiant les échantillons contenant les éléments ayant de grandes sections efficaces d'absorption pour des neutrons, on observe un changement de flux neutronique initial. En effet, le flux diminue à cause de contact avec ces éléments. L'activité d'un élément irradié dans l'échantillon, pour un temps d'irradiation t_i et pour un flux ϕ , se décrit par la formule (1.6) :

$$A(t_i) = \frac{N_A \sigma \phi m}{M_a} (1 - e^{-\lambda_i t_i})$$

Évidemment, l'activité dépend directement du flux dans le site d'irradiation. Cependant, si on trouve dans l'échantillon des éléments ayant des grandes sections efficaces d'absorption pour les neutrons, ils changeront le flux neutronique initial. Dans ce cas, l'activité de cet échantillon sera fonction du flux neutronique modifié ϕ_R . On peut donc écrire :

$$\phi_R = G \cdot \phi_0$$

Où :

ϕ_R est le flux neutronique résultant;

ϕ_0 est le flux neutronique initial, sans l'influence de l'échantillon;

G est le facteur d'auto absorption qui change le flux neutronique initial.

Ce facteur G tend vers 1 si on irradie les échantillons contenant les éléments ayant des petites sections efficaces d'absorption pour des neutrons et peut être négligé. Par contre, quand on a des échantillons contenant les éléments ayant des grandes sections efficaces d'absorption pour des neutrons, $G < 1$. Alors, ce facteur doit être considéré pour corriger le flux et pour obtenir de bons résultats. Le G dépend de l'énergie des neutrons, des sections efficaces d'absorption des éléments se trouvant dans l'échantillon ainsi que de leur quantité.

Dans le champ neutronique d'un réacteur nucléaire, l'irradiation d'un échantillon est affectée par le changement local du flux des neutrons produit par l'échantillon. En général, l'interprétation de l'activation par des neutrons thermiques et épithermiques exige la connaissance de deux paramètres : le facteur d'auto absorption des neutrons thermiques G_{th} et le facteur d'auto absorption des neutrons épithermiques G_{res} . (Gonçalves, 2004), (Kennedy, 2000)

Dans ses travaux récents, Gonçalves, Martinho, et Salgado ont établi une courbe universelle de G_{res} pour les résonances isolées ou les groupes de résonances isolées et ayant des géométries différentes (des plaques d'aluminium (2001), des fils (2002), des sphères (2002) et des cylindres (2004)).

En ce qui concerne le G_{th} , récemment Copley (1999) a étudié les effets se produisant dans une sphère absorbante. Selon ses résultats, la valeur d'auto absorption est obtenue par un ensemble de courbes - fonctions de l'absorption macroscopique et des sections efficaces d'absorption dans l'échantillon.

Pour un échantillon donné, avec une géométrie simple et des dimensions données, on calcule le G_{th} comme un rapport entre les valeurs de flux neutronique dans l'échantillon réel et dans un échantillon - contrôle infiniment dilué :

$$G_{th}(x) = \frac{\int_{E_1}^{E_2} \phi(x) \sigma_{n,\lambda}(E) dE}{\int_{E_1}^{E_2} \phi_0(x) \sigma_{n,\lambda}(E) dE}$$

Un article portant sur la description par une courbe universelle de facteur de l'auto absorption de neutrons thermiques dans les feuilles d'aluminium, a été publié (I.F.Gonçalves et al., *Thermal neutron self-shielding factor in foils: a universal curve*, International Conference on Research Reactor Utilization, Safety, Decommissioning, Fuel and Waste Management, IAEA-CN-100, Santiago, Chile, November 2003). Ainsi, les études d'autres géométries (sphères, fils et cylindres) se poursuivent présentement par les mêmes auteurs.

Ces études permettaient de définir que la valeur de G_{th} dépend des propriétés physiques et nucléaires d'échantillon aussi bien que de leur géométrie et leur dimension typique. Pourtant, il s'avère possible de présenter une variable de dimensions z , qui convertit cette dépendance en une courbe unique. Les résultats obtenus pour des feuilles ou des plaques ont montré que cette variable z se donne par :

$$z = \Sigma_{tot} t \left(1 - \frac{\Sigma_s}{\Sigma_{tot}} \right)^{0.9} = \Sigma_{tot} t \left(\frac{\Sigma_a}{\Sigma_{tot}} \right)^{0.9}$$

où Σ_{tot} , Σ_s et Σ_a sont respectivement les sections efficaces macroscopique totale, de diffusion et d'absorption pour le spectre énergétique des neutrons thermiques, et t est l'épaisseur de la feuille.

L'analyse des résultats montre aussi que c'est le sigmoïde qui représente la meilleure courbe pour calculer la valeur de $G_{th}(z)$. L'expression de cette courbe est la suivante :

$$G_{th}(z) = \frac{A_1 - A_2}{1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^p} + A_2$$

Où A_1 , A_2 , z_0 et p sont les paramètres de courbe ajustés par rapport aux valeurs calculées. Goçlaves et al. ont démontré que la déviation entre leur courbe universelle établie à partir de l'équation précédente et celle établie à partir des valeurs expérimentales d'auto absorption pour des différents éléments (*Al, Cd, Cu, Gd, Ir, Ni, Pt, Sc, Ta*, etc.), est de l'ordre de 5 % (voir Figure 1.2).

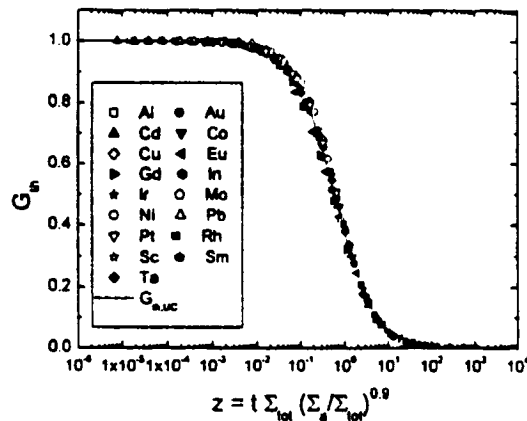


Figure 1.2 : La courbe universelle pour des éléments différents irradiés dans un flux thermique. (Gonçalves, 2002)

Une partie des points qu'on voit sur ce sigmoïde sont calculés en utilisant la méthode Monte-Carlo et une autre partie est obtenue des publications faites par les différents laboratoires.

Dans notre étude, nous appliquons la découverte de Gonçalves et all., en utilisant exclusivement des essais expérimentaux effectués dans notre réacteur. Nous développerons une nouvelle méthode de calcul de G_{th} pour les échantillons cylindriques de tous les éléments, et particulièrement pour le *CI*. Notre recherche sera un prochain pas vers l'agrandissement du champ d'utilisation de l'AAN pour les échantillons contenant des quantités considérables de substances ayant des sections efficaces macroscopiques élevées d'absorption de neutrons thermiques.

Chapitre II

Appareils, matériels et méthodologie

2.1 Appareils

Dans ce chapitre, nous allons passer en revue le dispositif expérimental utilisé pendant la recherche. Ce matériel comprend :

- le réacteur SLOWPOKE-2 de l'École Polytechnique de Montréal et ses systèmes d'irradiation;
- le système de comptage des rayons γ émis par les échantillons irradiés ;
- le programme EPAA (École Polytechnique Analyse par Activation) qui lit les spectres des rayons γ , calcule les surfaces des pics et les utilise pour déterminer les concentrations de plusieurs éléments ;
- la balance Mettler Toledo PG203-S qui a été utilisée pour un pesage précis des substances examinées.

2.1.1 Le réacteur SLOWPOKE-2

Le réacteur SLOWPOKE-2 est un réacteur nucléaire de type piscine et comme l'indique son appellation SLOWPOKE-2 pour Safe Low Power Critical Experiment, son fonctionnement est sûr et économique. Son champ d'application permet essentiellement l'analyse par activation neutronique et la production de radio-isotopes. Ce type de réacteur est principalement utilisé pour la recherche. Le SLOWPOKE-2 est conçu pour fonctionner à un flux de neutrons thermique jusqu'à 10^{12} neutrons.cm⁻².s⁻¹, 24 heures par jour, avec une puissance maximale de 20 kW.

L'assemblage critique du réacteur est composé du noyau du réacteur, du combustible et du réflecteur (Figure 2.2) (EACL, 1975, n° 69).

Le coeur du réacteur a un diamètre de 22 cm sur une hauteur de 22 cm et se compose de 198 crayons de combustible.

Chaque élément de combustible contient des pastilles d'oxyde d'uranium enrichi à 20% en U-235 entourées d'une mince gaine extérieure en zirconium. La masse critique de l'uranium U²³⁵ pour ce réacteur est environ 1100 grammes.

Le réflecteur, composé à 100% de béryllium, entoure complètement le coeur du réacteur et comporte cinq sites d'irradiation d'échantillons et un site de détection neutronique. De plus, ce réflecteur est constitué d'une plaque inférieure circulaire, d'une bague annulaire

et d'un ensemble de plaques (épaisseur actuelle de 1,34 cm) qui peuvent être placées au dessus du coeur pour maintenir le niveau de réactivité.

Afin de toujours maintenir le réacteur à sa criticité et garantir ainsi une stabilité dans la puissance, une barre de contrôle, composée de cadmium, avec un diamètre de 4 mm et une hauteur de 25,4 cm, peut être mue verticalement au centre du coeur.

Le coeur et son réflecteur sont enfermés dans une cuve en aluminium. De plus, la chaleur issue du noyau du réacteur est transférée par convection naturelle via un liquide caloporteur, qui n'est autre que l'eau légère, à la cuve du réacteur. Cette cuve est immergée dans une piscine remplie d'eau légère, qui sert aussi de réflecteur. Ainsi, la chaleur issue de la cuve se transfère par convection naturelle à la piscine.

La partie relevant de l'assemblage d'irradiation d'échantillons peut comprendre jusqu'à 10 tubes d'irradiation.

D'une part, cinq tubes d'irradiation, situés à l'intérieur de l'espace annulaire en béryllium, permettent la réception de capsules de 7 cm³. D'autre part, cinq tubes d'irradiation, situés à l'extérieur de l'espace annulaire en béryllium, permettent la réception de capsules de 27 cm³ ou de 7 cm³. Les tubes d'irradiation sont branchés à un système de transfert pneumatique (Figure 2.2).



Figure 2.1 : Laboratoire SLOWPOKE, École Polytechnique de Montréal

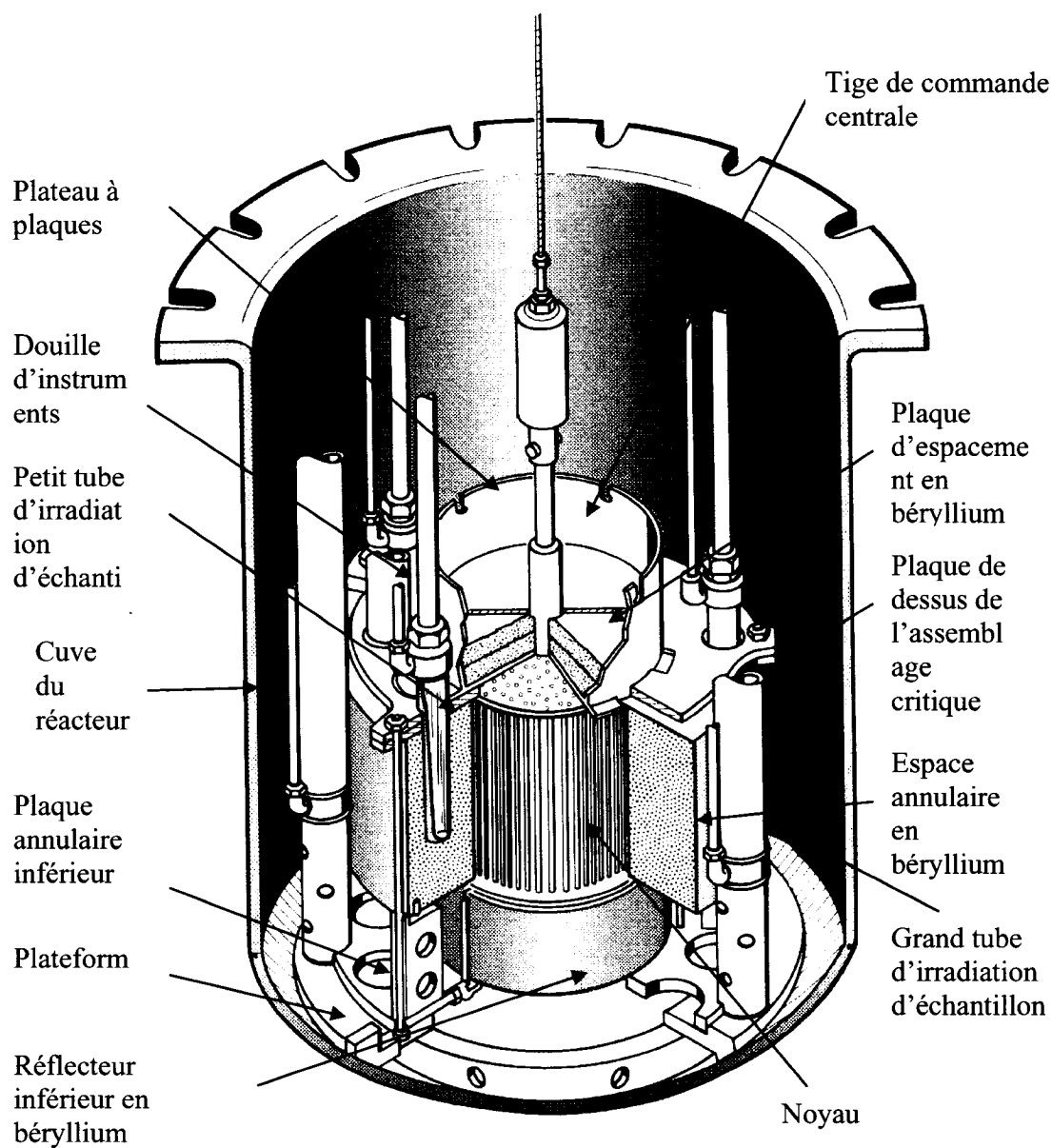


Figure 2.2 : Assemblage du réacteur SLOWPOKE-2 avec cœur, réflecteur et tubes d'irradiation (EACL, 1975, n° 69)

Caractéristiques propres au réacteur

Noyau :

Diamètre	22 cm
Hauteur	22 cm
Volume	8360 cm ³
Enrichissement de l'Uranium	20% U ²³⁵
Masse critique de l'uranium	1100g
Vie du combustible	20 ans à 10 ¹¹ n.cm ⁻² .s ⁻¹
Nombre d'éléments de combustible	198
Diamètre extérieur de la cuve du réacteur	0,61 m
Longueur de la cuve du réacteur	5,273 m
Différence de température de la piscine à 10 ¹² n/(cm ² .s)	17°C

Caractéristiques propres au système d'irradiation

Nombre de sites d'irradiation intérieurs	5
Flux neutronique maximum	10 ¹² n.cm ⁻² .s ⁻¹
Variation du flux horizontal	< 1% cm ⁻¹
Variation du flux vertical	± 0,7% /cm

Format des petites capsules (intérieur) :

Diamètre extérieur	1,58 cm
Longueur	5,4 cm
Volume	7cm ³
Nombre de sites d'irradiation extérieurs	5 (3 petits, 2 grands)
Flux neutronique maximum	$5 \times 10^{11} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$
Variation du flux horizontal	5% cm ⁻¹
Variation du flux vertical	$\pm 0,5\% \text{ cm}^{-1}$

Format des grandes capsules (extérieur) :

Diamètre	2,9 cm
Longueur	5,4 cm
Volume	27 cm ³

Caractéristiques propres à la piscine

Diamètre intérieur	2,5 m
Profondeur	7 m
Profondeur de l'eau au dessus du coeur	4,42 m
Profondeur de la surface de l'eau sous le plancher	0,9m
Volume d'eau (approximativement)	27 m ³

2.1.2 Le système de comptage des rayons gamma

Après l'irradiation des échantillons, un système de mesure de la radioactivité va permettre de caractériser et visualiser les radiations résultantes de ces derniers, en occurrence les rayons γ .

Le système de comptage des rayons γ comprend :

- un détecteur pour transformer les rayons γ en impulsions électriques,
- un analyseur multicanal qui traite les signaux électriques et les présente sous la forme d'un spectre complet de rayons γ .

Généralement, les systèmes modernes de détection des rayonnements s'appuient sur différents principes de fonctionnement :

- l'ionisation des gaz : cas des compteurs Geiger-Müller,
- l'excitation des cristaux résultant de la luminescence : cas des détecteurs à scintillation,
- changement de conductivité : cas des détecteurs semi-conducteurs.

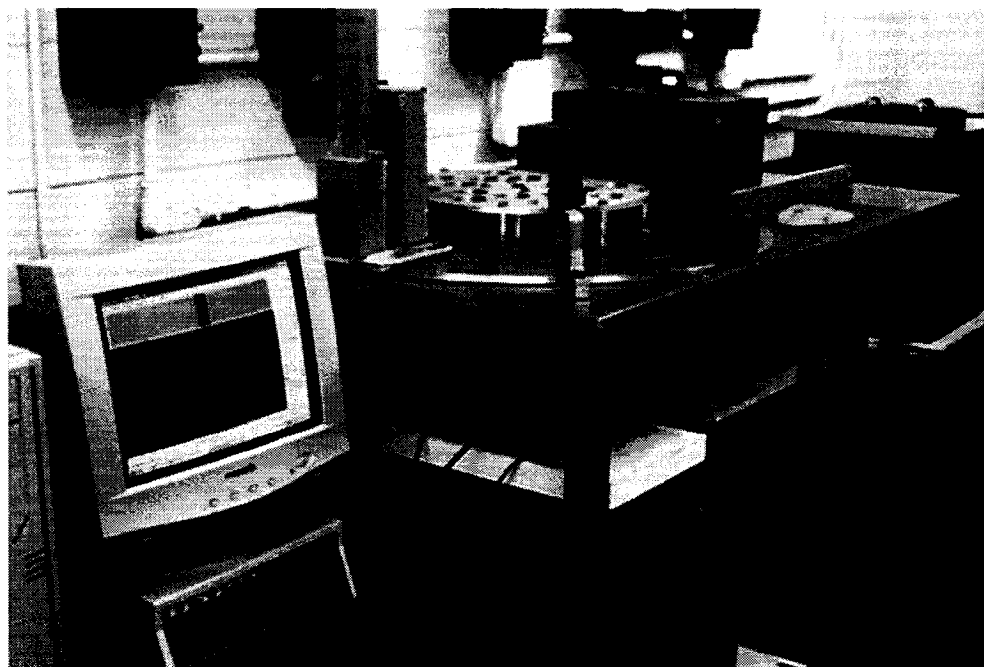


Figure 2.3 : Système de comptage des rayons gamma du laboratoire

SLOWPOKE, le détecteur C

En spectrométrie γ , les détecteurs les plus souvent employés sont les détecteurs à semi-conducteur car ils ont une très bonne résolution (Knoll, 1989). Ce type de détecteur possède un semi-conducteur intrinsèque placé entre deux électrodes, ce qui fait qu'il se comporte comme une chambre d'ionisation lorsqu'une particule ionisante le traverse. Les chocs entre la particule et les atomes du cristal provoquent l'ionisation du milieu avec apparition de paires électron - trou dont le nombre est proportionnel à l'énergie perdue par la particule dans le cristal. Un champ électrique stabilisé entre les électrodes amène le déplacement et la collecte des charges négatives et positives. Finalement, chaque impulsion électrique qui sort du détecteur correspond à l'interaction d'un rayon γ avec le détecteur.

Le détecteur à semi-conducteur employé dans cette étude est un détecteur au Germanium ultra pur (HPGe) à haute efficacité de modèle GEM-50195. Ce détecteur est refroidi continuellement à l'azote liquide (environ $-193\text{ }^{\circ}\text{C}$) et maintenu sous tension (Figures 2.4 et 2.5).

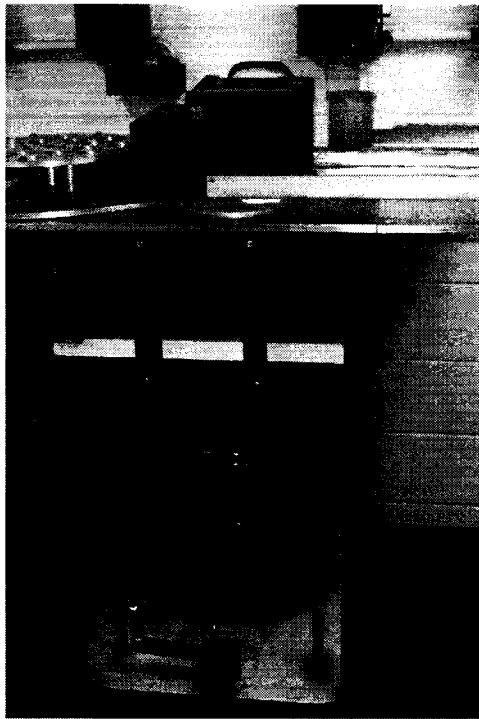


Figure 2.4 : Le détecteur C refroidi à l'azote liquide

Caractéristiques propres au détecteur au Germanium ultra pur (HPGe) à haute efficacité, modèle GEM-50195

Le diamètre du cristal de germanium est de 66.8 millimètres et la longueur de cristal est de 70.2 millimètres. L'efficacité relative du détecteur, par rapport à un détecteur *Na I* de

7,6 cm, est de 53.8 %, à 1.33 MeV du ^{60}Co . Le système de spectroscopie est composé d'un détecteur HPGe et d'un système EG&G ORTEC qui contient un support à haut voltage (plus que 5000V) et un système électronique de traitement du signal.

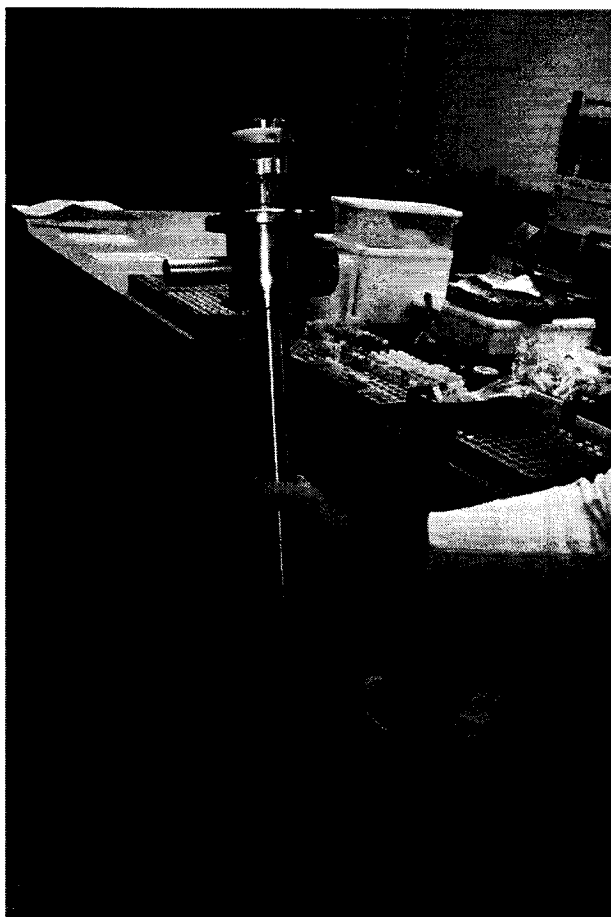


Figure 2.5 : Le détecteur au Germanium ultra pur (HPGe) à haute efficacité

Le détecteur est protégé par un château de plomb dont la paroi est d'au moins 5 cm.

2.1.3 Balance PG203-S

Pour effectuer des mesures nécessaires dans le cadre de notre recherche, nous avons utilisé la balance PG203-S de compagnie « Mettler Toledo » (Figure 2.6).

Spécifications:

Capacité maximale : 210 g

Lisibilité : 0.001 g

Gamme : 0 à 210 g

Répétitivité : 0.0008 g

Linéarité : ± 0.002 g

Le temps de stabilisation normale : 1 à 2.5 s

Ajustement avec des poids intérieurs (FACT (fully automatic self-calibration))

Ajustement avec des poids extérieurs : 100/200 g

Sensibilité (déviation de la température) : ± 5 ppm/°C

Sensibilité (stabilité à long terme) : ± 0.0025 %

Interfaces : RS-232C,

Surface du panier : 128x128 mm

Hauteur libre au dessus du panier : 137 mm

Dimensions : 226 x 239 x 360 mm (W x D x H)

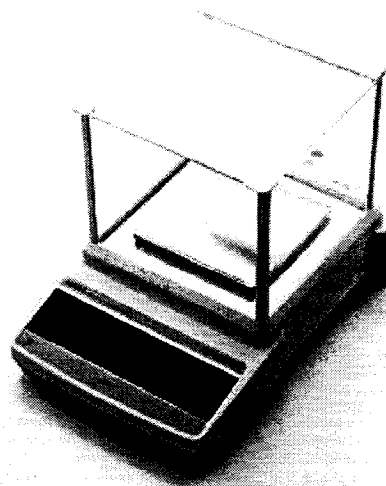


Figure 2.6 : Balance PG203-S

2.2 Matériels

2.2.1 Logiciel EPAA «Version 2.20»

L'EPAA (École Polytechnique - Analyse par Activation) est un programme créé pour les besoins spécifiques du laboratoire SLOWPOKE de l'École Polytechnique de Montréal. Il est écrit en Fortran et fonctionne sous MS-DOS et sur micro-ordinateur. Le programme fait les calculs nécessaires pour l'analyse par activation neutronique avec détecteurs au

germanium, et a plusieurs options sophistiquées pour corriger les interférences. Le programme lit le spectre des rayons gamma, calcule les surfaces des pics, et les utilise pour déterminer les concentrations de plusieurs éléments. La bibliothèque construite par les utilisateurs de l'EPAA contient les demi-vies, les énergies des rayons gamma, et les constantes de sensibilités (coups par micro gramme) pour chaque rayon gamma et chaque géométrie de comptage.

À cause du fait qu'EPAA est un programme interactif, la performance et la justesse actuelle de la bibliothèque se basent sur les travaux et les études de ses utilisateurs. L'utilisateur entre les paramètres tels que le poids de l'échantillon, le temps de décroissance, et le flux de neutrons qui sont spécifiques à chaque spectre donné. Lorsque l'aire du pic est calculée, la région d'intérêt du spectre est choisie à l'écran pour le contrôle et les modifications à apporter par l'utilisateur. Cette propriété est essentielle pour la détermination correcte de la surface du pic.

Les concentrations sont calculées essentiellement par la méthode relative. Les inconnues et les standards doivent avoir la même géométrie de comptage, mais les temps d'irradiation, de décroissance, et de comptage peuvent être différents. Les flux neutroniques peuvent être différents pour les standards et les inconnues en autant que les valeurs relatives soient connues.

La méthode de calcul de concentration est basée sur les principes suivants :

1. En AAN, la concentration d'un élément donné dans un échantillon à analyser est calculée en comparant sa surface de pic avec celle du standard irradié et compté dans les mêmes conditions. L'équation fondamentale reliant la surface du pic à la concentration est :

$$A = \frac{C \cdot W \cdot N_A \cdot \theta \cdot \sigma \cdot I \cdot \varepsilon \cdot \phi \cdot (1 - e^{-\lambda t_i}) \cdot e^{-\lambda t_d} \cdot (1 - e^{-\lambda t_c})}{M_a \cdot \lambda} \quad (2.1)$$

où :

A	l'aire du pic
C	la concentration de l'élément
W	le poids de l'échantillon utilisé
θ	l'abondance isotopique
σ	la section efficace
I	l'intensité du rayon gamma
ε	l'efficacité du détecteur
ϕ	le flux de neutrons
λ	la constante de décroissance
M_a	la masse atomique
t_i	le temps d'irradiation
t_d	le temps de décroissance
t_c	le temps de comptage

En combinant la plupart des ces paramètres, on obtient une constante de sensibilité **B** définie comme suit :

$$B = \frac{N_A \cdot \theta \cdot \sigma \cdot I \cdot \varepsilon}{M_a} \quad (2.2)$$

La relation entre l'aire du pic et la concentration devient :

$$A = \frac{C \cdot W \cdot B \cdot \phi}{\lambda} \cdot (1 - e^{-\lambda_i}) \cdot e^{-\lambda_d} \cdot (1 - e^{-\lambda_c}) \quad (2.3)$$

Évidemment, à partir de l'équation (2.2), **B** dépend de l'efficacité du comptage mais pas du flux de neutrons, ni des temps d'irradiation, de décroissance, et de comptage. Pour le pic d'un élément donné, la valeur de **B** peut être déterminée à partir de l'équation (2.3), en utilisant l'aire du pic mesuré avec un standard.

Pour un standard, EPAA calcule **B** avec la formule :

$$B = \frac{A \cdot \lambda}{C \cdot W \cdot \phi \cdot (1 - e^{-\lambda_i}) \cdot e^{-\lambda_d} \cdot (1 - e^{-\lambda_c})} \quad (2.4)$$

Où ϕ est le flux de neutrons relatif au flux de référence. Le flux de référence est généralement considéré comme $10^{11} \text{ n/cm}^2/\text{s}$. À ce flux de $10^{11} \text{ n/cm}^2/\text{s}$ la puissance du réacteur est d'environ 2 kW .

Une fois la constante de sensibilité connue, elle peut être utilisée pour calculer la concentration de cet élément dans un échantillon inconnu qui est mesuré en utilisant la même géométrie de comptage que le standard. Le programme calcule les concentrations avec la formule suivante :

$$C = \frac{A \cdot \lambda}{B \cdot W \cdot \phi \cdot (1 - e^{-\lambda_i}) \cdot e^{-\lambda_d} \cdot (1 - e^{-\lambda_c})} \quad (2.5)$$

L'incertitude dans la concentration due aux statistiques de comptage se calcule également.

Dans notre recherche, on peut considérer que l'auto absorption réduit le flux de neutrons, ϕ par le facteur G_{eff} . Donc, la concentration calculée par EPAA, en utilisant un flux ϕ sera plus basse que la concentration réelle par un facteur G_{eff} .

Ainsi, le facteur d'auto absorption que nous chercherons à évaluer est égal au rapport entre la concentration calculée par EPAA à partir de la formule (2.5) et celle obtenue à partir des mesures directes en utilisant la balance :

$$G_{eff} = \frac{C_{EPAA}}{C_{pesé}} \quad (2.6)$$

Les valeurs de tous les paramètres nécessaires pour calculer l'équation (2.5) sont obtenus par le programme comme suit :

- les W, ϕ, t_i, t_d sont données par l'utilisateur;
- B est lu à partir de la bibliothèque;
- λ est calculée à partir des demi-vies qui sont lues dans la bibliothèque;
- le t_c est lu à partir des informations stockées avec le spectre;
- A est calculé à partir du spectre.

Un avantage important de cette méthode de calcul est le suivant: la même constante de sensibilité peut être utilisée pour plusieurs analyses sur une grande période de temps, éliminant le besoin d'utiliser un standard pour chaque élément et pour chaque série d'échantillons, aussi longtemps que les conditions suivantes sont satisfaites:

- la géométrie de comptage est reproductible;

- le flux de neutrons est reproductible, ou s'il varie, sa valeur relative par rapport à sa valeur au moment où le standard a été irradié peut être déterminée ;
- la forme du spectre des neutrons ne doit pas varier.

2.2.2 Choix de substance

Dans notre recherche, nous nous intéressons aux éléments ayant des sections efficaces d'absorption élevées pour les neutrons thermiques. Parmi les éléments connus et possédant cette qualité, nous avons arrêté notre attention sur le *Cl*. Il a une section efficace d'absorption suffisamment élevée pour les neutrons thermiques 33.5 b, ce qui nous donne la possibilité d'observer et d'examiner l'effet d'auto absorption. De plus, en irradiant le *Cl*, 97% de l'activité du ^{38}Cl produit est causée par des neutrons thermiques et seulement 3% - par des neutrons épithermiques. À cause de cela, et aussi parce que dans les sites d'irradiation 6 et 8 le flux neutronique est quasiment thermique, l'activité obtenue des neutrons épithermiques est négligeable. Cet effet nous donne une possibilité idéale de trouver le facteur d'absorption G_{th} à partir du *Cl*. Il est bien convenable et accessible car ses composés sont nombreux et présent dans notre environnement et notre vie quotidienne. Par ailleurs, le *Cl* pur est très actif chimiquement et entre facilement en contact avec les autres substances environnantes. Il est plus pratique donc de choisir un composé du *Cl*. Parmi tous les composés du *Cl* existants, nous avons arrêté notre

attention sur le *Chlorure de Sodium (NaCl)*, la plus grande source naturelle de chlore, notre sel de cuisine. Il est présent dans les mines et dans l'eau des mers et des océans. Les avantages principaux d'utilisation du *NaCl* dans nos travaux sont donnés ci-dessous :

- C'est un composé chimique simple de deux atomes.
- Il est accessible et peu coûteux, notre laboratoire en dispose.
- Dans le but d'établir expérimentalement la courbe d'auto absorption, nous tenterons entre autre à la concentration la plus élevée possible de l'élément examiné. Cependant, sur le plan pratique, nous sommes limités par le volume maximal de nos capsules (capsules grandes). C'est le *NaCl* qui nous permet d'avoir les concentrations les plus élevées possibles du Cl dans nos capsules à cause de sa simplicité chimique.
- C'est un composé n'ayant aucune toxicité et n'exige pas des mesures de sécurités spéciales pour son utilisation.
- Le *NaCl* est peu hygroscopique par rapport aux autres composés du *Cl*. Aux fins de nos travaux, il nous faut une substance peu hygroscopique. Une hygroscopie élevée peut nous poser des problèmes graves et nous amener vers des résultats incorrects. La pénétration de l'eau dans nos échantillons pesés

d'avance augmentera la masse totale mesurée. D'autre part, la présence de l'eau dans le site d'irradiation affecte le flux neutronique en augmentant le flux thermique à cause du fait que H_2O est le modérateur le plus performant pour des neutrons. Après l'irradiation d'un échantillon contenant des composés hygroscopiques, on ne peut pas préparer des mélanges avec ces composés. On ne peut pas être certain de la fraction d'eau dans l'échantillon et de la fraction de composé examiné. La préparation des mélanges est souvent nécessaire pour diminuer l'activité totale de certains échantillons en les diluant ainsi que pour faire des échantillons ayant la bonne géométrie pour le comptage avec le détecteur.

- Du point de vue de l'AAN, le $NaCl$ est aussi convenable parce qu'on peut directement mesurer le Na dont l'activité est aussi produite par des neutrons thermiques. La présence du Cl influence le flux neutronique dans le site d'irradiation. Ainsi, le Na se fait activer par le flux neutronique résultant et peut servir de moniteur. En effet, peu importe lequel de ces deux éléments nous mesurons, car qui nous intéresse c'est le flux résultat. Toutefois, il est plus approprié de mesurer le Na . Les échantillons qui contiennent de grandes quantités de $NaCl$ s'activent trop, ce qui est un inconvénient pour la manipulation et la mesure de l'activité. Ils créent des problèmes quant aux mesures parce que le détecteur devient saturé. En outre, si on attend suffisamment longtemps pour que l'activité diminue, il nous sera impossible

de mesurer le *Cl* car sa demi-vie est assez courte. Il nous reste donc la seule possibilité de mesurer le *Na*. De cette manière, en utilisant notamment le *NaCl* et en mesurant le *Na*, nous sommes en mesure de manipuler et d'examiner les échantillons ayant des concentrations élevées de substances actives, ainsi que celles ayant des concentrations de traces. Bref, le *NaCl* nous permet d'obtenir des mesures expérimentales sur une large gamme de concentration.

Les avantages énumérés si haut nous ont conduit vers le choix définitif de *NaCl* comme le composé de *Cl* le plus approprié pour notre recherche.

2.2.3 Capsules utilisées

Trois sortes des capsules ont été utilisées pour notre recherche. Nous allons les nommer : capsule petite, capsule moyenne, capsule grande. Les paramètres des capsules utilisées aux fins de notre recherche sont donnés ci-bas (voir Figure 2.7) :

Capsule petite	V - 1,4mL	d - 10 mm	h - 23mm
Capsule moyenne	V - 7mL	d - 15mm	h - 55mm
Capsule grande	V - 25mL	d - 27mm	h - 53mm

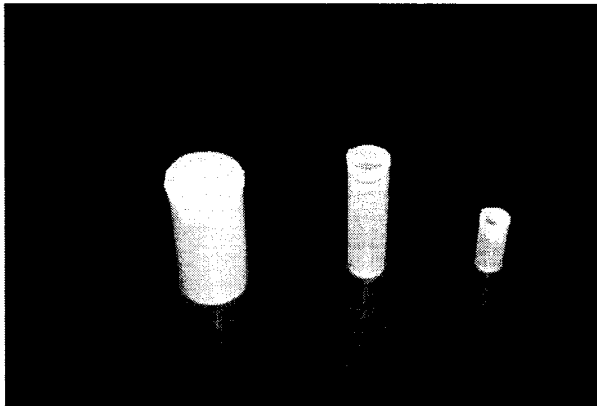


Figure 2.7 : Les capsules de différents grandeurs utilisées

La grandeur des capsules qui peuvent être introduite dans le réacteur dépend du diamètre des tubes des systèmes pneumatiques. Ainsi, dans les sites 1 et 8 on peut utiliser les capsules petites et moyennes, tandis que pour le site 6 on peut utiliser les capsules petites, moyennes et grandes. Cependant, indépendamment des paramètres des capsules, l'échantillon examiné doit se situer au centre du site pour assurer l'égalité des conditions au niveau du flux neutronique. C'est pourquoi, en travaillant dans le site 8 avec des capsules petites, nous avons placé la petite capsule à l'intérieur d'une capsule moyenne parce que le diamètre du site 8 correspond à celui d'une capsule moyenne. Pour fixer la petite capsule d'échantillon à l'intérieur de la capsule moyenne, nous remplissons le reste avec une autre capsule petite vide. S'il est nécessaire d'augmenter la masse de la capsule moyenne, nous ajoutons dans la capsule vide la quantité nécessaire de plomb. Ainsi, nous avons maintenu constante la masse totale de la capsule, et donc nous avons eu un temps d'irradiation constant. L'impact de la plombe sur le flux neutronique dans le site d'irradiation est négligeable.

En travaillant avec le site 6, nous utilisons principalement les capsules grandes. S'il est nécessaire d'irradier une capsule moyenne dans ce site, nous plaçons les capsules moyennes à l'intérieur des capsules grandes. À cause du fait que l'hauteur des moyennes capsules est plus élevée que celle de grandes capsules, on est obligé de perforer ces dernières sur l'axe du bouchon (voir Figure 2.8).

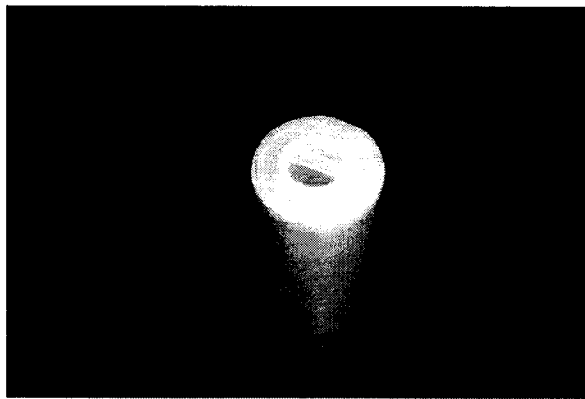


Figure 2.8 : Capsule moyenne à l'intérieur d'une capsule grande

Après avoir placé une capsule moyenne à l'intérieur d'une grande capsule, nous scellons la capsule moyenne en la collant à la capsule grande, et ce pour éviter un déplacement pendant le transport.

S'il est nécessaire d'irradier des petites capsules dans le site 6, nous les fixons à l'intérieur des grandes capsules à l'aide d'anneaux de mousse de plastique (voir Figure 2.9). De cette façon, nous nous assurons que la petite capsule est bien fixée à l'intérieur d'une grande et que notre échantillon se trouvera au milieu du site d'irradiation.

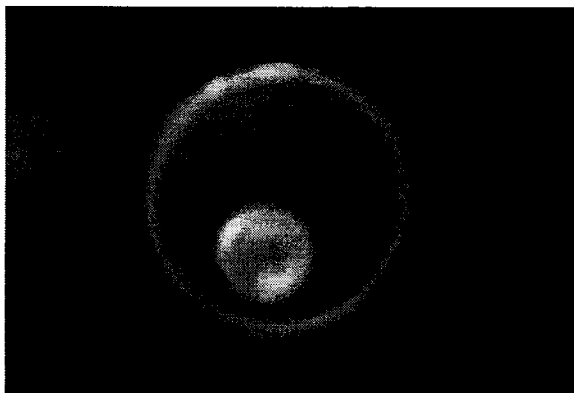


Figure 2.9 : Capsule petite à l'intérieur d'une capsule grande

Toutes les capsules contenant les substances examinées doivent être scellées. Cela est obligatoire pour empêcher une contamination radioactive des surfaces de travail. De plus, un échantillon dont une partie de la substance examinée est perdue, ne peut pas être mesuré.

2.2.4 Bouchons de bois

La géométrie d'échantillon est un facteur important dont on tient compte dans la formule de la courbe théorique d'auto absorption. Ce fait a été aussi considéré dans les travaux de Gonçalves et coll. qui ont étudié des échantillons ayant différentes géométries (sphères, plaques, fils). Pour ce qui est de nos recherches, nous avons étudié les échantillons de forme cylindrique. Sachant que notre substance examinée (*NaCl*) est une poudre, pour

avoir une forme cylindrique d'échantillon en cours d'irradiation, il est apparu nécessaire d'utiliser de bouchons.

Avec ces bouchons, nous pressons notre poudre jusqu'à l'obtention d'une forme cylindrique (voir la figure 2.10). Cette forme reste la même pendant tout le temps d'irradiation, au cours du temps de décroissance, jusqu'au moment où il est nécessaire d'ouvrir l'échantillon pour effectuer d'autres opérations avec la poudre irradiée.

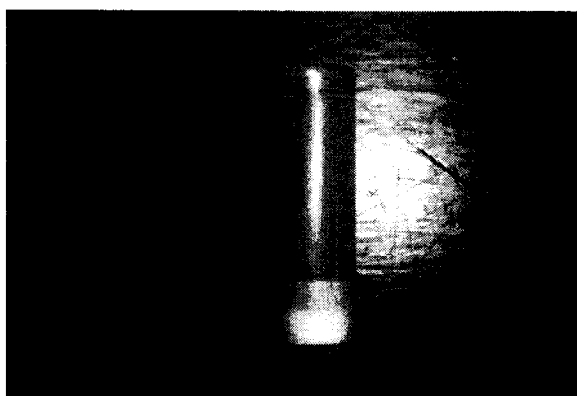


Figure 2.10 : Forme cylindrique d'échantillon assurée par un bouchon

Compte tenu de leur application, les bouchons devaient être fabriqués d'un matériel dur et solide pour pouvoir garder la forme cylindrique d'échantillon et pour résister à la pression. Voilà pourquoi, nous avons décidé de les fabriquer de bois car le bois ne contient pas de grosses quantités d'éléments pouvant s'activer et de telle façon pouvant nuire à nos mesures.

Trois types de bouchons ont été fabriqués qui répondent respectivement aux trois différentes capsules utilisées. Ces bouchons ont la forme cylindrique et les paramètres suivants (voir Figure 2.11):

Bouchon petit	d - 9,5mm	épaisseur - 5mm
Bouchon moyen	d - 14mm	épaisseur - 5mm
Bouchon grand	d - 26mm	épaisseur - 6mm

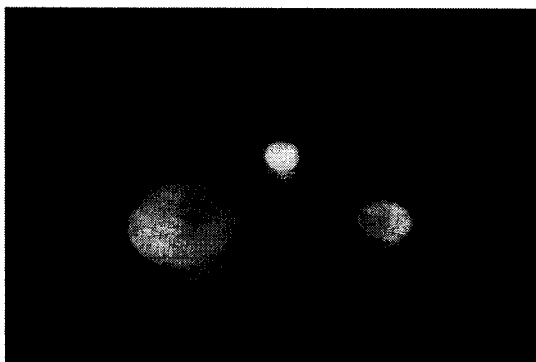


Figure 2.11 : Trois types de bouchons utilisés

Vue que nous ne connaissons pas la composition chimique exacte du matériel dont les bouchons sont faits, nous avons effectué quelques irradiations pour déterminer :

1. Les bouchons deviennent-ils radioactifs et dans quelle mesure ;

2. En examinant les bouchons, nous vérifions tout d'abord quels éléments sont présents dans notre matériel, et plus précisément la présence des éléments pouvant affecter notre travail. Nous sommes intéressés avant tout par des éléments ayant le pouvoir de changer le flux neutronique c'est-à-dire les éléments modérateurs ou ceux ayant des sections efficaces d'absorption élevées pour des neutrons.

Les irradiations effectuées ont donné des résultats positifs dans le sens que la présence des bouchons ne modifie pratiquement pas le flux neutronique et leur activité après l'irradiation est très faible. On a effectué nos expériences comme suit : tout d'abord, un échantillon d'aluminium sans bouchon a été irradié; le même échantillon, mais avec le bouchon, a été irradiée quelques jours plus tard. Les résultats obtenus à partir de l'EPAA ont été identiques dans les deux cas, ce qui nous a permis de mettre en application des bouchons de bois pour des capsules de toutes les grandeurs et de les utiliser jusqu'à la fin de nos mesures.

2.3 Méthodologie

2.3.1 Temps de l'irradiation, de décroissance et de comptage : t_b , t_d , t_c

Il est évident, à partir de l'équation (2.5), que pour calculer la concentration d'un élément, il faut bien connaître les trois temps - t_b , t_d , t_c . Nous allons utiliser cette concentration calculée par EPAA pour trouver le facteur d'auto absorption (voir l'équation (2.6)).

2.3.1.1 Le temps t_c

Nous connaissons le temps t_c parce qu'il est strictement respecté par le logiciel qui effectue le comptage. Dans notre recherche, nous avons choisi le temps de comptage égal à 300 s. Ce temps est optimal parce que les échantillons sont assez actifs pour obtenir un bon spectre après 300 s avec un nombre de rayons γ suffisant dans le pic du ^{24}Na .

2.3.1.2 Le temps t_d

Nous pouvons mesurer le temps t_d avec assez de précision en utilisant un chronomètre.

2.3.1.3 Le temps t_i

On peut supposer que le temps d'irradiation t_i commence au moment où la capsule entre dans le site d'irradiation du réacteur, et se termine au moment où elle sort à l'aide du système pneumatique vers le château de plomb. Les systèmes pneumatiques des tous les sites d'irradiation sont munis d'un chronomètre. On fixe d'avance le temps d'irradiation au chronomètre. Quand la capsule est envoyée, elle passe par une photod cellule située au début du système pneumatique qui déclenche le chronomètre. Quand le temps choisi est terminé, le système pneumatique fait sortir la capsule.

On peut dire alors que, le temps du chronomètre t_h est égal à :

$$t_h = t_l + t_i \quad (2.7)$$

Où :

t_l est le temps entre le moment où la capsule passe devant la photod cellule et le moment où elle arrive dans le site d'irradiation ;

t_i est le temps réel de l'irradiation.

Si le temps d'irradiation est court, t_l n'est pas négligeable par rapport à t_i . Par exemple pour le site d'irradiation 1 le t_l peut atteindre jusqu'à 2 s, ce qui n'est pas négligeable

dans le cas de l'irradiation d'échantillons contenant plusieurs grammes de Na , où t_i doit être de l'ordre de 5 s.

Les chronomètres qui sont à notre disposition dans le laboratoire se mettent en marche de manière différente :

- Pour les sites 1 et 2 - avec une phot cellule située dans la partie supérieure du tube par laquelle l'échantillon entre dans le réacteur ;
- Pour les sites 6 et 8 ils se mettent en marche manuellement par l'opérateur qui entend le signal acoustique. Ce signal se produit quand l'échantillon tombe dans le site.

Dans le premier cas (les sites 1 et 2), l'erreur dans le temps réel d'irradiation représente le temps qui est nécessaire pour que l'échantillon passe la distance entre la phot cellule et le site d'irradiation. Ce temps est différent pour chaque site et dépend d'une panoplie de facteurs : la longueur du chemin suivi, la masse de l'échantillon, la contamination du tube, la forme du tube, la grandeur de la capsule, etc. Pour les sites 6 et 8, l'erreur provient du temps de réaction du chercheur et donc représente une valeur spécifique pour chacun.

Notre tâche consiste, par une série d'expériences avec des échantillons d'aluminium (Al), à déterminer le temps réel d'irradiation dans les sites 1, 2, 6 et 8.

2.3.2 Détermination de temps réel d'irradiation t_i par une série d'expériences avec les échantillons d'aluminium (Al)

Pour arriver à notre but, on s'est servi des moyens d'analyse par activation. Toutes les conditions pour toutes les expériences sont égales :

- Pour chaque site, nous effectuons trois séries d'expériences contenant 10 échantillons chacune ;
- Dans toutes les séries, nous utilisons les mêmes 10 échantillons d'une masse moyenne de 0,1g (la masse de chaque échantillon est mesurée en utilisant la balance PG203-S de Mettler Toledo, et ce - avec une précision de 0.0001 g;
- Pour chaque site, nous effectuons deux séries d'irradiation : une de 4 s. et une de 60 s. (ce qui représente notre temps d'irradiation t_h (voir formule 2,7)) ;
- Pour les séries avec le temps d'irradiation 4 s., le temps de décroissance t_d est 60 s. ;
- Pour les séries avec le temps d'irradiation 60 s., le temps de décroissance t_d est 600 s. ;

- Pour toutes les séries, le temps du comptage t_c est de 60 s. ;
- Pour le comptage, on utilise toujours le même détecteur (le détecteur C du laboratoire SLOWPOKE), avec la même position pour toutes les échantillons- la position 4 (à 25 cm du détecteur car les échantillons sont très actifs) ;
- Pour les calculs d'EPAA, on utilise la bibliothèque - CCOURT ;
- On suppose que le flux neutronique dans les sites d'irradiation 1, 2, 6 et 8 est constant avec le temps. Donc, toutes variations de l'activité mesurée proviennent d'une variation du temps d'irradiation.

Pour effectuer nos calculs d'EPAA, il est nécessaire de connaître le flux neutronique dans les sites d'irradiation. Nous utilisons les valeurs déterminées au préalable en utilisant des irradiations de longue durée.

Pour déterminer le temps réel d'irradiation, les démarches suivantes ont été effectuées pour tous les sites :

- I. En utilisant les résultats du programme EPAA (mais pas dans le but de trouver la masse exacte de l'échantillon, ce qui est déjà connu), nous cherchons le t_i pour la série de mesures avec $t_h = 4s$. En entrant différents temps d'irradiation, nous

comparons les masses calculées par EPAA avec celles obtenues par pesée. De cette façon, nous obtenons le t_i avec lequel EPAA calcule la bonne valeur de masse. Nous calculons la valeur moyenne de t_i pour les 10 capsules et ensuite une estimation de t_I par la formule $t_I = t_h - t_i$

2. Avec cette première estimation de t_I et la série de mesures avec $t_h = 60$ s, nous utilisons EPAA pour calculer des valeurs plus exactes du flux de neutrons. En se basant sur les équations fondamentales d'EPAA (les équations 2.1 et 2.3), nous pouvons réécrire l'équation 2.3 comme suit:

$$\phi = \frac{CONST}{1 - e^{-\lambda_i}} \quad (2.8)$$

Où :

$$CONST = \frac{A \cdot \lambda}{C \cdot W \cdot B \cdot e^{-\lambda_d} \cdot (1 - e^{-\lambda_c})} \quad (2.9)$$

Nous calculons la moyenne des valeurs du flux pour les 10 mesures avec $t_h = 60$ s et nous supposons que le flux moyen est le flux qui prévalait pour les 10 mesures avec $t_h = 4$ s.

3. Avec cette valeur de flux, nous refaisons les calculs EPAA pour les mesures avec $t_h = 4$ s (une deuxième itération) et nous trouvons ainsi les 10 valeurs

finales de t_i , et t_I par $t_I = 4s - t_i$. Nous calculons la valeur moyenne de t_I et l'écart type des valeurs de t_i .

4. Cette valeur moyenne de t_I peut être utilisée pour calculer le vrai t_i pour tout irradiation dans ce même site, peu importe la valeur de t_h programmée au chronomètre : $t_i = t_h - t_I$
5. Cette procédure a été utilisée pour déterminer le vrai t_i pour toutes les séries des échantillons. Dans une série, les échantillons ont la même géométrie et la même masse et sont irradiés dans le même site, 1, 2 ou 8. Le site 6 doit avoir le même t_I que le site 8 parce que, dans les deux cas, on se fie au son fait par la capsule qui arrive au site.

Pour les sites 1 et 2, le temps réel d'irradiation est inférieur à t_h car le chronomètre se met en marche avant que l'échantillon tombe dans le site d'irradiation. Au contraire, pour les sites 6 et 8, ce temps réel d'irradiation est plus élevé que t_h parce que le chronomètre est déclenché par l'opérateur après le début de l'irradiation. Pour vérifier si la différence dans la géométrie des capsules influence le temps t_i , nous avons utilisé les bouchons de différents diamètre : petit diamètre 15 mm, grand diamètre 17 mm. Les tableaux 2.1 à 2.3 montrent les résultats finaux obtenus à partir de nos calculs (pour les t_i moyens).

Série 1 Al - 0.1 (g) site-1 bouchon petit

N ^o	masse - (g)	td - (s)	tc -(s)	ti -(s)	écart	résultat final	
1	0.1001	120	60	2.70	-0.059	masse moyenne (g)	0.1
2	0.1000	120	60	2.64	-0.003		
3	0.1001	120	60	2.59	0.055		
4	0.1000	120	60	2.66	-0.019	ti - moyen (s)	2.64
5	0.1000	120	60	2.62	0.019		
6	0.1000	120	60	2.50	0.137		
7	0.0999	120	60	2.74	-0.099	écart type	0.069
8	0.1000	120	60	2.71	-0.075		
9	0.0999	120	60	2.63	0.006		
10	0.1000	120	60	2.60	0.039	écart type %	2.6%

Série 2 Al - 0.1 (g) site-1 bouchon grand

N ^o	masse - (g)	td - (s)	tc -(s)	ti -(s)	écart	résultat final	
1	0.1001	120	60	2.52	-0.198	masse moyenne (g)	0.1
2	0.1000	120	60	2.23	0.091		
3	0.1001	120	60	2.31	0.013		
4	0.1000	120	60	2.33	-0.012	ti - moyen (s)	2.32
5	0.1000	120	60	2.14	0.180		
6	0.1000	120	60	2.52	-0.196		
7	0.0999	120	60	2.29	0.032	écart type	0.118
8	0.1000	120	60	2.28	0.045		
9	0.0999	120	60	2.33	-0.011		
10	0.1000	120	60	2.26	0.059	écart type %	5.1%

Série 3 Al - 0.1 (g) site-1 bouchon grand

N ^o	masse - (g)	td - (s)	tc -(s)	ti -(s)	écart	résultat final	
1	0.1001	120	60	57.78	0.539	masse moyenne (g)	0.1
2	0.1000	120	60	58.63	-0.309		
3	0.1001	120	60	57.58	0.736		
4	0.1000	120	60	57.64	0.683	ti - moyen (s)	58.32
5	0.1000	120	60	58.66	-0.337		
6	0.1000	120	60	59.52	-1.198		
7	0.0999	120	60	58.58	-0.256	écart type	0.765
8	0.1000	120	60				
9	0.0999	120	60	57.33	0.986		
10	0.1000	120	60	59.16	-0.840	écart type %	1.3%

Tableau 2.1 Résultats pour le t_i dans le site 1

Série 1 Al - 0.1 (g) site-2 bouchon petit

N°	masse - (g)	td - (s)	tc -(s)	ti -(s)	écart	résultat final	
1	0.1001	120	60	3.51	-0.054	masse moyenne (g)	0.1
2	0.1000	120	60	3.44	0.017		
3	0.1001	120	60	3.51	-0.058		
4	0.1000	120	60	3.44	0.014	ti - moyen (s)	3.46
5	0.1000	120	60	3.47	-0.012		
6	0.1000	120	60	3.42	0.036		
7	0.0999	120	60	3.43	0.029	écart type	0.049
8	0.1000	120	60	3.54	-0.081		
9	0.0999	120	60	3.41	0.046		
10	0.1000	120	60	3.40	0.061	écart type %	1.4%

Série 2 Al - 0.1 (g) site-2 bouchon grand

N°	masse - (g)	td - (s)	tc -(s)	ti -(s)	écart	résultat final	
1	0.1001	120	60	3.44	-0.008	masse moyenne (g)	0.1
2	0.1000	120	60	3.49	-0.062		
3	0.1001	120	60	3.44	-0.009		
4	0.1000	120	60	3.49	-0.057	ti - moyen (s)	3.43
5	0.1000	120	60	3.40	0.036		
6	0.1000	120	60	3.43	0.000		
7	0.0999	120	60	3.38	0.052	écart type	0.044
8	0.1000	120	60	3.37	0.063		
9	0.0999	120	60	3.40	0.028		
10	0.1000	120	60	3.47	-0.041	écart type %	1.3%

Série 3 Al - 0.1 (g) site-2 bouchon grand

N°	masse - (g)	td - (s)	tc -(s)	ti -(s)	écart	résultat final	
1	0.1001	120	60	58.90	0.533	masse moyenne (g)	0.1
2	0.1000	120	60	58.44	0.997		
3	0.1001	120	60	59.63	-0.201		
4	0.1000	120	60	59.76	-0.332	ti - moyen (s)	59.43
5	0.1000	120	60	60.21	-0.775		
6	0.1000	120	60	58.99	0.447		
7	0.0999	120	60	59.84	-0.410	écart type	0.688
8	0.1000	120	60	59.02	0.417		
9	0.0999	120	60	60.62	-1.190		
10	0.1000	120	60	58.91	0.518	écart type %	1.2%

Tableau 2.2 Résultats pour le t_i dans le site 2

Série 1 Al - 0.1 (g) site-8 bouchon petit

N ^o	masse - (g)	td - (s)	tc -(s)	ti -(s)	écart	résultat final	
1	0.1001	120	60	4.27	0.051	masse moyenne (g)	0.1
2	0.1000	120	60	4.30	0.018		
3	0.1001	120	60	4.36	-0.038		
4	0.1000	120	60	4.32	-0.004	ti - moyen (s)	4.32
5	0.1000	120	60	4.31	0.012		
6	0.1000	120	60	4.32	0.002		
7	0.0999	120	60	4.32	0.000	écart type	0.027
8	0.1000	120	60	4.34	-0.020		
9	0.0999	120	60	4.30	0.016		
10	0.1000	120	60	4.36	-0.036	écart type %	0.6%

Série 2 Al - 0.1 (g) site-8 bouchon grand

N ^o	masse - (g)	td - (s)	tc -(s)	ti -(s)	écart	résultat final	
1	0.1001	120	60	4.58	-0.240	masse moyenne (g)	0.1
2	0.1000	120	60	4.26	0.085		
3	0.1001	120	60	4.27	0.076		
4	0.1000	120	60	4.33	0.012	ti - moyen (s)	4.34
5	0.1000	120	60	4.30	0.042		
6	0.1000	120	60	4.41	-0.063		
7	0.0999	120	60	4.32	0.025	écart type	0.096
8	0.1000	120	60	4.32	0.021		
9	0.0999	120	60	4.27	0.071		
10	0.1000	120	60	4.37	-0.031	écart type %	2.2%

Série 3 Al - 0.1 (g) site-8 bouchon grand

N ^o	masse - (g)	td - (s)	tc -(s)	ti -(s)	écart	résultat final	
1	0.1001	120	60	60.46	-0.122	masse moyenne (g)	0.1
2	0.1000	120	60	60.34	0.005		
3	0.1001	120	60	61.46	-1.120		
4	0.1000	120	60	60.18	0.157	ti - moyen (s)	60.34
5	0.1000	120	60	60.14	0.201		
6	0.1000	120	60	60.03	0.313		
7	0.0999	120	60	59.62	0.726	écart type	0.602
8	0.1000	120	60	59.71	0.631		
9	0.0999	120	60	61.28	-0.941		
10	0.1000	120	60	60.19	0.151	écart type %	1.0%

Tableau 2.3 Résultats pour le t_i dans le site 8

D'autres expériences où la masse de capsules a été changée, sont effectués pour les sites 1 et 2. Pour ce qui est de la masse, elle a été augmentée par l'addition dans chaque capsule de 5 g. de plomb (Pb). La masse totale de la capsule était avant l'addition du plomb est de 5.7 g. Les résultats finaux obtenus sont présentés dans les tableaux 2.4 et 2.5. Les résultats compilés des tableaux 2.4 – 2.5 sont présentés dans le tableau 2.6.

Série 1 Al - 0.1 (g) site-1 bouchon grand+ 5(g) Pb

N ^o	masse - (g)	td - (s)	tc -(s)	ti -(s)	écart	résultat final	
1	0.1001	120	60	2.77	0.024	masse moyenne (g)	0.1
2	0.1000	120	60	2.80	-0.004		
3	0.1001	120	60	2.82	-0.023		
4	0.1000	120	60	2.82	-0.024	ti - moyen (s)	2.80
5	0.1000	120	60	2.80	-0.001		
6	0.1000	120	60	2.79	0.007		
7	0.0999	120	60	2.76	0.038	écart type	0.022
8	0.1000	120	60	2.80	-0.005		
9	0.0999	120	60	2.83	-0.030		
10	0.1000	120	60	2.78	0.015	écart type %	0.8%

Série 2 Al - 0.1 (g) site-1 bouchon grand

N ^o	masse - (g)	td - (s)	tc -(s)	ti -(s)	écart	résultat final	
1	0.1001	120	60	2.25	0.083	masse moyenne (g)	0.1
2	0.1000	120	60	2.36	-0.025		
3	0.1001	120	60	2.40	-0.065		
4	0.1000	120	60	2.28	0.061	ti - moyen (s)	2.34
5	0.1000	120	60	2.35	-0.012		
6	0.1000	120	60	2.43	-0.096		
7	0.0999	120	60	2.30	0.037	écart type	0.056
8	0.1000	120	60	2.31	0.027		
9	0.0999	120	60	2.31	0.025		
10	0.1000	120	60	2.37	-0.034	écart type %	2.4%

Série 3 Al - 0.1 (g) site-1 bouchon grand

N ^o	masse - (g)	td - (s)	tc -(s)	ti -(s)	écart	résultat final	
1	0.1001	120	60	58.74	-0.405	masse moyenne (g)	0.1
2	0.1000	120	60	58.95	-0.617		
3	0.1001	120	60	58.47	-0.137		
4	0.1000	120	60	58.54	-0.198	ti - moyen (s)	58.34
5	0.1000	120	60	57.88	0.454		
6	0.1000	120	60	58.22	0.121		
7	0.0999	120	60	57.54	0.798	écart type	0.443
8	0.1000	120	60	58.06	0.278		
9	0.0999	120	60	58.18	0.158		
10	0.1000	120	60	58.79	-0.451	écart type %	0.8%

Tableau 2.4 Résultats pour le t_i dans le site 1 avec changement de la masse

Série 1 Al - 0.1 (g) site-2 bouchon grand+ 5(g) Pb

N ^o	masse - (g)	td - (s)	tc -(s)	ti -(s)	écart	résultat final	
1	0.1001	120	60	3.50	0.024	masse moyenne (g)	0.1
2	0.1000	120	60	3.46	0.064		
3	0.1001	120	60	3.51	0.014		
4	0.1000	120	60	3.47	0.054	ti - moyen (s)	3.52
5	0.1000	120	60	3.57	-0.046		
6	0.1000	120	60	3.55	-0.026		
7	0.0999	120	60	3.55	-0.026	écart type	0.038
8	0.1000	120	60	3.53	-0.006		
9	0.0999	120	60	3.54	-0.016		
10	0.1000	120	60	3.56	-0.036	écart type %	1.1%

Série 2 Al - 0.1 (g) site-2 bouchon grand

N ^o	masse - (g)	td - (s)	tc -(s)	ti -(s)	écart	résultat final	
1	0.1001	120	60	3.53	-0.071	masse moyenne (g)	0.1
2	0.1000	120	60	3.50	-0.041		
3	0.1001	120	60	3.46	-0.001		
4	0.1000	120	60	3.49	-0.031	ti - moyen (s)	3.46
5	0.1000	120	60	3.51	-0.051		
6	0.1000	120	60	3.41	0.049		
7	0.0999	120	60	3.49	-0.031	écart type	0.057
8	0.1000	120	60	3.43	0.029		
9	0.0999	120	60	3.43	0.029		
10	0.1000	120	60	3.34	0.119	écart type %	1.7%

Série 3 Al - 0.1 (g) site-2 bouchon grand

N ^o	masse - (g)	td - (s)	tc -(s)	ti -(s)	écart	résultat final	
1	0.1001	120	60	59.88	-0.418	masse moyenne (g)	0.1
2	0.1000	120	60	59.27	0.192		
3	0.1001	120	60	59.52	-0.058		
4	0.1000	120	60	59.03	0.432	ti - moyen (s)	59.46
5	0.1000	120	60	59.38	0.082		
6	0.1000	120	60	59.09	0.372		
7	0.0999	120	60	59.68	-0.218	écart type	0.354
8	0.1000	120	60	60.05	-0.588		
9	0.0999	120	60	59.07	0.392		
10	0.1000	120	60	59.65	-0.188	écart type %	0.6%

Tableau 2.5 Résultats pour le t_i dans le site 2 avec changement de la masse

series avec t_h-4s															series avec t_h-60s				
Bouchon grand										Bouchon petit					Bouchon grand				
sans Pb					avec Pb					sans Pb					sans Pb				
Site	t_l	t_i	$\overline{e}$	$\overline{e}_{\%}$	t_l	t_i	$\overline{e}$	$\overline{e}_{\%}$		t_l	t_i	$\overline{e}$	$\overline{e}_{\%}$		t_l	t_i	$\overline{e}$	$\overline{e}_{\%}$	
1	1.66	2.34	0.056	2.4	1.2	2.8	0.022	0.8		1.36	2.64	0.069	2.6		1.66	58.34	0.443	0.8	
2	0.57	3.43	0.044	1.3	0.48	3.52	0.038	1.1		0.54	3.46	0.049	1.4		0.57	59.43	0.688	1.2	
8	-0.34	4.34	0.096	2.2						-0.32	4.32	0.027	0.6		-0.34	60.34	0.602	1	

$\overline{e}$ écart type
 $\overline{e}_{\%}$ écart type %

Tableau 2.6 Résultats compilés pour le t_i

Il est intéressant de noter que la variation du t_i pour les sites 6 et 8, due à la variation du temps de réaction de l'opérateur, est parfois inférieure à la variation pour les sites 1 et 2 qui utilisent une photocellule.

Les résultats montrent qu'en augmentant le diamètre de capsule, le t_i reste inchangé. Les différences sont de l'ordre de l'erreur statistique. Par contre, avec l'augmentation de la masse, le t_i augmente aussi. En effet, la capsule se déplace plus rapidement vers le site d'irradiation.

Toutes les démarches effectuées nous ont permis de trouver la variation dans le temps réel d'irradiation t_i pour les sites 1 et 2, ainsi que celle qui provient du temps de réaction de l'opérateur – pour les sites 6 et 8. Les valeurs obtenues pour t_i nous serviront de point de départ dans nos futures recherches sur les éléments ayant des sections efficaces élevées pour les neutrons thermiques.

Rappelons cependant que ces valeurs pour les sites 6 et 8 dépendent de la réaction individuelle de l'opérateur et pourront changer en cas de changement d'opérateur. Pour ce qui est des sites 1 et 2, les résultats obtenus seront valides pour une période de quelques années – le temps pendant lequel, par une augmentation de l'usure, la contamination des tubes du site pourrait augmenter considérablement.

Une piste possible d'élimination de la variation de t_i pourra être un déplacement de point de déclenchement de photocellule dans les sites 1 et 2 vers le point exact d'entrée de capsule dans le site d'irradiation. Et cela - avec l'utilisation des fibres optiques. De telle façon, le chronomètre enregistrera le moment exact d'entrée de la capsule. Evidemment, dans ce cas, le t_i sera négligeable, même pour une irradiation de courte durée (3-4 s). Ce système peut être installé dans des sites 6 et 8, ce qui éliminera la variation du t_i avec le temps de réaction de l'opérateur. Nous espérons, que cette idée sera réalisée dans le proche avenir et que les travaux de futurs chercheurs seront considérablement facilités.

2.3.3 Détermination de flux relatif dans les sites 6 et 8 par rapport au site 1

Évidemment, la détermination du flux neutronique dans les sites où nous effectuons nos recherches est de grande importance. La valeur du flux initial est une valeur incontournable pour notre recherche ainsi que dans les calculs avec l'utilisation du logiciel EPAA.

Nous effectuons nos recherches généralement dans les sites 6 et 8. C'est le flux thermique qui nous intéresse pour atteindre le but principal de notre recherche. Le laboratoire ne dispose pas de l'information concernant ces flux dans les sites mentionnés. Par contre, nous connaissons le flux thermique dans le site 1 qui était mesuré expérimentalement quand le réacteur fonctionnant à une puissance environ **10 kW**. La

valeur de ce flux est de $5,59 \cdot 10^{11} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ (G. Kennedy et coll., 2000). La méthodologie appliquée pour obtenir cette valeur est présentée ci dessous.

En 1999, une série d'expériences a été effectuée en vue de définir les constantes d'activation pour les éléments les plus fréquemment utilisés dans l'AAN (G. Kennedy et coll., 2000). Ces constantes ont été calculées en se basant sur les spectres neutroniques des réacteurs SLOWPOKE et MNS, et en appliquant des valeurs k_0 et Q_0 (définies plus loin). Les flux relatifs neutroniques thermiques, épithermiques et de neutrons rapides ont été mesurés dans des sites internes et externes du réacteur SLOWPOKE en appliquant la méthode « bare triple monitor ». Pour l'analyse du flux neutronique thermique, l'équation suivante a été utilisée :

$$\phi_{th} = \frac{A_{std} \cdot \lambda}{m \cdot (1 - e^{-\lambda_i}) \cdot e^{-\lambda_d} \cdot (1 - e^{-\lambda_c}) \cdot B_1 \cdot \varepsilon}$$

Où :

ϕ_{th} est le flux thermique

A_{std} est la surface du pic du standard ;

m est la masse de l'élément du standard (en μg) ;

B_1 est la constante d'activation de l'élément du standard
(pour le site interne ou externe respectivement) ;

ε est l'efficacité du détecteur.

On obtient la constante B_1 à partir de la formule suivante (Kennedy 2000):

$$B_1 = 2,883 \cdot 10^4 k_0 \left(1 + \frac{Q_0(\alpha)}{f} \right)$$

où :

- la valeur $2,883 \cdot 10^4$ est obtenue à partir de l'équation :

$$N_A \frac{\theta_{Au} \sigma_{0,Au} \gamma_{Au}}{M_{Au}} = 2,883 \cdot 10^4$$

- pour un élément autre que Au qui a $k_0 \equiv 1$, le k_0 est calculé comme suit :

$$k_0 = \frac{M_{Au} \theta \sigma_0 \gamma}{M \theta_{Au} \sigma_{0,Au} \gamma_{Au}}$$

- f est le rapport entre les flux thermiques et épithermiques du réacteur de recherche;
- le Q_0 représente le rapport entre l'intégrale de résonance et la section efficace pour les neutrons thermiques (I/σ_0).

Le $Q_0(\alpha)$ est calculé à partir de:

$$Q_0(\alpha) = (Q_0 - 0,429) E_r^{-\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)0,55^\alpha}$$

Pour la méthode « bare triple monitor », les matériels suivants ont été utilisés : un fil *Al-Au* de diamètre de 1 mm qui contient 0,100 % d'*Au* (IRMM –530, Belgium) ainsi que des plaques de *Zr* pur (99,9 %) d'épaisseur 0,125 mm (Alfa, USA). À partir de cette méthode, les paramètres expérimentaux *f* et *α* ont été obtenus.

Pour utiliser les points expérimentaux obtenus de ces deux sites différents sur les mêmes graphiques, nous devons avoir le rapport entre les flux neutroniques dans ces deux sites. Rappelons que le but principal de notre recherche consiste à vérifier expérimentalement l'exactitude de la courbe théorique d'auto absorption pour les éléments ayant de grandes sections efficaces d'absorption pour des neutrons thermiques.

À cette fin, nous avons évidemment besoin du maximum de points expérimentaux réparties le long de la courbe. Le point le plus éloigné sur cette courbe correspondra à la masse la plus élevée de l'élément examiné.

Dans le site 8, on peut irradier les capsules petites et moyennes, tandis que dans le 6 – les capsules petites, moyennes et grandes. Les dernières nous permettront l'utilisation des masses élevées.

Voyons maintenant comment on peut déterminer les flux relatifs thermiques dans des sites 6 et 8 par rapport au site 1.

Rappelons l'équation 1.6 qui nous montre que l'activité d'un échantillon $A(t_i)$ après l'irradiation d'une durée t_i (temps d'irradiation), est :

$$A(t_i) = \frac{N_A \sigma \phi \theta m (1 - e^{-\lambda t_i})}{M_a} \quad (1.6)$$

Pour l'activité produite par le flux thermique on obtient l'expression suivante :

$$A_{th}(t_i) = \frac{N_A \sigma_{th} \phi_{th} \theta m (1 - e^{-\lambda t_i})}{M_a} \quad (2.10)$$

Où :

σ_{th} est la section efficace pour les neutrons thermiques d'élément activé ;

ϕ_{th} est le flux neutronique thermique;

L'activité totale (celle qu'on mesure) inclut aussi l'activité produite par les neutrons épithermiques $A_{tot}(t_i)$ est plus grande que $A_{th}(t_i)$ par le facteur $\left(1 + \frac{Q_0(\alpha)}{f}\right)$ (G.

Kennedy et coll., 2000).

Donc,

$$A_{tot}(t_i) = \frac{N_A \sigma_{th} \phi_{th} \theta m}{M_a} (1 - e^{-\lambda_i}) \left(1 + \frac{Q_0(\alpha)}{f} \right) \quad (2.11)$$

Vue qu'on parle d'irradiation d'un même échantillon dans deux sites différents, nous obtenons :

$$\begin{aligned} A_{tot}(t_i)_1 &= K \cdot \phi_{th,1} \left(1 + \frac{Q_0(\alpha_1)}{f_1} \right) \\ A_{tot}(t_i)_2 &= K \cdot \phi_{th,2} \left(1 + \frac{Q_0(\alpha_2)}{f_2} \right) \end{aligned} \quad (2.12)$$

Où :

$A_{tot}(t_i)_1$ et $A_{tot}(t_i)_2$ sont les activités d'échantillon pour les deux sites, pour un temps d'irradiation t_i ; $\phi_{th,1}$ et $\phi_{th,2}$ sont les flux neutroniques thermiques dans les deux sites; le K représente l'ensemble de tous les autres facteurs puisqu'il s'agit du même échantillon. Alors, nous pouvons écrire :

$$\frac{A_{tot}(t_i)_1 \left(1 + \frac{Q_0(\alpha_2)}{f_2} \right)}{A_{tot}(t_i)_2 \left(1 + \frac{Q_0(\alpha_1)}{f_1} \right)} = \frac{\phi_{th,1}}{\phi_{th,2}} \quad (2.13)$$

D'où, en connaissant le $\phi_{th,1}$ et les $A_{tot}(t_i)_1$, $A_{tot}(t_i)_2$ on trouve le $\phi_{th,2}$:

$$\phi_{th,2} = \phi_{th,1} \frac{A_{tot}(t_i)_2 \left(1 + \frac{Q_0(\alpha_1)}{f_1}\right)}{A_{tot}(t_i)_1 \left(1 + \frac{Q_0(\alpha_2)}{f_2}\right)} \quad (2.14)$$

Dans le cas donné, pour les sites 6 et 8, nous obtenons :

$$\begin{aligned} \phi_{th,6} &= \phi_{th,1} \frac{A_{tot}(t_i)_6 \left(1 + \frac{Q_0(\alpha_1)}{f_1}\right)}{A_{tot}(t_i)_1 \left(1 + \frac{Q_0(\alpha_6)}{f_6}\right)} \\ \phi_{th,8} &= \phi_{th,1} \frac{A_{tot}(t_i)_8 \left(1 + \frac{Q_0(\alpha_1)}{f_1}\right)}{A_{tot}(t_i)_1 \left(1 + \frac{Q_0(\alpha_8)}{f_8}\right)} \end{aligned} \quad (2.15)$$

Pour les mêmes échantillons irradiés pendant un temps t_i .

Sur le plan pratique cependant, nous appliquons l'équation 1.11 (au lieu de 1.6), comme suit :

$$S(t_i, t_d, t_c) = \frac{N_A \sigma \phi \theta m \varepsilon I}{M_a \lambda} (1 - e^{-\lambda_i}) (1 - e^{-\lambda_c}) e^{-\lambda_d} \quad (1.11)$$

Pour la surface de pic en fonction du flux thermique on obtient l'expression suivante :

$$S(t_i, t_d, t_c) = \frac{N_A \sigma_{th} \phi_{th} \theta m \varepsilon I}{M_a \lambda} \left(1 - \frac{Q_0(\alpha)}{f} \right) (1 - e^{-\lambda_i}) (1 - e^{-\lambda_c}) e^{-\lambda_d} \quad (2.16)$$

Nous devons assurer l'utilisation de même détecteur, avec la même position de comptage, ainsi que les mêmes t_i , t_d et t_c pour les mesures effectuées avec les deux sites d'irradiation. De cette façon, nous arrivons vers une équation telle que (2.15) :

$$\begin{aligned} \phi_{th,6} &= \phi_{th,1} \frac{S(t_i, t_d, t_c)_6 \left(1 + \frac{Q_0(\alpha_1)}{f_1} \right)}{S(t_i, t_d, t_c)_1 \left(1 + \frac{Q_0(\alpha_6)}{f_6} \right)} \\ \phi_{th,8} &= \phi_{th,1} \frac{S(t_i, t_d, t_c)_8 \left(1 + \frac{Q_0(\alpha_1)}{f_1} \right)}{S(t_i, t_d, t_c)_1 \left(1 + \frac{Q_0(\alpha_8)}{f_8} \right)} \end{aligned} \quad (2.17)$$

En connaissant déjà le $\phi_{th,1}$, notre tâche se réduit à celle de calculer les deux équations faisant partie de 2.17.

En utilisant les échantillons d'aluminium, nous trouvons les surface des pics pour les sites 1, 6, 8, et par les équations (2.17) les rapports des flux site6/site1 et site8/site1. Après cela, en utilisant la valeur expérimentale de flux pour le site 1 obtenue en 1999, nous

trouvons les valeurs de flux pour les sites 6 et 8. Les constantes suivantes dont le laboratoire SLOWPOKE dispose, ont été utilisées pour calculer les flux neutroniques:

	f	α
Site 1	18.0	-0.51
Site 6	48.6	+0.016
Site 8	52.7	+0.018

	$Q_0(\alpha_1)$	$Q_0(\alpha_6)$	$Q_0(\alpha_8)$
Al	0.917	0.662	0.656
Na	0.707	0.561	0.558
Cl	0.888	0.644	0.638

Tout compte fait, trois séries d'expériences de 10 échantillons d'Al chacun, et pour les sites 1, 6, 8, ont été effectuées. Les temps analogues, le même détecteur ainsi que la même position de comptage ont été utilisés. Ensuite, en utilisant l'EPAA, nous avons calculé le surface du pic pour chaque échantillon examiné et ainsi, par l'équation (2.17) le flux neutronique. Les résultats globaux de mesures effectuées sont présentés dans le tableau 2.7.

Site-6 (21-04-2004)

N°	masse - (g)	td - (s)	tc -(s)	ti -(s)	flux	écart	résultat final	
1	0.1001	900	300	60.34	2.81	0.012	masse moyenne (g)	0.1
2	0.1000	900	300	60.34	2.79	0.022	FLUX - moyen	
3	0.1001	900	300	60.34	2.84	-0.020		
4	0.1000	900	300	60.34	2.83	-0.009		
5	0.1000	900	300	60.34	2.77	0.045	écart type	
6	0.1000	900	300	60.34	2.80	0.018		
7	0.0999	900	300	60.34	2.86	-0.046		
8	0.1000	900	300	60.34	2.85	-0.035	écart type %	
9	0.0999	900	300	60.34	2.81	0.012		
10	0.1000	900	300	60.34	2.82	0.001		

Site-8 (21-04-2004)

N°	masse - (g)	td - (s)	tc -(s)	ti -(s)	flux	écart	résultat final	
1	0.1001	900	300	60.34	2.96	0.024	masse moyenne (g)	0.1
2	0.1000	900	300	60.34	2.96	0.020	FLUX - moyen	
3	0.1001	900	300	60.34	2.99	-0.008		
4	0.1000	900	300	60.34	2.98	0.004		
5	0.1000	900	300	60.34	2.98	-0.001	écart type	
6	0.1000	900	300	60.34	3.00	-0.018		
7	0.0999	900	300	60.34	3.01	-0.025		
8	0.1000	900	300	60.34	2.97	0.007	écart type %	
9	0.0999	900	300	60.34	3.00	-0.020		
10	0.1000	900	300	60.34	2.96	0.018		

Tableau 2.7 Les résultats pour les flux thermiques dans les sites 6 et 8

Site 6 - $2,82 \cdot 10^{11} \text{ n/cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$

Site 8 - $2,98 \cdot 10^{11} \text{ n/cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$

Ces valeurs sont utilisées dans nos recherches expérimentales.

2.3.4 Auto protection de neutrons thermiques : méthodologie expérimentale

Dans cette partie, nous allons expliquer la méthodologie utilisée pendant notre recherche. Un grand nombre d'essais ont été effectués avant d'arriver à la méthodologie que nous avons estimée comme la plus convenable pour arriver à notre but principal. Les principes de base que nous avons appliqués dans cette méthodologie sont les suivants :

- Simplification de toutes les opérations pour réduire la possibilité d'erreurs.
- Les mêmes procédures pour toutes les expériences (dans le but d'unification).
- Les mêmes conditions de comptage dans le but d'éviter d'avoir à faire des corrections.
- Utilisation d'un même détecteur pour tous les échantillons.

2.3.4.1 Préparation des échantillons de NaCl

Deux types d'échantillons se préparent dans les petites capsules :

- **Les échantillons liquides.** On prépare ces échantillons en petites quantités et en une très petite concentration de la substance active (*NaCl*). Le *NaCl* se dilue en

eau distillée. On sait que l'auto absorption est inférieure à **0.1%** pour des concentration de **Cl** inférieure à **1 mg/mL**. C'est le point de départ pour nos mesures, des points de référence. On prépare à cette fin une solution de **NaCl** ayant la concentration nécessaire mais toujours inférieure à **20% (200 mg/mL)**. Les essais ont montré qu'avec une concentration de **26%** et une température de **20°C** on observe de la cristallisation. La cristallisation est indésirable parce que l'échantillon n'est alors pas homogène. Toutes les solutions avaient une concentration inférieure à **20%**. On a préparé des échantillons de **1 mL** et de **0,5 mL**. Les capsules sont scellées à l'aide d'une spatule en acier chauffée par un bec Bunsen. Après avoir été scellées et refroidies, les capsules sont examinées pour leur étanchéité (en appliquant la pression). Si l'échantillon est hermétiquement fermé il est placé dans une capsule grande ou moyenne selon le site d'irradiation. Le temps normal d'irradiation est de 60 s. Dans les capsules à solution il n'est pas nécessaire de mettre des bouchons de bois parce que le liquide en position verticale de la capsule prend la forme cylindrique. À l'aide d'un système pneumatique, les échantillons sont envoyés dans le site du réacteur où ils doivent être irradiés. Après l'irradiation, les échantillons sont de nouveau vérifiés pour leur étanchéité. Dans plusieurs cas, un peu de solution a coulé à cause du contact physique de la capsule avec le réacteur lors de son passage vers le site d'irradiation, ou lors de l'arrivée dans le château de plomb après l'irradiation. Si c'est le cas, l'échantillon est alors hors d'état et on irradie un nouvel échantillon. Seul un échantillon qui est absolument conservé peut être mesuré. Les

échantillons sont comptés à 10 cm du détecteur (position 3). Le temps de comptage est de 300 s normalement. À cause de la faible densité de l'échantillon et de l'énergie élevée des rayons gamma, l'atténuation des rayons gamma est négligeable.

- **Échantillons secs.** Avec ce type d'échantillons on irradie le NaCl sec (en poudre). La capsule est remplie d'une quantité prévue de poudre qu'on pèse sur la balance avec la capsule. On comprime la poudre à l'aide d'un piston cylindrique. Après avoir bien pressé l'échantillon, on le pèse de nouveau pour vérifier s'il n'y a pas des pertes de poudre. On mesure la hauteur du cylindre de la poudre pressée, on met le bouchon en bois et on presse de nouveau. Par la suite, on scelle la capsule, on vérifie l'étanchéité de la capsule et on la met dans une capsule grande ou moyenne pour qu'elle soit prête à être irradiée. La procédure d'irradiation est comme celle décrite si-haut. Après l'irradiation, la capsule est laissée un certain temps dans le château de plomb pour que la radioactivité baisse. Après le temps de décroissance nécessaire, la capsule est ouverte et la poudre est versée dans un grand récipient. On mesure la masse de la poudre. D'habitude, il y a de petites pertes sur la surface de la capsule et du bouchon. A l'aide d'eau distillée, on prépare une solution de NaCl. La concentration de la solution peut être jusqu'à 20%. Avec la solution préparée ainsi et bien mélangée on remplit une petite capsule (1 mL approximativement). On mesure la masse de la solution et à la base de cette mesure on définit le facteur par lequel on doit multiplier le résultat de la

mesure pour tenir compte de la masse de tout l'échantillon, on peut le voir dans le Tableau 2.8 colonne (coef.). Cette procédure nous épargne les calculs qu'il faudrait faire pour chaque échantillon pour corriger l'efficacité du détecteur et l'atténuation des rayons γ dans le cas d'échantillons de densité et de dimensions variables. En utilisant cette méthode on peut résoudre aussi le problème de l'homogénéité de l'échantillon. On a constaté que l'échantillon est activé de manière inégale selon quel côté de l'échantillon est tourné vers le réacteur. Pour obtenir des résultats corrects, il aurait fallu que chaque échantillon soit mesuré deux fois, en tournant l'échantillon à 180° . La dissolution de toute la quantité de substance irradiée assure l'homogénéisation complète. A l'aide de cette méthode, l'exactitude de nos mesures s'est améliorée. Enfin, on scelle l'échantillon et on vérifie l'étanchéité.

2.3.4.2 Comptage

Le comptage des échantillons s'effectue en utilisant le détecteur semi-conducteur. Avant de mesurer l'activité d'un échantillon, on calcule le pourcentage de volume de la solution expérimentale dans la capsule et la valeur obtenue s'utilise dans le programme de comptage.

Nous plaçons les capsules ainsi préparées dans le détecteur C, en position de comptage 3. Pour tous les échantillons, le temps mort du détecteur varie entre 10% et 20%, et le temps de comptage est de 300 s.

2.3.4.3 Traitement électronique des échantillons avec EPAA

Les spectres de chaque échantillon sont enregistrés sur une disquette et ensuite, EPAA est utilisé pour calculer la quantité de Na, en utilisant la surface du pic à 1368 keV. Le rapport entre la quantité de Na trouvée ainsi et la quantité déterminée par la pesée est une mesure de l'auto absorption des neutrons.

2.3.4.4 Équations décrivant la courbe théorique

Nos recherches, comme cela était souligné dans le chapitre I, étaient inspirées par les recherches de Gonçalves et coll. Nous avons pour objectif l'application de leur courbe universelle dans l'AAN. Rappelons qu'en irradiant le *NaCl*, moins de 96% de l'activité produite est causée par des neutrons thermiques et plus de 4% - par des neutrons épithermiques. Dans les sites d'irradiation 6 et 8 le flux neutronique est plus thermalisé, et seulement 1% de l'activité obtenue est produite par les neutrons épithermiques. À

cause de cela, nous avons pu négliger les neutrons épithermiques et travailler avec l'approximation que toute l'activité mesurée est produite par les neutrons thermiques.

Le sigmoïde de Gonçalves et col. est décrit par l'expression suivante :

$$G_{th}(z) = \frac{A_1 - A_2}{1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^p} + A_2$$

où A_1, A_2, p, z_0 sont des paramètres qui servent à ajuster le sigmoïde. Pour des neutrons thermiques ils ont les valeurs suivantes : $A_1=1$; $A_2 = 0$; $z_0 = 0,597 \pm 0,005$; $p = 0,964 \pm 0,008$ (Gonçalves et coll.). Nous avons simplifié la formule comme suit:

$$G_{th}(Z) = \frac{1}{1 + Z^p} \quad (2.17)$$

où : $Z = \frac{z}{z_0} = k z, \quad k = \frac{1}{z_0}.$

Quant au z , les recherches de Gonçalves et coll. pour les neutrons thermiques sont faites seulement en utilisant des plaques. Donc, ils ne proposent pas une formule pour z , pour les échantillons cylindriques ayant des grandes sections efficaces d'absorption pour les neutrons thermiques. Mais, dans leur article *Extension to cylindrical samples of the universal curve of resonance neutron self-shielding factors* (Nuclear Instruments and

Methods in Physics Research, 2004), pour les échantillons cylindriques irradiés dans un flux de réacteur de référence, nous trouvons l'expression suivante pour z :

$$z = \Sigma_{tot}(E_{res}) \cdot y \cdot \sqrt{\frac{F_r}{F}}$$

où $[\Sigma_{tot}(E_{res})]$ est la section efficace macroscopique de résonance totale;

$y = 1,65 \frac{Rh}{R+h}$ est le facteur géométrique pour les échantillons cylindriques;

Le facteur $\sqrt{\frac{F_r}{F}}$ concerne une résonance isolée pour le nucléide correspondant;

Nous pourrions prendre de cette formule les facteurs qui s'appliquent à nos besoins, effectivement pour les échantillons cylindriques comportant des éléments ayant des grandes sections efficaces d'absorption pour les neutrons thermiques.

En première place, nous avons éliminé le facteur $\sqrt{\frac{F_r}{F}}$ puisqu'il s'agit des neutrons thermiques où on n'observe pas de résonance. Après, nous avons changé $[\Sigma_{tot}(E_{res})]$ (la section efficace de résonance), avec la section efficace d'élément correspondant à des neutrons thermiques $[\Sigma_{th}(E_{th})]$. Quant au facteur géométrique, nous n'avons gardé

que $Y = \frac{RH}{R+H}$. Dans ce cas, la formule pour Z se transforme en :

$$Z = k \cdot \Sigma_{th} \cdot Y$$

$$Z = k \cdot \frac{\sigma_{th} \cdot N_A m}{\pi R^2 H \cdot M_a} \cdot \frac{RH}{R + H} \quad (2.18)$$

Où σ_{th} est la section efficace microscopique d'absorption pour l'élément en question;

Le facteur k doit être déterminé expérimentalement.

Si on regroupe les éléments de l'équation (2.18), on obtient l'expression suivante :

$$Z = \left[\frac{k \cdot \sigma \cdot N_A}{\pi \cdot M_a} \right] \cdot m \cdot \left[\frac{RH}{R + H} \cdot \frac{1}{R^2 H} \right] \Rightarrow$$

$$Z = \overbrace{\left[\frac{k \cdot \sigma \cdot N_A}{\pi \cdot M_a} \right]}^K \cdot m \cdot \overbrace{\left[\frac{1}{R^2 + RH} \right]}^Y \quad (2.19)$$

Enfin, la formule initiale avec laquelle nous avons commencé nos recherches a pris la forme suivante :

$$G_{th} = \frac{1}{1 + Z^p} \quad (2.20)$$

Où : $Z = K \cdot Y \cdot m$ et $Y = \frac{1}{R^2 + RH}$

- p*** constante qui détermine la courbure du sigmoïde (Dans leurs publications, Gonçalves et all. proposent les valeurs variant de 0,96 à 1,05, nous allons vérifier quel est la bonne valeur);
- K*** constante englobant toutes les autres constantes, et ayant une valeur spécifique pour chaque élément (sa valeur se détermine d'une façon expérimentale). La valeur de ***K*** varie d'un élément à un autre selon σ_{th} / M_a ;
- m*** masse de l'élément irradié;
- H*** hauteur de l'échantillon cylindrique;
- R*** rayon de l'échantillon cylindrique.

2.3.4.5 Traitement des données avec les tableaux électroniques en Excel

Les tableaux électroniques de calcul étaient créés sur Excel spécialement pour nos études et sont mutuellement liés de sorte que les résultats d'un tableau s'affichent automatiquement dans l'autre et cela se répète jusqu'à ce qu'on obtienne les graphiques finaux. Sur les graphiques on peut observer la courbe théorique (sigmoïde) qui résulte des équations (2.19) et plus tard (2.20) ainsi que les résultats expérimentaux obtenus. Dans la description ci - dessous sont présentées les dernières versions de ces tableaux. En variant les constantes dans le dernier tableau, nous pouvons changer la forme et le déclin de notre courbe et de cette manière nous pouvons l'ajuster de façon à ce qu'elles correspondent à

des résultats expérimentaux et d'obtenir de vraies constantes. Les opérations qu'on fait dans les tableaux peuvent être systématisés comme suit :

1. **Tableau – protocole.** Ce tableau représente tout simplement l'introduction de toutes les données des expériences effectuées en série: nom de l'échantillon, date de l'irradiation, site de l'irradiation, temps de l'irradiation, temps de décroissance, mesure, type de capsule, hauteur de capsule, résultat des calculs effectuées par le programme EPAA pour l'échantillon correspondant, coefficient de correction (ce coefficient était mentionné plus – haut, voir le tableau 2.8). La dernière colonne (Na μ g.) est calculée en multipliant le résultat d'EPAA (EPAA res) par le facteur (coef) qui est le rapport entre l'échantillon au complet et la partie qui a été comptée. Toutes les données de ce tableau qui sont nécessaires pour les calculs suivants se transfèrent dans le tableau général (voir la partie qui suit).

N°1	nom	date		ti (s)	td (s)	masse		irad.	H cm	P-t P-t	M-e M-e	G-d G-d	date mm	tc (s)	coef K	EPAA res		EPAA Na (µg)	
		jj	aaaa			ech.(g)	NaCl (g)									site 6	site 1		Na
	S1PPEN1	8	3	2005	58.34	85392	0.163	0.163	1	0.16	1		9	3	2005	300	1.539462	36990.35	56945.2272
	S1PPEN2	8	3	2005	58.34	85860	0.21	0.21	1	0.21	1		9	3	2005	300	2.276071	31562.54	71838.59493
	S1PPEN3	8	3	2005	58.34	86396	0.316	0.316	1	0.31	1		9	3	2005	300	1.415679	73702.29	104338.7544
	S1PPEN4	8	3	2005	58.34	86821	0.408	0.408	1	0.41	1		9	3	2005	300	1.971856	66693.48	131509.9489
	S1PPEN5	8	3	2005	58.34	87134	0.482	0.482	1	0.48	1		9	3	2005	300	2.153492	71371.45	153697.8166
	S1PPEN6	8	3	2005	58.34	87478	0.551	0.551	1	0.55	1		9	3	2005	300	2.602535	66720.34	173641.9898
	S1PPEN7	8	3	2005	58.34	87808	0.648	0.648	1	0.65	1		9	3	2005	300	3.012579	67180.75	202387.2869
	S1PPEN8	8	3	2005	58.34	88406	0.731	0.731	1	0.73	1		9	3	2005	300	3.278888	67650.3	221817.7517
	S1PPEN9	8	3	2005	58.34	88663	0.807	0.807	1	0.8	1		9	3	2005	300	3.702884	66257.96	245345.5178
	S1PPEN10	8	3	2005	58.34	88915	0.897	0.897	1	0.89	1		9	3	2005	300	4.27166	62363.56	266395.9402

N°2	date		ti (s)	td (s)	masse		irad.	H cm	P-t P-t	M-e M-e	G-d G-d	date		tc (s)	coef K	EPAA res		EPAA Na (µg)
	jj	mm			aaaa	jj						mm	aaaa			Na	Na	
S1PPEN11	28	2	2005	58.34	85744	0.983	0.983	1	0.98	1	1	1	3	2005	300	4.370337	67171.07	293560.2446
S1PPEN12	28	2	2005	58.34	86199	1.085	1.085	1	1.08	1	1	1	3	2005	300	4.839159	66369.55	321172.7849
S1PPEN13	28	2	2005	58.34	86504	1.145	1.145	1	1.14	1	1	1	3	2005	300	5.043684	68706.32	336445.5662
S1PPEN14	28	2	2005	58.34	86809	1.231	1.231	1	1.23	1	1	1	3	2005	300	5.385176	66087.09	355890.6314
S1PPEN15	28	2	2005	58.34	87154	1.312	1.312	1	1.31	1	1	1	3	2005	300	5.853509	65464.96	383199.7176
S1PPEN16	28	2	2005	58.34	87577	1.358	1.358	1	1.35	1	1	1	3	2005	300	5.997699	65206.45	391088.6725
S1PPEN17	28	2	2005	58.34	87917	1.478	1.478	1	1.47	1	1	1	3	2005	300	6.416988	66553.61	427073.7059
S1PPEN18	28	2	2005	58.34	88234	1.562	1.562	1	1.56	1	1	1	3	2005	300	6.937016	64490.4	447370.9071
S1PPEN19	28	2	2005	58.34	88621	1.647	1.647	1	1.64	1	1	1	3	2005	300	7.342538	63763.84	468188.434
S1PPEN20	28	2	2005	58.34	89013	1.664	1.664	1	1.66	1	1	1	3	2005	300	7.400184	63676.72	471219.4307

N°2	nom	date		ti (s)	td (s)	masse		irad. site 6	H cm	P-t P-t	M-e M-e	G-d G-d	date		tc (s)	coef K	EPAA res Na	EPAA Na (µg)
		jj	mm			aaaa	jj						mm	aaaa				
	S1MPEN21	9	2	2005	58.34	85364	0.353	1	0.16	1	1	10	2	2005	300	1.60826	73611.55	118386.5441
	S1MPEN22	9	2	2005	58.34	86049	0.916	1	0.42	1	1	10	2	2005	300	4.017506	69455.02	279035.9315
	S1MPEN23	9	2	2005	58.34	86759	1.692	1	0.78	1	1	10	2	2005	300	7.644415	61685.09	471546.4281
	S1MPEN24	9	2	2005	58.34	87100	2.37	1	0.94	1	1	10	2	2005	300	14.41061	45078.76	649612.3862
	S1MPEN25	9	2	2005	58.34	87479	2.694	1	1.23	1	1	10	2	2005	300	12.16242	58179.93	707608.682
	S1MPEN26	9	2	2005	58.34	87849	3.163	1	1.46	1	1	10	2	2005	300	13.90661	59520.27	827725.1759
	S1MPEN27	9	2	2005	58.34	88219	3.454	1	1.6	1	1	10	2	2005	300	15.90986	55440.58	882052.061
	S1MPEN28	9	2	2005	58.34	88674	4.285	1	1.98	1	1	10	2	2005	300	18.76532	57536.05	1079682.502
	S1MPEN29	9	2	2005	58.34	89129	4.747	1	2.2	1	1	10	2	2005	300	20.5912	56586.78	1165189.722
	S1MPEN30	9	2	2005	58.34	89439	5.41	1	2.5	1	1	10	2	2005	300	24.03678	55006.21	1322172.439

Tableau 2.8 Tableau – protocole

2. **Tableau général.** Ce tableau est divisé en plusieurs parties et toutes les données de base sont celles du tableau précédant : le premier secteur « *Irradiation* » comporte l'information des conditions d'irradiation. Le deuxième secteur « *Géométrie* » comporte l'information pour la géométrie de capsule et aussi pour le site d'irradiation. Sur la base de cette information, dans les colonnes finales du secteur le facteur géométrique Y est calculé et mentionné ci - dessous. Le secteur suivant porte le nom « *Mesure* » et contient de l'information concernant les conditions de mesure ainsi qu'une colonne « *Correction du comptage* ». Cette colonne perd pratiquement son sens après l'introduction de la méthodologie décrite dans la partie 2.3.4.1 (voir Échantillons secs). Malgré cela, cette colonne était gardée dans le but de rendre le tableau plus souple. Le dernier secteur « *Résultats finaux* » est destiné aux calculs finaux. Premièrement, les résultats obtenus d'EPAA en microgrammes se transforment en grammes. Ce résultat est divisé par la valeur mesurée avec la balance. De cette manière on obtient un rapport, qui représenté l'écart entre la valeur obtenue d'AAN et celle mesurée préalablement avec la balance. Cet écart est dû à l'effet d'auto protection (voir le tableau 2.9).

Tableau 2.9 Tableau général

Irradiation										géométrie										comtage				Résultats finaux					
N°1	date	fi	td	masse (g)				Site de l-n		H	p	m	G	k-v2	R	Rs	Y1	Y2	Y=Y1*Y2	const.	cor.c.	date	tc	Résultat d'EPAA		Na	cor. c.		
nom	mm	aaaa	(s)	(s)	ech.	NaCl	Na	Cl	6	1	F	cm	E	G	cm	cm	const.	const.	const.	const.	const.	mm	mm	µg	µg	EPAA/The	Na		
SIPPEN1	8	3	2005	58.34	85392	0.163	0.064	0.0988	0	1	5.06	0.16	1	0	0.5	0.47	1.1113	3.393	4.2984882	1	9	3	2005	300	58845.272	0.058452	0.86619	0.822401	
SIPPEN2	8	3	2005	58.34	85960	0.21	0.083	0.1273	0	1	5.06	0.21	1	0	0.5	0.47	1.1113	3.143	3.9827801	1	9	3	2005	300	71838.5949	0.0718386	0.868465	0.8736763	
SIPPEN3	8	3	2005	58.34	86366	0.316	0.124	0.1915	0	1	5.06	0.31	1	0	0.5	0.47	1.1113	2.739	3.4713659	1	9	3	2005	300	104338.754	0.1043388	0.81832	0.8432776	
SIPPEN4	8	3	2005	58.34	86821	0.408	0.161	0.2473	0	1	5.06	0.41	1	0	0.5	0.47	1.1113	2.427	3.0763439	1	9	3	2005	300	131509.949	0.1315099	0.83248	0.8632098	
SIPPEN5	8	3	2005	58.34	87134	0.482	0.19	0.2921	0	1	5.06	0.48	1	0	0.5	0.47	1.1113	2.248	2.8493781	1	9	3	2005	300	153607.817	0.1536078	0.805533	0.8143604	
SIPPEN6	8	3	2005	58.34	87478	0.551	0.217	0.334	0	1	5.06	0.55	1	0	0.5	0.47	1.1113	2.094	2.6536941	1	9	3	2005	300	173641.99	0.173642	0.80005	0.8446504	
SIPPEN7	8	3	2005	58.34	87806	0.648	0.255	0.3928	0	1	5.06	0.65	1	0	0.5	0.47	1.1113	1.907	2.4164072	1	9	3	2005	300	202387.287	0.2023873	0.792907	0.8316544	
SIPPEN8	8	3	2005	58.34	88408	0.731	0.288	0.4431	0	1	5.06	0.73	1	0	0.5	0.47	1.1113	1.779	2.2551491	1	9	3	2005	300	221817.752	0.2218178	0.770359	0.8149808	
SIPPEN9	8	3	2005	58.34	88863	0.807	0.318	0.4891	0	1	5.06	0.8	1	0	0.5	0.47	1.1113	1.681	2.1307298	1	9	3	2005	300	246345.618	0.2463455	0.771825	0.7764658	
SIPPEN10	8	3	2005	58.34	89018	0.897	0.353	0.5437	0	1	5.06	0.89	1	0	0.5	0.47	1.1113	1.57	1.985988	1	9	3	2005	300	266395.94	0.2663959	0.753962	0.7684853	
Irradiation										géométrie										comtage				Résultats finaux					
N°2	date	fi	td	masse (g)				Site de l-n		H	p	m	G	k-v2	R	Rs	Y1	Y2	Y=Y1*Y2	const.	cor.c.	date	tc	Résultat d'EPAA		Na	cor. c.		
nom	mm	aaaa	(s)	(s)	ech.	NaCl	Na	Cl	6	1	F	cm	E	G	cm	cm	const.	const.	const.	const.	const.	mm	mm	µg	µg	EPAA/The	Na		
SIPPEN11	28	2	2005	58.34	85744	0.983	0.387	0.9558	0	1	5.06	0.98	1	0	0.5	0.47	1.1113	1.472	1.8660023	1	1	3	2005	300	283560.245	0.2835602	0.758155	0.7627035	
SIPPEN12	28	2	2005	58.34	86198	1.085	0.451	0.9576	0	1	5.06	1.08	1	0	0.5	0.47	1.1113	1.377	1.74552	1	1	3	2005	300	321172.785	0.3211728	0.75149	0.7559986	
SIPPEN13	28	2	2005	58.34	86504	1.145	0.461	0.994	0	1	5.06	1.14	1	0	0.5	0.47	1.1113	1.326	1.6804202	1	1	3	2005	300	336445.566	0.3364456	0.745973	0.750494	
SIPPEN14	28	2	2005	58.34	86808	1.231	0.485	0.7461	0	1	5.06	1.23	1	0	0.5	0.47	1.1113	1.258	1.5913928	1	1	3	2005	300	356890.631	0.3568906	0.73896	0.7363964	
SIPPEN15	28	2	2005	58.34	87154	1.312	0.517	0.7952	0	1	5.06	1.31	1	0	0.5	0.47	1.1113	1.199	1.5198203	1	1	3	2005	300	383189.718	0.3831897	0.74149	0.7459391	
SIPPEN16	28	2	2005	58.34	87577	1.368	0.535	0.8231	0	1	5.06	1.35	1	0	0.5	0.47	1.1113	1.173	1.4863963	1	1	3	2005	300	391088.672	0.3910887	0.731121	0.7355081	
SIPPEN17	28	2	2005	58.34	87917	1.478	0.582	0.8858	0	1	5.06	1.47	1	0	0.5	0.47	1.1113	1.1	1.3943953	1	1	3	2005	300	427073.706	0.4270737	0.733571	0.7379729	
SIPPEN18	28	2	2005	58.34	88234	1.562	0.615	0.9467	0	1	5.06	1.56	1	0	0.5	0.47	1.1113	1.051	1.2673	1.3325378	1	1	3	2005	300	447370.907	0.4473709	0.727111	0.7314737
SIPPEN19	28	2	2005	58.34	88621	1.647	0.649	0.9982	0	1	5.06	1.64	1	0	0.5	0.47	1.1113	1.012	1.2673	1.2819856	1	1	3	2005	300	468188.434	0.4681884	0.721674	0.7260041
SIPPEN20	28	2	2005	58.34	89013	1.664	0.655	1.0086	0	1	5.06	1.66	1	0	0.5	0.47	1.1113	1.002	1.2673	1.2699412	1	1	3	2005	300	471219.431	0.4712194	0.718925	0.7232391
Irradiation										géométrie										comtage				Résultats finaux					
N°3	date	fi	td	masse (g)				Site de l-n		H	p	m	G	k-v2	R	Rs	Y1	Y2	Y=Y1*Y2	const.	cor.c.	date	tc	Résultat d'EPAA		Na	cor. c.		
nom	mm	aaaa	(s)	(s)	ech.	NaCl	Na	Cl	6	1	F	cm	E	G	cm	cm	const.	const.	const.	const.	const.	mm	mm	µg	µg	EPAA/The	Na		
SIMPEN21	9	2	2005	58.34	85304	0.353	0.139	0.214	0	1	5.06	0.16	0	1	0.5	0.72	1.1113	1.574	1.4802	2.3300245	1	10	2	2005	300	118385.544	0.1183865	0.851415	0.8854723
SIMPEN22	9	2	2005	58.34	86048	0.916	0.361	0.5552	0	1	5.06	0.42	0	1	0.5	0.72	1.1113	1.215	1.4802	1.799107	1	10	2	2005	300	279035.931	0.2790359	0.773355	0.7810982
SIMPEN23	9	2	2005	58.34	86758	1.692	0.696	1.0255	0	1	5.06	0.78	0	1	0.5	0.72	1.1113	0.924	1.3676249	1	10	2	2005	300	471546.426	0.4715464	0.707519	0.707519	
SIMPEN24	9	2	2005	58.34	87100	2.37	0.934	1.4085	0	1	5.06	0.94	0	1	0.5	0.72	1.1113	0.835	1.4802	1.2358894	1	10	2	2005	300	649512.386	0.6495124	0.695857	0.6819398
SIMPEN25	9	2	2005	58.34	87479	2.694	1.061	1.6328	0	1	5.06	1.23	0	1	0.5	0.72	1.1113	0.711	1.4802	1.0521899	1	10	2	2005	300	707608.682	0.7076087	0.666821	0.6819398
SIMPEN26	9	2	2005	58.34	87849	3.163	1.246	1.9171	0	1	5.06	1.46	0	1	0.5	0.72	1.1113	0.536	1.4802	0.8412328	1	10	2	2005	300	827725.178	0.8277252	0.664356	0.6643562
SIMPEN27	9	2	2005	58.34	88218	3.454	1.361	2.0935	0	1	5.06	1.6	0	1	0.5	0.72	1.1113	0.398	1.4802	0.8944601	1	10	2	2005	300	882052.061	0.8820521	0.648315	0.6483148
SIMPEN28	9	2	2005	58.34	88674	4.285	1.688	2.5971	0	1	5.06	1.98	0	1	0.5	0.72	1.1113	0.313	1.4802	0.7603292	1	10	2	2005	300	1079882.5	1.0798825	0.639675	0.6396748
SIMPEN29	9	2	2005	58.34	89128	4.747	1.87	2.8772	0	1	5.06	2.2	0	1	0.5	0.72	1.1113	0.475	1.4802	0.7027874	1	10	2	2005	300	1165189.72	1.1651897	0.623148	0.6231483
SIMPEN30	9	2	2005	58.34	89438	5.41	2.131	3.279	0	1	5.06	2.5	0	1	0.5	0.72	1.1113	0.431	1.4802	0.6373318	1	10	2	2005	300	1322172.44	1.3221724	0.620447	0.6204472

3. **Tableau - plot.** C'est le tableau électronique qui sert pour créer des graphiques.

À l'aide de ce tableau sont calculés les points de la courbe théorique, sur la base des formules qui seront présentées ci - dessous. Dans ce tableau sont aussi indiquées les données du tableau électronique précédant (les valeurs expérimentales qui correspondent à une masse déterminée du Cl). Dans les deux dernières colonnes du tableau sont calculés les valeurs de Z qui représente une valeur correspondante à la masse de l'élément ayant une grande section efficace d'absorption et à la géométrie de l'échantillon. Le G est le coefficient d'auto protection. Ces valeurs sont indiquées sur l'abscisse (Z) et l'ordonnée (G) et déterminent la courbe théorique. Théoriquement, le G peut varier de 0 à 1 et les valeurs de Z varient de 0 à ∞ . Sur le plan pratique cependant, en ayant en vue les capacités de nos sites d'irradiation, le Z pour les ponts expérimentaux ne dépasse pas 1. La courbe théorique contient les valeurs jusqu'aux $Z = 1,35$; $G = 0,42$ (voir tableau 3.10). A côté des colonnes Z et G sont indiquées les résultats expérimentaux. Leur Z est calculé sur la base des données dont on dispose pour chaque échantillon : la masse, la géométrie et la valeur expérimentale de G , lesquelles sont calculées par le tableau général. La colonne **P-t** représente les valeurs expérimentales de G pour les petites capsules, la colonne **M-n** - pour les capsules moyennes, et la colonne **G-d** - pour les grandes capsules. Sur les graphiques, les petites capsules sont représentées par les points en rouge, les moyennes par les points en vert et les grandes par les points en bleu.

Chapitre III

Résultats et discussion

3.1 Résultats

Dans ce chapitre, seront présentés les résultats de nos recherches sur l'auto protection de neutrons thermiques. On fera une analyse de ces résultats et on discutera les phénomènes observés. Enfin, nous proposerons un modèle pour décrire les nouveaux phénomènes observés.

3.1.1 Détermination de la relation entre le facteur d'auto protection et la masse de l'élément absorbeur

Comme il était déjà mentionné dans le Chapitre II du présent ouvrage, la formule théorique pour G_{th} est la suivante :

$$G_{th} = \frac{1}{1 + Z^p} \quad (2.1)$$

où : $Z = K \cdot Y \cdot m$ et $Y = \frac{1}{R^2 + RH}$

R et H sont le rayon et la hauteur de l'échantillon cylindrique.

Rappelons les objectifs liés à l'application de cette formule :

- De vérifier si l'équation proposée décrit correctement le phénomène de l'auto protection pour les échantillons cylindriques irradiés dans le flux neutronique du réacteur SLOWPOKE ;
- De vérifier la valeur de l'exposant p , défini au début par Gonçalves et col. comme $p = 0.964$;
- De déterminer la valeur de la constante K ;
- Si la formule indiquée ci-dessus ne décrit pas correctement le phénomène, de proposer de nouvelles formules.

En particulier, il fallait vérifier si l'équation décrit bien la variation de G_{th} avec la géométrie.

Le vrai travail expérimental a débuté en février 2004. On a irradié deux séries de 10 petites capsules dans le site 8 du réacteur SLOWPOKE. Dans l'une de ces séries, la masse de NaCl est restée constante et ce n'est que la dimension H des échantillons qui a

été changée. On a utilisé du sucre pour la dilution des échantillons. Dans l'autre série, la géométrie est conservée, mais la masse de la substance active NaCl a été changée. À la fin février 2004, nous avons déjà eu de premiers résultats encourageants.

Les points expérimentaux sont obtenus à l'aide de l'équation suivante: $G_{th} = \frac{C_{EPAA}}{C_{mesuré}}$. Le

G_{th} est présenté sur l'ordonnée de nos graphiques. Les valeurs de Z calculées comme

suit: $Z = K \cdot Y \cdot m$, sont présentées sur l'abscisse. Évidemment, si $Y = \frac{1}{(R^2 + RH)}$ est

une constante, Z dépend seulement de la masse de l'élément absorbeur – le Cl dans notre cas. Cependant, Y dépend de la géométrie d'échantillon c'est pourquoi, pour chaque échantillon nous calculons d'abord Y et après Z . De cette manière, en calculant G_{th} et Z , nous obtenons nos points expérimentaux. Nous les comparons par la suite avec la courbe obtenue de la formule théorique pour G_{th} .

Par la suite, nous avons continué avec d'autres séries en utilisant les trois types de capsules : petites, moyennes et grandes. On a irradié aussi des échantillons en état liquide avec une très petite concentration de la substance active de NaCl. Ces échantillons devaient nous aider à ajuster le début de notre courbe, ayant en vue qu'en concentration si petites, l'effet d'auto absorption est si faible qu'il tend vers 0, le facteur G_{th} tend vers 1. Ainsi, les résultats obtenus par rapport à la masse à l'aide de l'AAN ainsi que les valeurs mesurées de la masse à l'aide de la balance analytique doivent presque coïncider.

Les mesures nous ont amené a choisir les valeurs de p et de K , suivantes: $p = 0,964$ (fixe); $K = 0,42$ (variable). Au début de nos recherches, nous avons utilisé la valeur de p proposée par Gonçalves et al. ($p = 0,964$), mais, après avoir fait nos calculs en utilisant le méthode des moindres carrés, nous avons trouvé la valeur de $p = 1$.

La Figure 3.1 est obtenue (en échelle logarithmique).

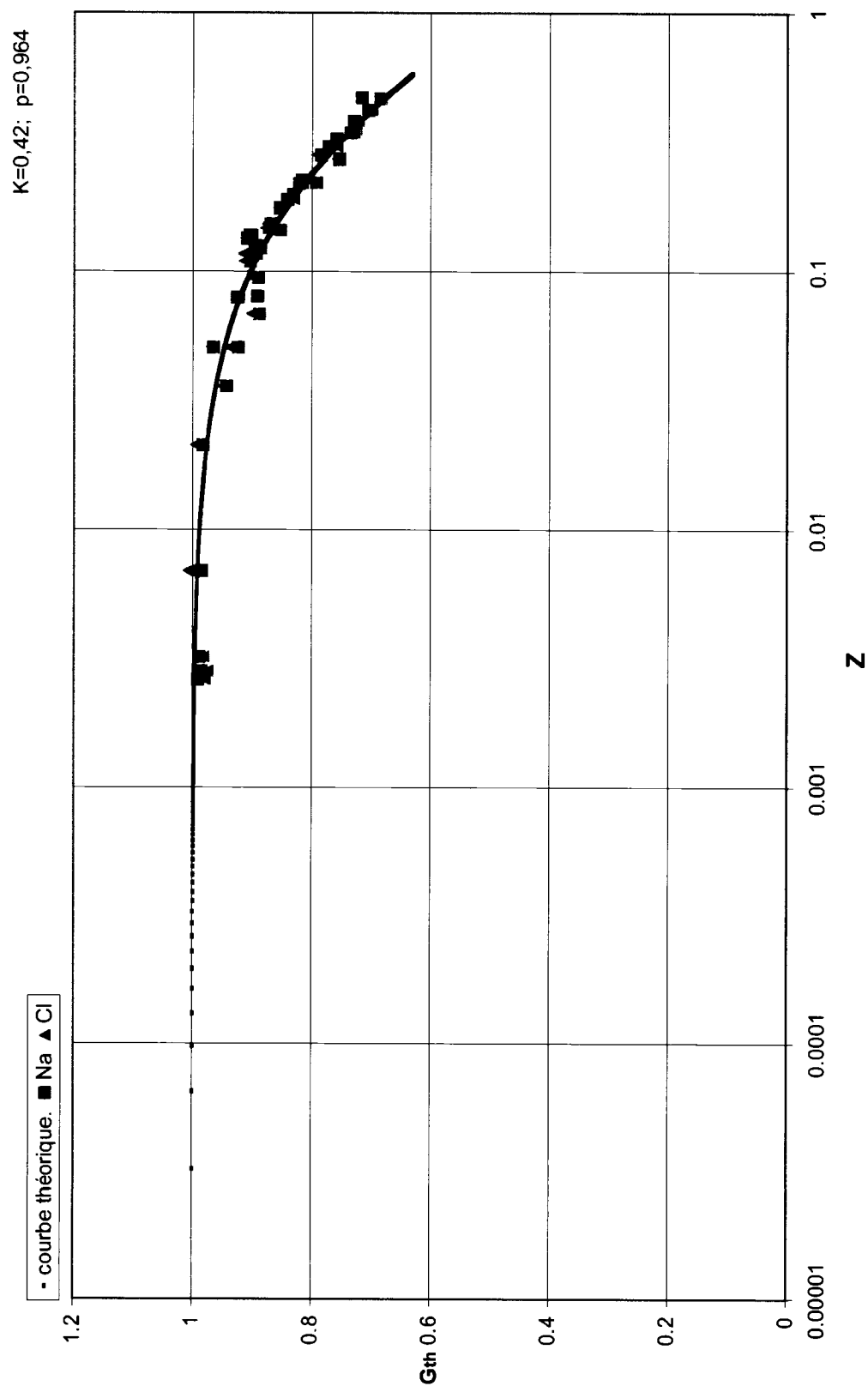


Figure 3.1 La courbe théorique et les résultats expérimentaux dans le site 8 de mars 2004

Pour avoir des résultats justes quand on fait des mesures avec des échantillons de volumes différents, il a fallu corriger pour tenir compte les effets suivants :

- La différence de distance entre le détecteur et la partie supérieure de la capsule (l'échantillon est placé horizontalement sur le détecteur);
- Absorption différente des rayons γ par la substance irradiée causée par l'épaisseur de l'échantillon.

Il était nécessaire d'introduire des coefficients pour chaque type de capsule pour corriger l'effet de la géométrie de la capsule sur l'efficacité de détecteur. Les coefficients étaient déterminés par des essais, comme la géométrie de la petite capsule a été prise d'étalon. Ces corrections étaient aussi prises en considération pour tous les échantillons et les résultats étaient calculés à nouveau par rapport aux coefficients obtenus. Le problème de l'utilisation de ces corrections était résolu définitivement plus tard par le changement de la méthodologie de mesure comme cela a été indiqué dans le Chapitre II (dilution des échantillons dans l'eau). Ensuite, était réalisée une autre série d'expériences fut réalisée avec le NaCl et cette fois ci - avec des grandes capsules, en vue de vérifier si la formule théorique est bien valable même pour des masses plus élevées. On a envisagé ainsi de vérifier la constante géométrique de la formule théorique. Sur la Figure 3.2 on voit les résultats obtenus et on voit presque une forme complète du sigmoïde, qui représente une courbe théorique indiquant le phénomène d'auto protection.

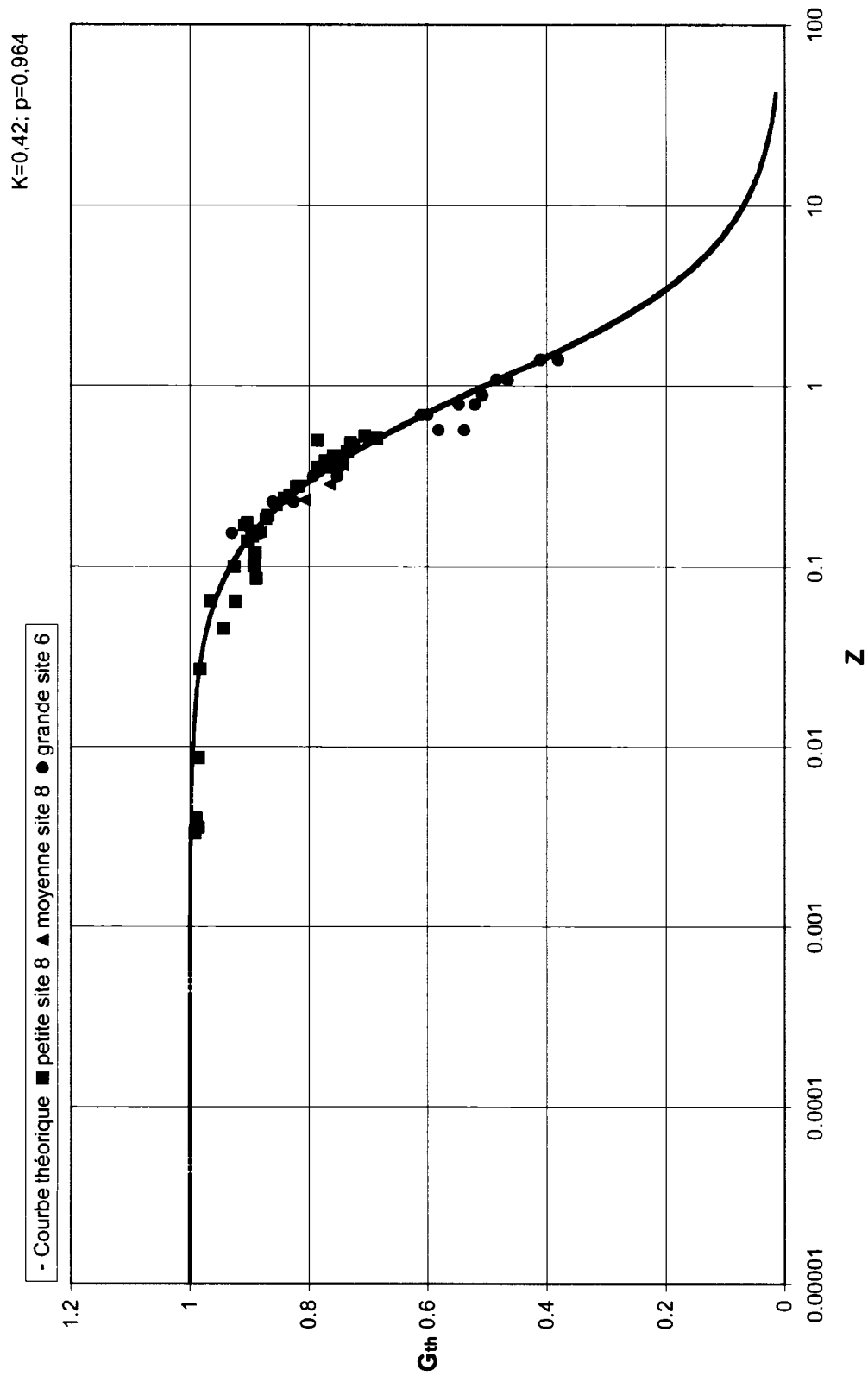


Figure 3.2 La courbe théorique et les résultats expérimentaux dans les sites 6 et 8 d'avril 2004

À partir de ce moment, il s'avérait rationnel d'observer uniquement la concentration de Na parce que les points de Cl et de Na coïncident (Figure 3.1). De plus, sur tous les graphiques n'est indiquée que la différence des capsules. Tous les points expérimentaux représentent la concentration de Na calculée par EPAA. À ce moment, tous les tableaux électroniques sont dans leurs versions finales.

Sur les Figures 3.1 et 3.2 nous disposions de plus de 130 points expérimentaux qui suivent bien notre courbe théorique et il semblait que notre travail prendrait être couronné de succès. Dans le but d'obtenir des points expérimentaux de l'autre extrémité de la courbe théorique, c'est-à-dire pour les masses les plus élevées possibles de la substance active, des expériences uniquement avec de grandes capsules ont été réalisées. En fin de compte nous ne pouvions pas augmenter infiniment la masse parce que nous étions limités par le volume des grandes capsules. De plus, il était très compliqué d'analyser de tels échantillons parce que malgré leur court séjour dans le réacteur, ils devenaient très actifs et il fallait attendre au moins deux jours pour pouvoir les compter. Toutes les grandes capsules étaient irradiées dans le site 6 du réacteur dont les dimensions permettaient l'utilisation de ces capsules. Jusqu'à ce moment, toutes les autres (petites et moyennes) capsules presque sans exception étaient irradiées dans le site 8. Afin de mieux comparer les sites 6 et 8 nous avons voulu irradier de petites et moyennes capsules dans le site 6.

3.1.2 L'influence de la géométrie du site d'irradiation et de la géométrie des échantillons sur les résultats expérimentaux

Il fut réalisé une série d'expériences avec le NaCl où les mêmes échantillons (petits et moyens) étaient irradiés au début dans le site 8 du réacteur et ensuite dans le site 6. Les essais étaient faits en conditions absolument identiques d'irradiation, de décroissance et de mesure. La Figure 3.3. reflète les résultats de cette expérience. Nous voyons que les G mesurés dans le site 6 sont toujours plus élevés que les G mesurés dans le site 8 avec les mêmes échantillons. Nous tirons les conclusions suivantes :

- Nous sommes témoins d'un phénomène physique qui jusqu'au présent n'était pas pris en considération;
- Ce phénomène est dû aux différences dans les sites d'irradiation, ainsi qu'à la présence de la substance qui absorbe les neutrons;

Notre tâche consiste alors à étudier ce phénomène et à proposer faire les corrections nécessaires dans la formule théorique.

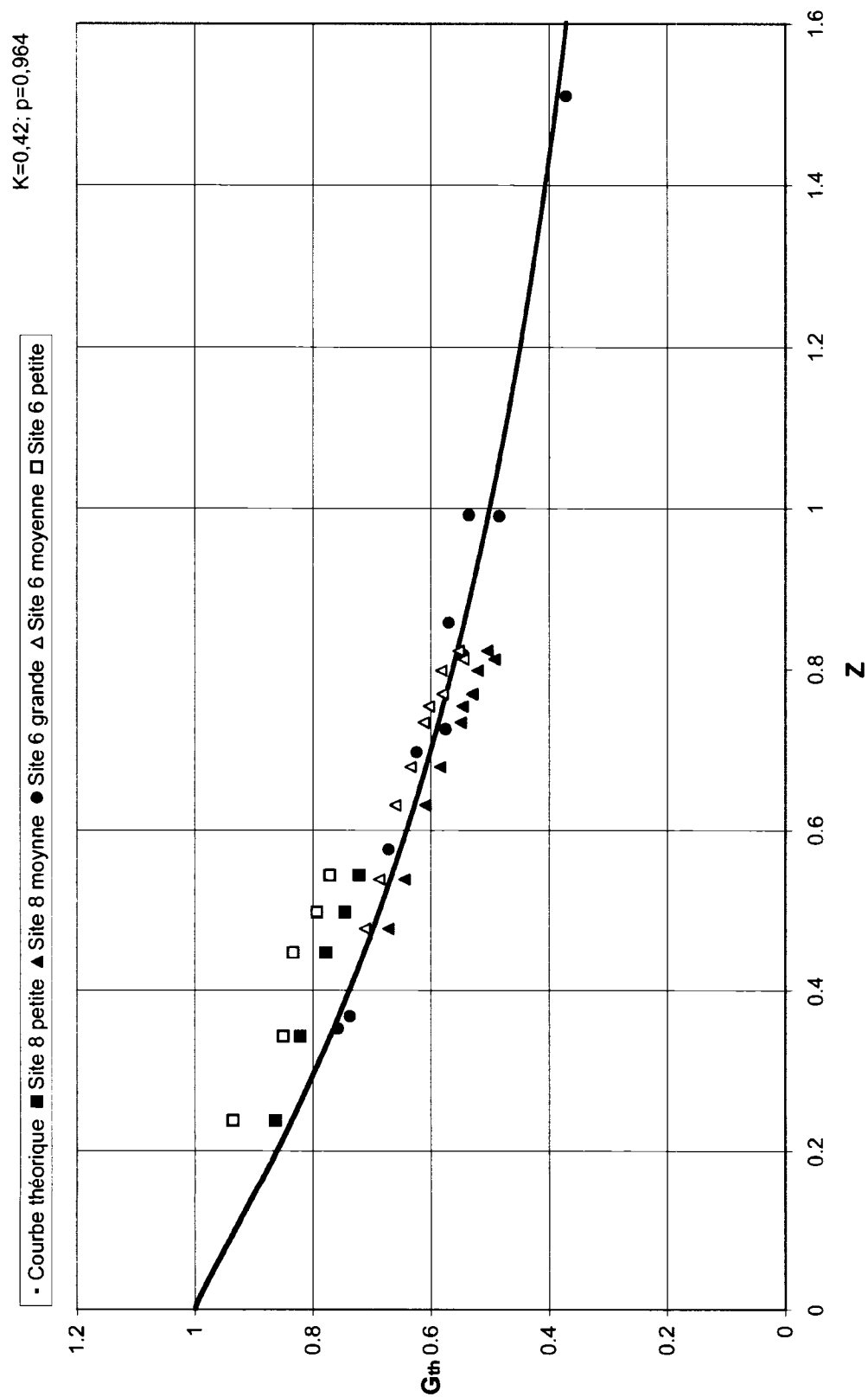


Figure 3.3 La différence entre deux sites d'irradiation 6 et 8

Nous avons réalisé une autre série d'expériences dont le but était de déterminer avec plus de précision les courbes en question. À ces fins, 10 échantillons de contenance différente de NaCl mais ayant la même géométrie étaient utilisés, où la quantité de la substance analysée changé proportionnellement (de 10g à 1g, avec le pas de changement de 1g - série M). La hauteur des échantillons est de 4,5 cm. On a utilisé seulement des capsules moyennes.

On a exécuté successivement trois séries d'irradiations lors desquelles les capsules étaient irradiées d'après un schéma déterminé dans les trois sites : site 1, site 8, site 6 (après leur activité baissée, les capsules étaient irradiées de nouveau dans le site suivant). De cette manière et en utilisant des mêmes échantillons, nous les avons activés dans les trois sites différents et nous avons obtenu trois points expérimentaux différents, un point pour chaque site. Pour éviter des erreurs aléatoires lors de la mesure, on a réalisé deux mesures par chaque capsule en changeant la position de la capsule à 180^0 . Les résultats obtenus étaient très encourageants parce que sur le graphique sont clairement apparues trois courbes différentes correspondantes à chaque site (voir Figure 3.4). Les lignes sont des polynômes ajustés aux points expérimentaux.

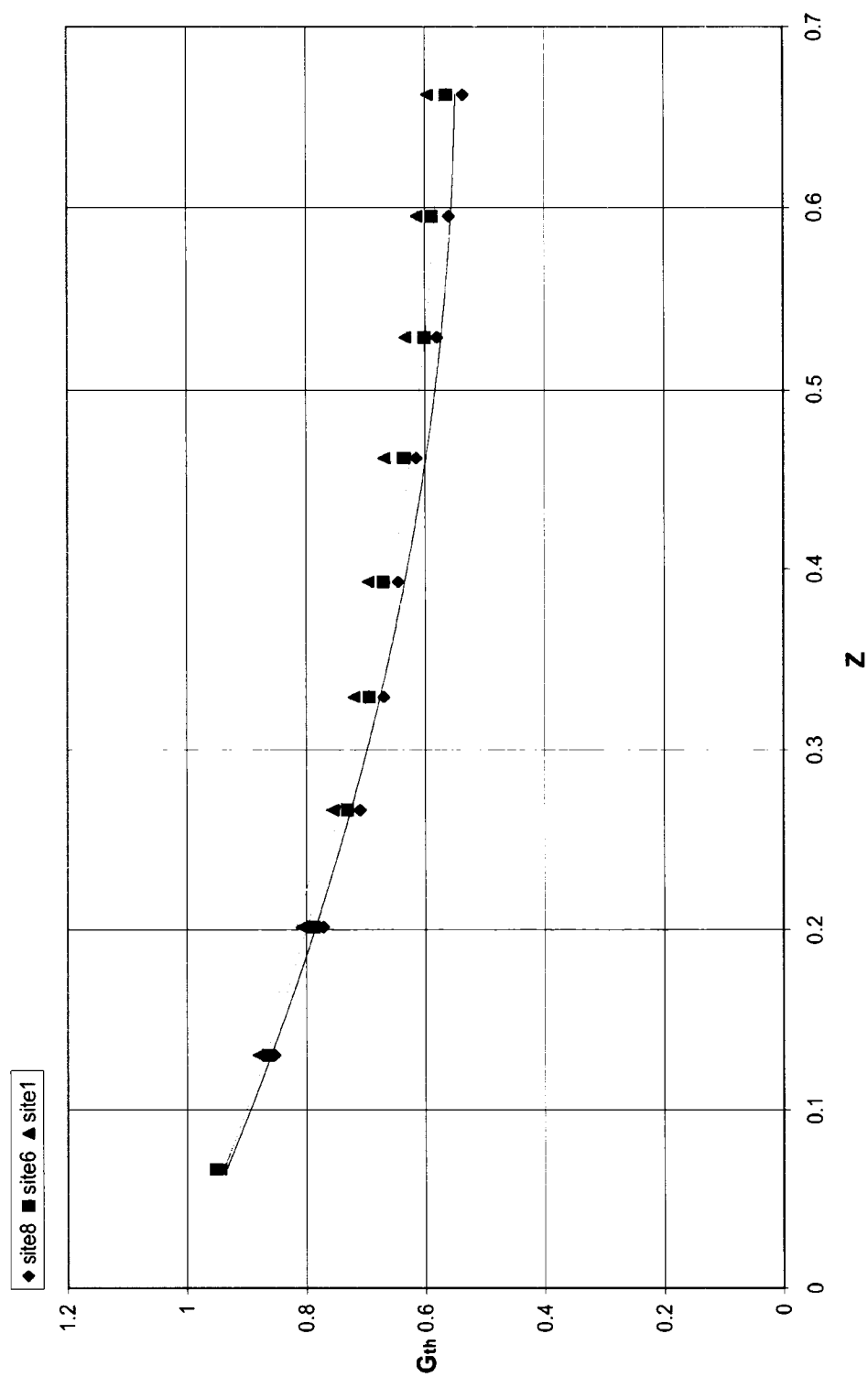


Figure 3.4 Les courbes des sites 8, 6, 1 avec les mêmes échantillons de NaCl

L'objectif suivant consiste à vérifier avec plus de précision le comportement des trois courbes. Sont-elles parallèles ou s'éloignent-elles en fonction de l'augmentation de la masse de la substance qui absorbe les neutrons? Les courbes doivent avoir un début commun pour les petites concentrations ($G = 1$ pour $Z = 0$). Ces raisonnements théoriques devaient être vérifiés par des expériences – ce qui a mené à l'élaboration de 5 nouveaux échantillons (série N - de masse de 0,6g à 0,05 g). Le même schéma de travail était conservé et les résultats finaux peuvent être observés sur les Figures 3.5 et 3.6.

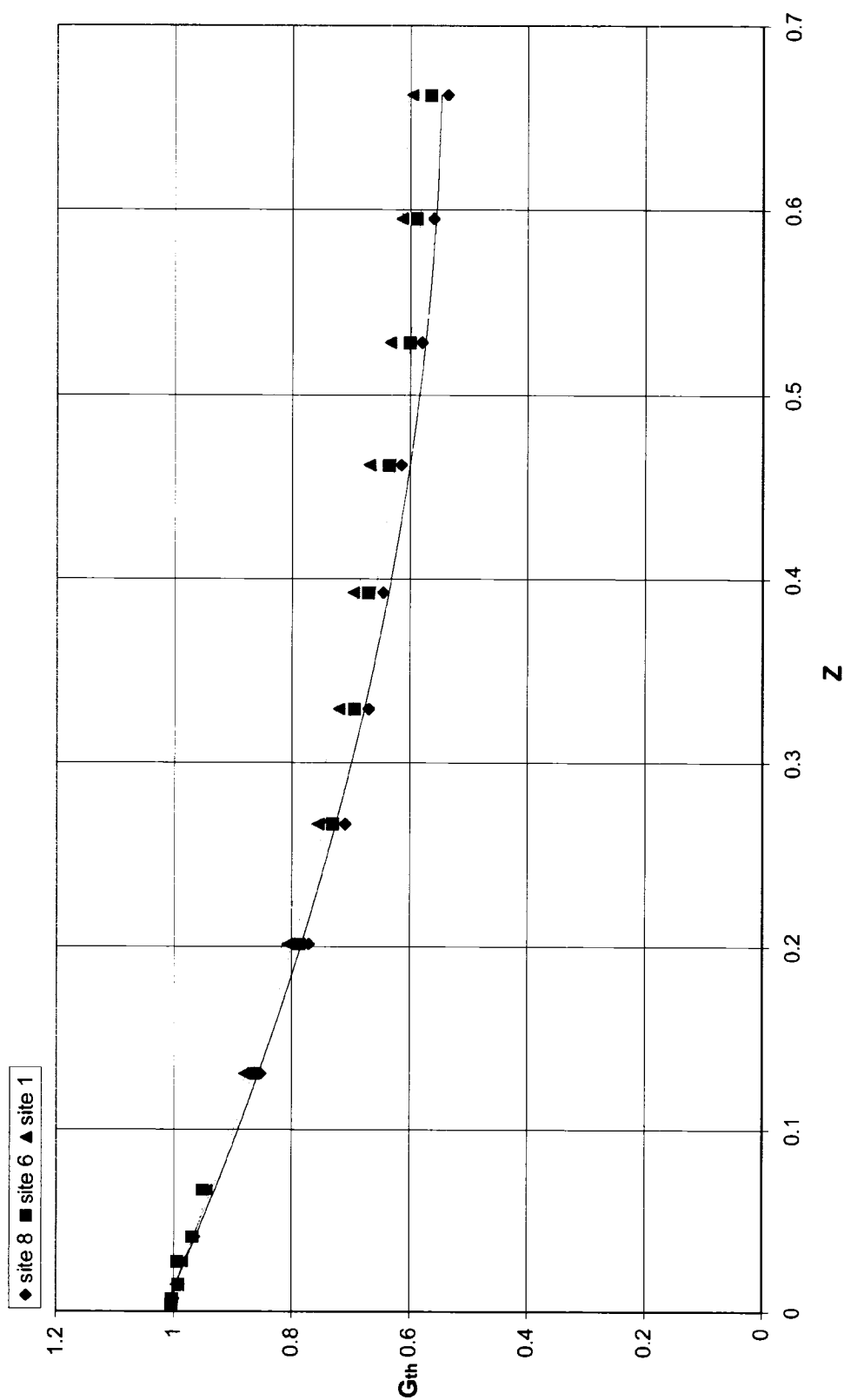


Figure 3.5 Les courbes des sites 8, 6 et 1, séries N et M avec NaCl

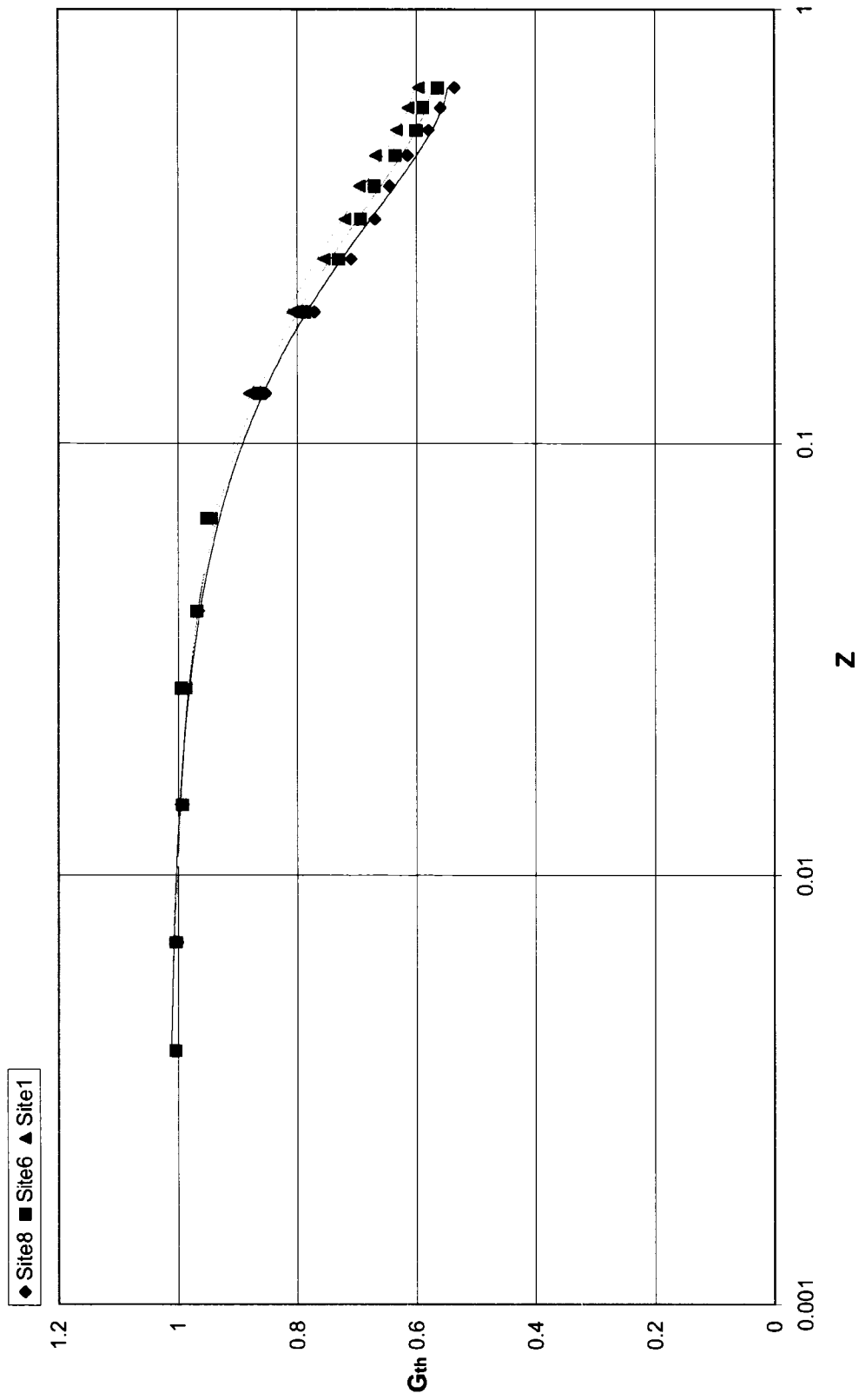


Figure 3.6 Les courbes des sites 8, 6 et 1, séries N et M avec NaCl. Échelle logarithmique

Après avoir réalisé ces essais, nous avons tiré les conclusions suivantes. Premièrement, nous étions en mesure de répondre à la question concernant les différences dans l'auto protection dues à la géométrie. En fait, nous croyons que les différences dans l'auto protection sont dues aux différences dans la géométrie des sites d'irradiation combiné à la géométrie des capsules que nous irradiions (voir le Figure 3.7).

Le schéma de la Figure 3.7 présente toutes les combinaisons possibles sur le plan géométrique entre le site d'irradiation et le type de la capsule utilisée. Les cylindres gris représentent les échantillons qui absorbent les neutrons. Les cylindres blancs représentent les limites du site d'irradiation, là où commence l'eau qui peut réfléchir les neutrons. Entre l'échantillon et l'eau il y a de l'air et aussi la paroi en aluminium du site d'irradiation. Il est évident que le flux neutronique résultant qui est la cause de l'activation de l'échantillon, est dû à l'interaction de tous les milieux différents. Il y a l'air qui n'a pas d'effet à cause de sa faible densité. Il y a aussi l'eau qui réfléchit les neutrons et le NaCl qui absorbe des neutrons grâce à la présence de Cl - l'élément qui possède une section efficace d'absorption élevée pour les neutrons thermiques. Quant aux murs de la capsule, leur influence est non-significative car ils sont très minces et ils ne possèdent pas d'éléments qui ont une grande section efficace d'absorption de neutrons. Pour cette raison, leur influence est négligée. Quant aux murs du site d'irradiation faits d'Al, leur épaisseur est faible et l'Al a une faible section efficace pour l'absorption et la diffusion de neutrons. Leur influence est ainsi peu importante.

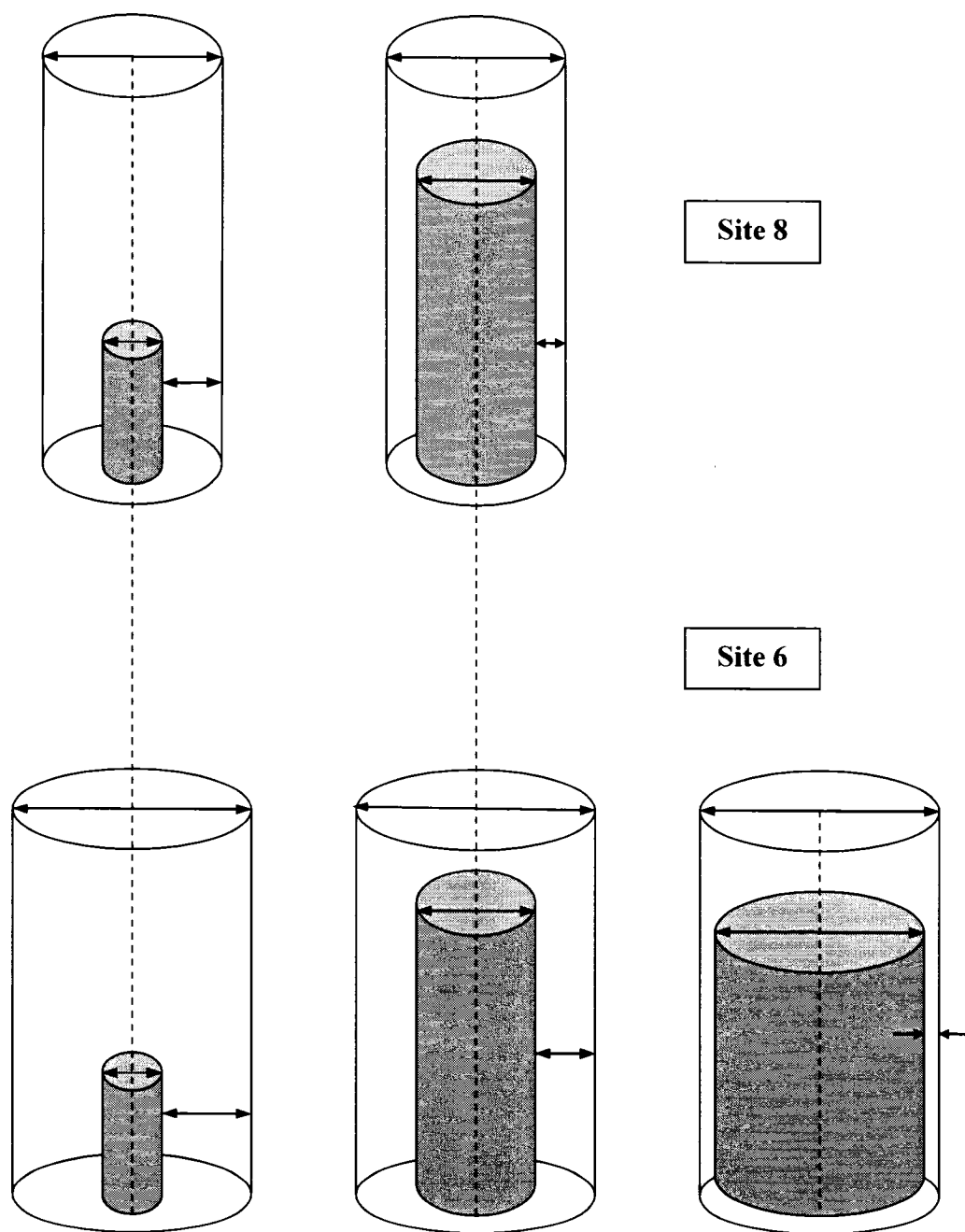


Figure 3.7 : Les différences géométriques entre les deux sites d'irradiation ;
Cylindre gris : diamètre de l'échantillon
Cylindre blanc : diamètre de site jusqu' au réflecteur eau

Comme on voit sur ces schémas, la distance entre la substance active qui se trouve dans la capsule et le mur du site derrière lequel se trouve l'eau (les sites 6 et 8 se situent hors de la couche de béryllium du réacteur - voir Figure 2.3) est différente dans les cinq cas présentés. En fait, si nous avons d'autres sites à dimensions différentes et respectivement d'autres capsules différentes, les combinaisons possibles pourraient se multiplier sensiblement. On peut donc résumer le changement de la géométrie comme une relation entre le diamètre du site d'irradiation et le diamètre de la capsule. Il est nécessaire de remarquer que c'est la seule différence géométrique entre les deux sites qui a une importance.

Nous nous sommes rendus compte que malgré la distance égale des sites d'irradiation du centre du réacteur et la correction correspondante faite pour les flux neutroniques, les résultats expérimentaux montrent une différence systématique entre les échantillons identiques activés dans les deux sites - site 6 et site 8. À noter que les échantillons du site 8 sont toujours moins actifs de ceux du site 6. Cette tendance s'agrandit avec l'augmentation de la masse de la substance absorbante, ce qui veut dire - avec l'augmentation de l'élément ayant une section efficace d'absorption élevée pour les neutrons thermiques, notamment le Cl. En d'autres termes, en augmentant le Cl, dans le site 8 l'effet du phénomène d'auto protection est plus intense que celui du site 6. La seule différence constatée est dans la géométrie des deux sites. Nous avons supposé qu'en résultat du fait que le Cl absorbe des neutrons, la géométrie des sites change de façon différente le flux neutronique. Notre hypothèse consiste à supposer que le flux

neutronique provenant du réacteur traverse le site d'irradiation et subit un changement causé par l'élément absorbant, ce qui en diminue la valeur. Le flux ainsi diminué peut se réfléchir sur l'eau entourant le site d'irradiation et retourner vers l'échantillon. Ce flux « de retour » lui aussi contribue à l'irradiation totale de l'échantillon. La différence dans les géométries cause des différences dans les flux « de retour », notamment : quand la distance entre la substance absorbante et l'eau est plus grande, le flux « de retour » est plus faible. Les modèles précédents d'auto protection, comme Salgado (2001), etc. ne tiennent pas compte de la réflexion des neutrons sur le milieu entourant l'échantillon. Ces modèles supposent un flux neutronique isotrope qui traverse l'échantillon une fois.

Il serait difficile d'expliquer exactement de quelle façon varie le flux neutronique en passant par le site et en se réfléchissant par l'eau. Pour avoir une idée plus réelle de la variation du flux neutronique dans notre échantillon, nous avons fait de nouveaux essais qui devraient éclaircir ce phénomène et plus spécialement le changement de l'amplitude du flux neutronique. Il est nécessaire de noter que résoudre ce problème plus précisément est très complexe, ce qui pourrait servir de base à autre recherche. Ici, nous nous sommes limités à des études plus générales et qualitatives.

Nous avons donc réalisé une nouvelle expérience avec quatre échantillons de diamètre 14 mm avec deux d'entre eux irradiés dans le site 6 et deux dans le site 8. Tous les échantillons avaient des feuilles en cuivre (Cu) sous la forme d'un cylindre collé aux murs intérieurs de la capsule. Deux des échantillons étaient remplis de NaCl, et de cette

manière nous avons deux échantillons pleins de substance absorbeur des neutrons et deux échantillons sans cette substance. L'un des objectifs de l'essai était de vérifier si les échantillons sans substance absorbeur donneront des résultats identiques et si les échantillons pleins de NaCl montreront une différence. En fait, les plaques de cuivre jouaient le rôle d'indicateur. L'autre objectif de cet essai est de vérifier quel est la variation du flux neutronique dans l'espace autour de la substance absorbeur. À ces fins, après que les échantillons furent irradiés, les plaques étaient sorties, jaugés et coupés en 24 morceaux rectangulaires de dimensions égales. Chaque morceau était pesé et compté deux fois, une fois sur chaque côté, pour déterminer l'activité moyenne. En fin de compte, 192 mesures de 96 morceaux rectangulaires en cuivre furent faites (voir Figure 3.8). Ces expériences ont confirmé notre hypothèse. Les résultats de la Figure 3.9 montrent clairement qu'en absence de l'élément absorbeur le côté le plus éloigné (côté gris) et le côté le plus près du cœur de réacteur (côté rouge) ont des valeurs de flux identiques pour les sites 6 et 8. Tandis que, en présence de l'élément absorbeur, les valeurs des côtés rouges et gris sont différentes : celles du site 6 sont plus élevées que celles du site 8. Cela veut dire que, partout, le flux est moins réduit dans le site 6 – moins d'auto protection.

	A	B	C	D	E	F	G	H	
1	A ₁	B ₁	C ₁	D ₁	E ₁	F ₁	G ₁	H ₁	Nom de série S6VO1
2	A ₁	B ₁	C ₁	D ₁	E ₁	F ₁	G ₁	H ₁	
3	A ₁	B ₁	C ₁	D ₁	E ₁	F ₁	G ₁	H ₁	

	A	B	C	D	E	F	G	H	
1	A ₁	B ₁	C ₁	D ₁	E ₁	F ₁	G ₁	H ₁	Nom de série S6CO2
2	A ₁	B ₁	C ₁	D ₁	E ₁	F ₁	G ₁	H ₁	
3	A ₁	B ₁	C ₁	D ₁	E ₁	F ₁	G ₁	H ₁	

	A	B	C	D	E	F	G	H	
1	A ₁	B ₁	C ₁	D ₁	E ₁	F ₁	G ₁	H ₁	Nom de série S8VO3
2	A ₁	B ₁	C ₁	D ₁	E ₁	F ₁	G ₁	H ₁	
3	A ₁	B ₁	C ₁	D ₁	E ₁	F ₁	G ₁	H ₁	

	A	B	C	D	E	F	G	H	
1	A ₁	B ₁	C ₁	D ₁	E ₁	F ₁	G ₁	H ₁	Nom de série S8CO4
2	A ₁	B ₁	C ₁	D ₁	E ₁	F ₁	G ₁	H ₁	
3	A ₁	B ₁	C ₁	D ₁	E ₁	F ₁	G ₁	H ₁	

Figure 3.8 : Les plaques - indicateurs en cuivre

Les résultats de mesures sont présentés sur la Figure 3.9 et la Figure 3.10 ; les F représentent le flux neutronique à chaque endroit:

Site 6, Cuivre pur

C1 F= 2,971	D1 F= 2,948	F1 F= 2,886	G1 F= 2,918
C2 F= 2,826	D2 F= 2,856	F2 F= 2,858	G2 F= 2,919
C3 F= 2,916	D3 F= 2,848	F3 F= 2,919	G3 F= 2,964

Site 6, Cuivre, NaCl plain

A1 F= 1,908	C1 F= 1,726	E1 F= 1,882	F1 F= 2,015	H1 F= 2,014
A2 F= 1,748	C2 F= 1,655	E2 F= 1,762	F2 F= 1,919	H2 F= 1,875
A3 F= 1,887	C3 F= 1,749	E3 F= 1,853	F3 F= 1,999	H3 F= 1,992

Site 8, Cuivre pur

A1 F= 2,939	C1 F= 2,89	E1 F= 2,951	F1 F= 3,067	H1 F= 2,946
A2 F= 2,897	C2 F= 2,885	E2 F= 2,975	F2 F= 3,047	H2 F= 3,056
A3 F= 2,911	C3 F= 3,693	E3 F= 2,948	F3 F= 3,046	H3 F= 2,963

Site 8, Cuivre, NaCl plain

A1 F= 1,825	B1 F= 1,706	D1 F= 1,576	F1 F= 1,867	G1 F= 1,92
A2 F= 1,72	B2 F= 1,587	D2 F= 1,518	F2 F= 1,664	G2 F= 1,807
A3 F= 1,841	B3 F= 1,74	D3 F= 1,614	F3 F= 1,793	G3 F= 1,92

Figure 3.9 : Les résultats de mesures des plaques en cuivre

Les carrés rouges représentent le côté tourné vers le réacteur, les carrés gris - le côté le plus éloigné du cœur du réacteur.

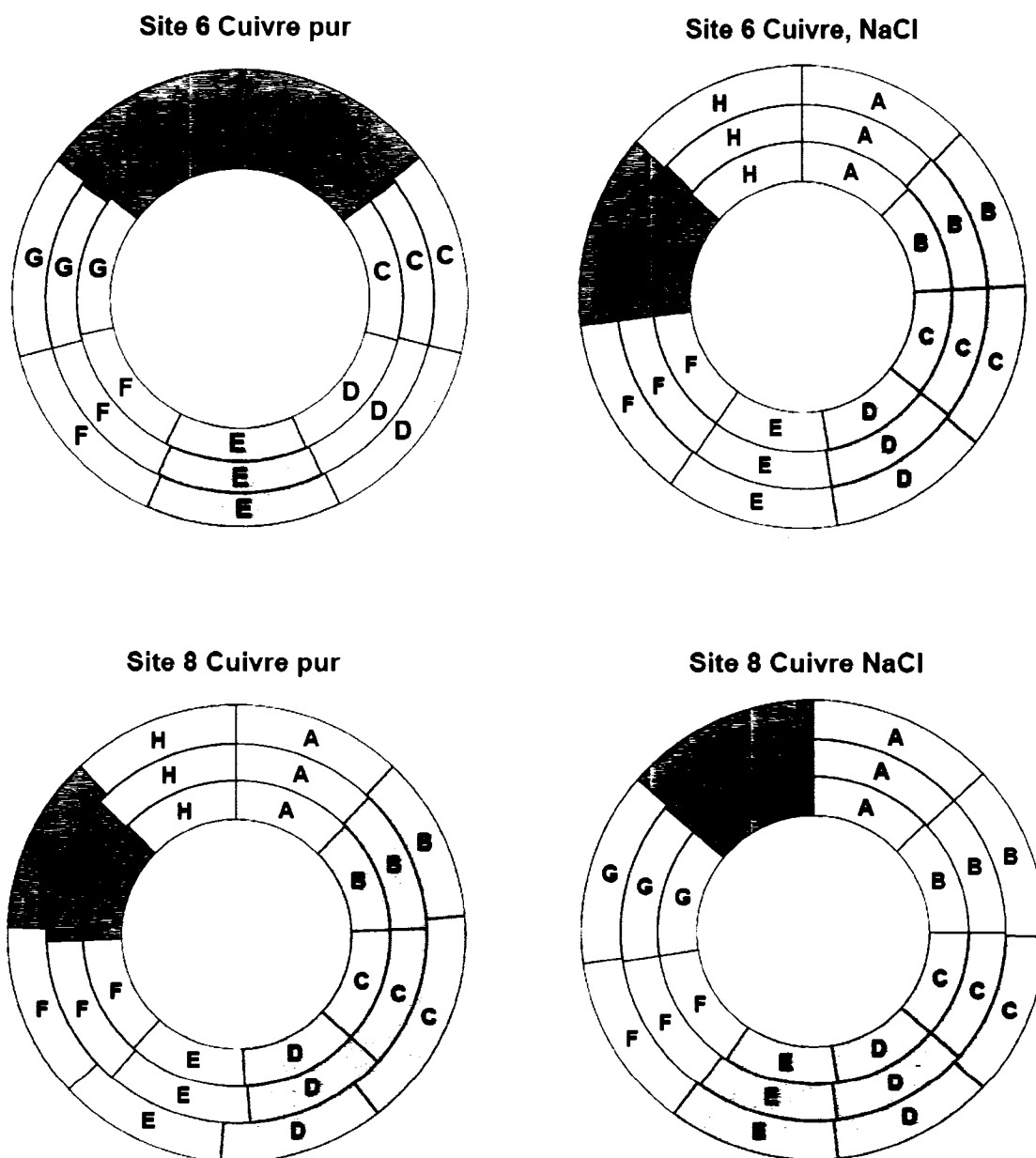


Figure 3.10 : Visualisation des cylindres en cuivre : le côté rouge est toujours le plus actif.

3.1.3 Définition de la constante de géométrie

Les résultats de tous les essais effectués jusqu'ici dans cette recherche mènent à la conclusion suivante.

- Le phénomène que nous observons, la variation de G_{th} avec la géométrie et la site d'irradiation, est dû à deux facteurs : la présence d'une substance qui absorbe des neutrons thermiques; des géométries différentes qui se manifestent selon les combinaisons entre le site d'irradiation et la capsule;

Alors, il est nécessaire de corriger la formule théorique et plus précisément sa partie « géométrique » (Y). Comme c'était indiqué dans le chapitre précédent, nous avons débuté avec la formule théorique suivante:

$$G_{th} = \frac{1}{1 + Z^p} \quad (2.1)$$

Où : $Z = K \cdot Y \cdot m$ et $Y = \frac{1}{R^2 + RH}$

À cause de la présence du phénomène décrit plus haut, il fallait corriger le facteur géométrique Y et le présenter comme le produit de deux facteurs :

$$Y = y_1 \cdot y_2 \quad (3.1)$$

Où y_1 est le facteur géométrique initial qui décrit la géométrie de l'échantillon, notamment le volume contenant la substance ayant une grande section efficace d'absorption. De son côté, y_2 tient compte de la géométrie du site d'irradiation et de la capsule même.

$$y_1 = \frac{1}{R^2 + RH} \quad (3.2)$$

$$y_2 = \frac{1}{1 - \left(\frac{K_g R}{R_s} \right)} \quad (3.3)$$

R est le rayon de l'échantillon en cm;

R_s est le rayon du site d'irradiation en cm;

K_g est une constante géométrique qu'on définit par des essais.

Nous présenterons plus tard la valeur expérimentale de la constante K_g .

En fin de compte la forme définitive de la formule théorique a pris la forme suivante :

$$G_m = \frac{1}{1 + Z^p} \quad (3.4)$$

Où : $Z = K \cdot Y \cdot m$ et $Y = \frac{1}{R^2 + RH} \cdot \frac{1}{1 - \left(\frac{K_g R}{R_s} \right)}$

Il s'avérerait donc nécessaire de vérifier cette formule et aussi de déterminer la constante K_g .

3.1.4 Vérification de la théorie d'influence de la géométrie

On a commencé à vérifier la validité de la formule théorique et à déterminer la constante K_g par une nouvelle série d'expériences. Le seul site dans lequel nous pouvions irradier tous les types de capsules était le site 6. C'est pourquoi, la première série d'essais s'effectuait dans ce site. On avait adopté la méthodologie du Chapitre II. L'utilisation des points expérimentaux obtenus avant la découverte du phénomène d'influence de la géométrie est devenu inapproprié comme résultat d'une méthodologie différente. Ils n'étaient donc pas utilisés pour éviter le danger d'avoir des résultats incorrects lors du processus de définition de K_g .

On avait préparé et irradié trois types de capsules, après quoi les résultats expérimentaux étaient comparés avec la courbe théorique sans tenir compte de la constante K_g ($K_g = 0$).

On a clairement différencié trois tendances différentes, Figure 3.11.

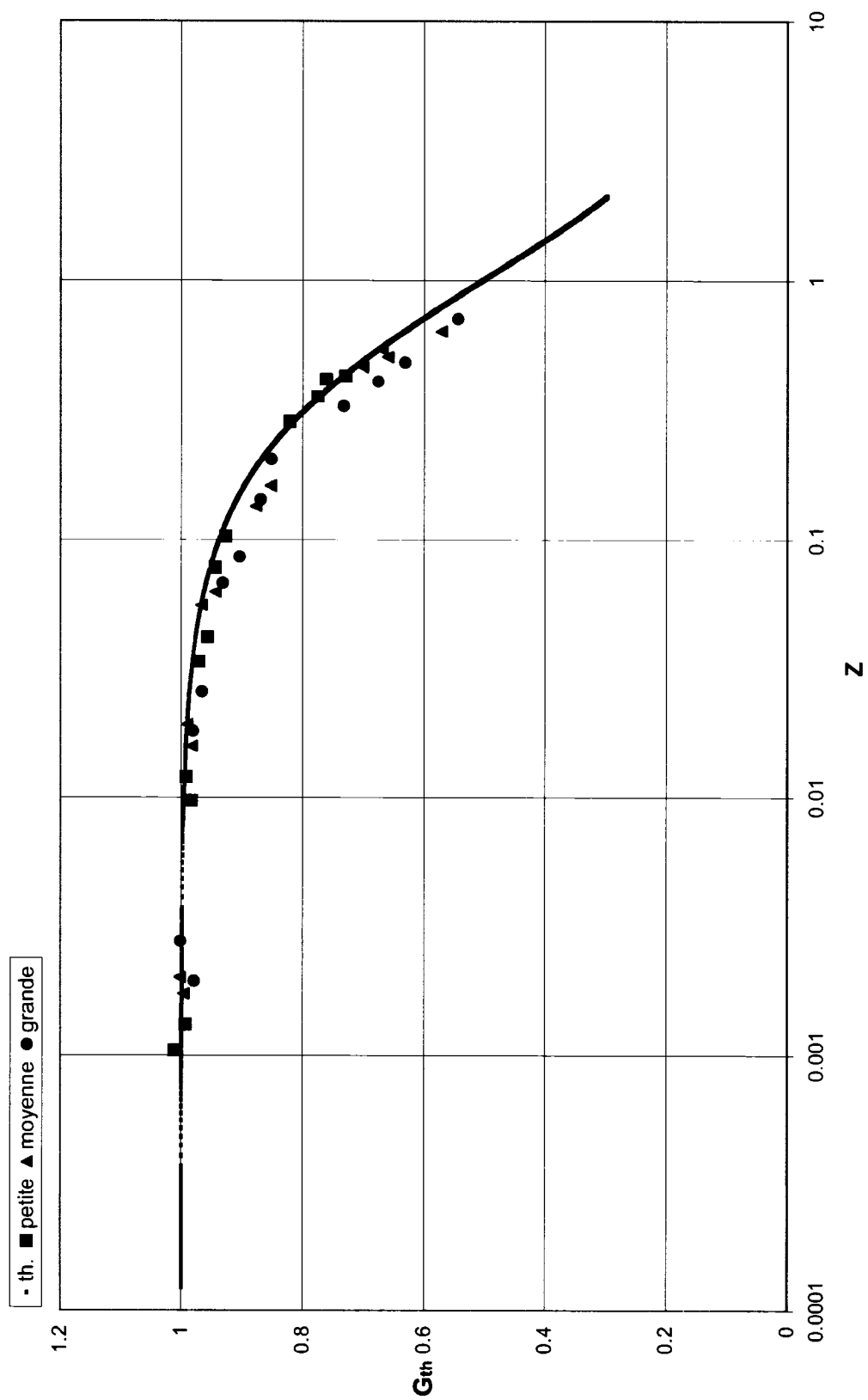


Figure 3.11 La courbe théorique et les résultats expérimentaux dans le site 6 avec $K_g = 0$

Ensuite, la constante K_g était introduite dans les calculs et sa valeur changée jusqu'à ce que les points expérimentaux et la courbe théorique coexistent l'autre (voir Figure 3.12).

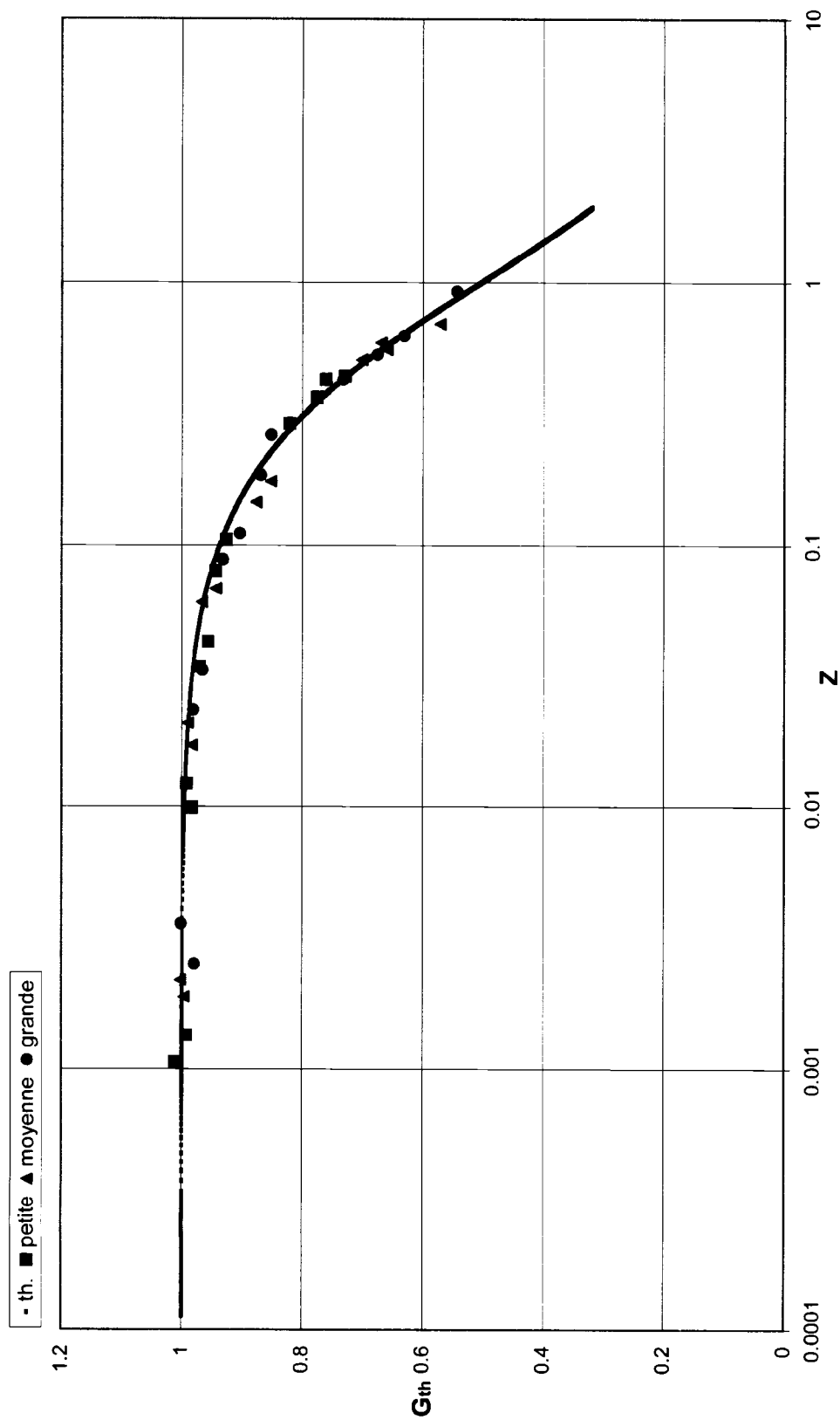


Figure 3.12 La courbe théorique et les résultats expérimentaux dans le site 6 avec $K_g = 0,42$

La valeur de K_g obtenue est de 0,42. De cette façon, il fut montré que la nouvelle formule fonctionne et satisfait à nos résultats. Plus tard, la valeur exacte de K_g fut trouvée en utilisant la méthode des moindres carrés.

Dans le but de vérifier si les constantes ainsi trouvées sont les mêmes pour le site 8, de nouvelles séries d'essais, cette fois dans ce site du réacteur, étaient entreprises. Le site 8 ne permet le travail qu'avec de petites et de moyennes capsules. La Figure 3.13 qui suit montre manifestement les résultats de ces expériences, notamment que les constantes appliquées pour le site 6 sont aussi valides pour le site 8.

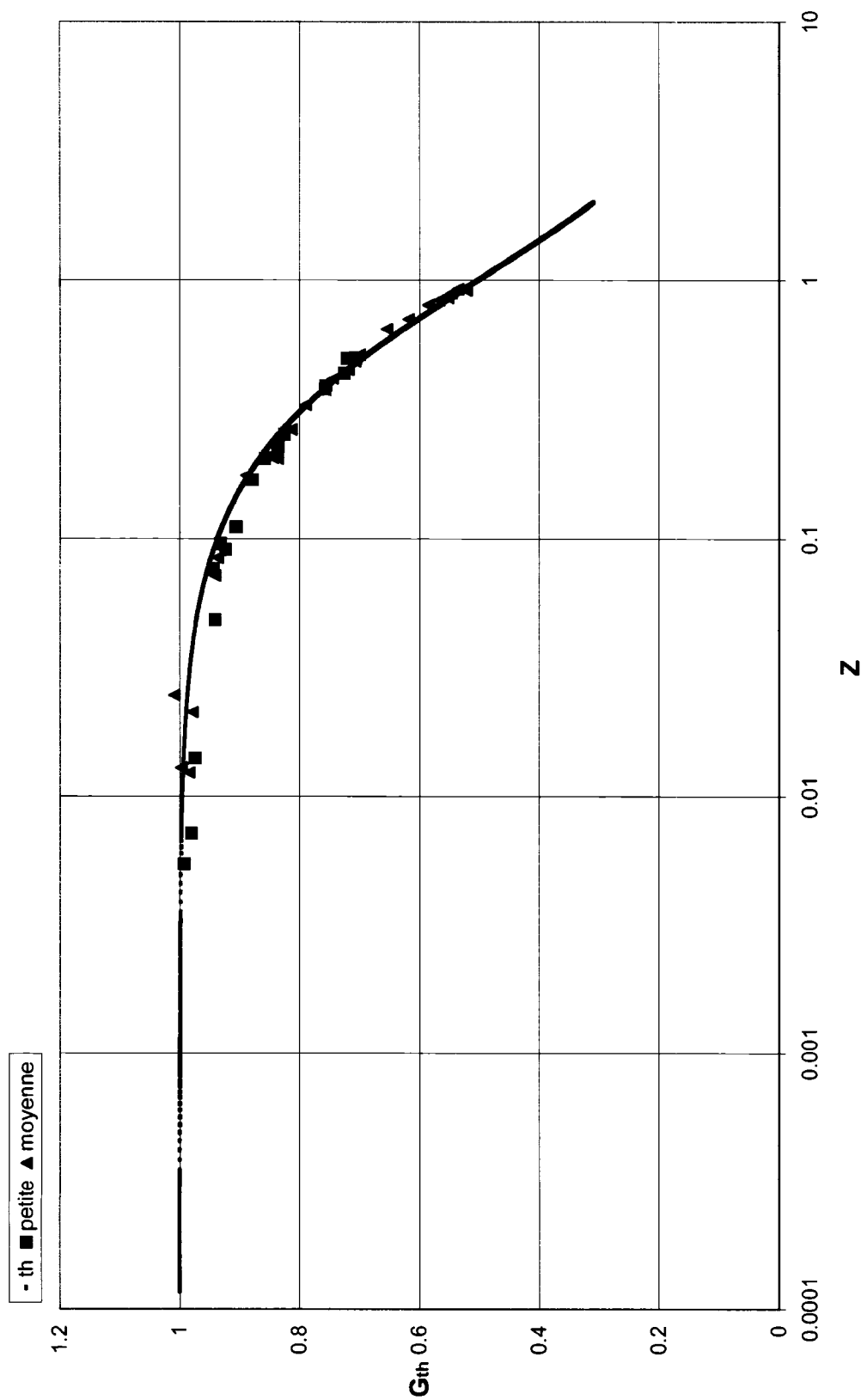


Figure 3.13 La courbe théorique et les résultats expérimentaux dans le site 8 avec $K_g = 0,42$

Dans les deux sites, nous avons irradiés et mesurés au total 84 échantillons, 36 furent irradiés dans le site 6 et 48 - dans le site 8. En d'autres termes, nous avons atteint approximativement la même quantité de points expérimentaux comme avant l'introduction de la nouvelle constante. La différence est que maintenant les points expérimentaux correspondaient bien avec la courbe théorique.

La série suivante d'expériences était faite dans le site 1 du réacteur. Nos hypothèses étaient que, à cet endroit, la constante K_g serait probablement différente, parce que le site 1 est très différent des sites 6 et 8. Il se trouve plus près du réacteur, il est entouré de béryllium et non pas d'eau; par conséquent, la quantité de neutrons épithermiques dans ce site est plus élevée. On a irradié de nouveau des échantillons petits et des moyens de quantité différente de la substance active de NaCl. Après avoir obtenu les résultats, il s'est révélé que la constante K_g dans ce site est la même, mais la constante K est différente. Donc, il est apparu que la constante K_g est influencée par l'élément absorbeur et la géométrie concrète, mais pas par l'environnement du site d'irradiation. La différence dans les flux neutroniques ainsi que dans l'environnement autour du site, influencent la constante K . On a fait encore une série d'échantillons supplémentaires dans le site 1 du réacteur qui contiennent Na_2SO_4 à la place de NaCl. Le but de ces échantillons était de prouver qu'en absence de l'élément ayant une section efficace d'absorption élevée pour les neutrons thermiques comme Cl, l'effet d'auto protection ne sera pas observé. C'est-à-dire, la quantité calculée de Na à l'aide de l'analyse par activation correspondra à la quantité mesurée à l'aide de la balance.

Malgré le fait que ces essais ne contiennent pas du Cl, à chaque point, une valeur de Z a été calculée, et cela, dans le but de mieux visualiser les 5 points sur le graphique. Si non, tous les points seront fusionnés dans un seul point qui se trouvera au début du graphique, avec des coordonnées ($G = 1, Z = 0$). Cette expérience a confirmé de nouveau notre théorie. Les résultats de tous les échantillons irradiés dans le site 1 sont présentés sur la Figure 3.14.

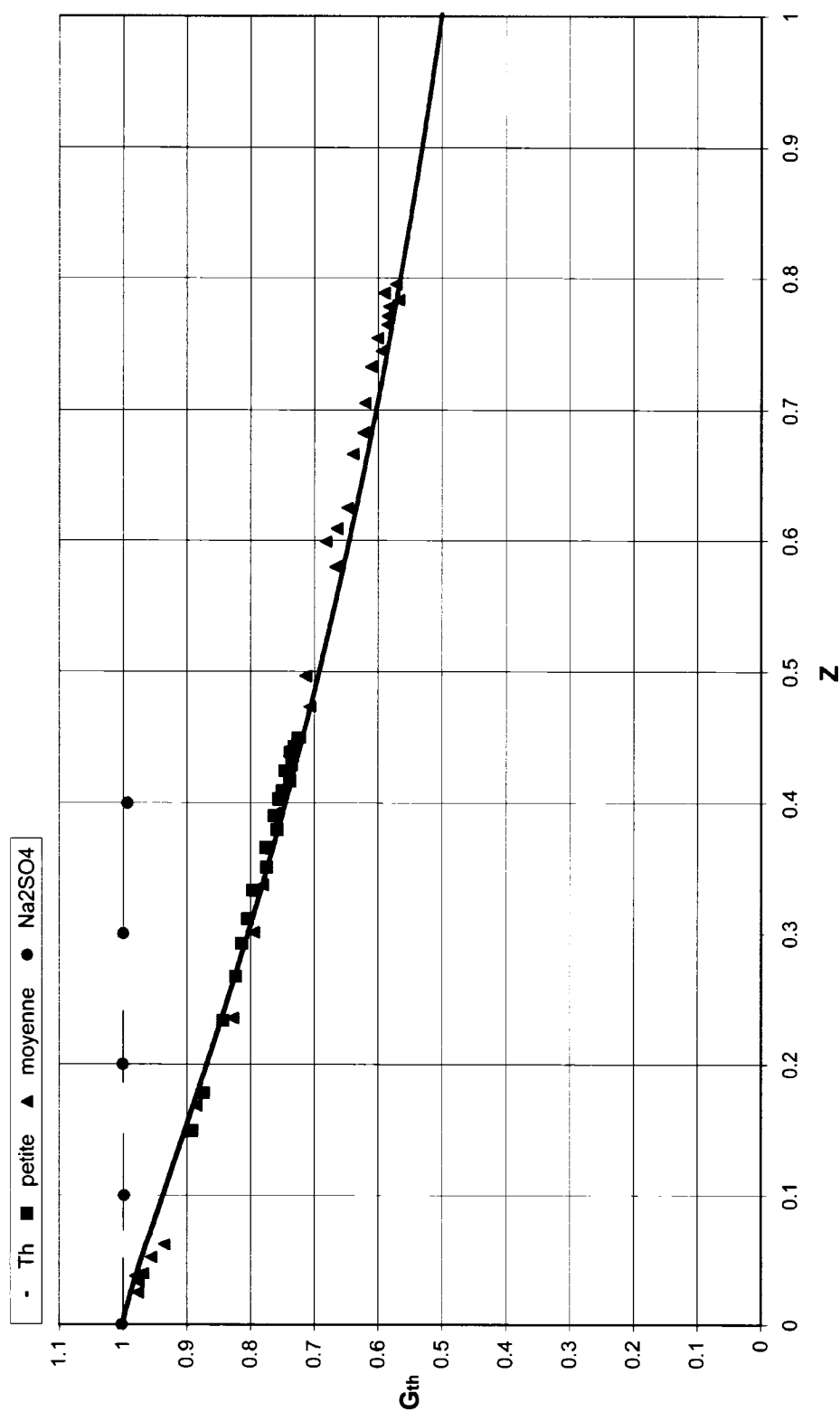


Figure 3.14 La courbe théorique et les résultats expérimentaux dans le site 1 avec $K_g = 0,42$

En conclusion, à l'aide de la méthode des moindres carrés, nous avons définitivement déterminé les valeurs pour les constantes K , K_g et p . Leurs valeurs pour les sites 6 et 8 sont respectivement: $K = 0,36$; $K_g = 0.5$; $p = 1$. Pour le site 1, ces valeurs sont les suivantes: $K = 0.29$; $K_g = 0.5$; $p = 1$. Les différences des valeurs de K pour le site 1 et les sites 6 et 8 sont explicables. Rappelons ce que représente la constante K , à partir de la formule 2.19 :

$$K = \frac{k \cdot \sigma_{cl} \cdot N_A}{\pi \cdot M_{a(Cl)}} \quad (2.19)$$

Il est évident que K change de valeur pour chaque élément en dépendance de sa masse atomique et de sa section efficace d'absorption pour des neutrons thermiques. En même temps, K dépend aussi du k qui, au plan physique, représente l'influence du réflecteur autour du site d'irradiation (dans notre cas, le béryllium pour le site 1 et l'eau pour les sites 6 et 8). Il est possible que k dépende aussi d'autres facteurs que nous n'avons pas pris en considération parce qu'ils ne sont pas manifestés pendant nos expériences. Nous pouvons réunir les k , π et N_A en une nouvelle constante :

$$K = \frac{k \cdot N_A}{\pi} \quad (3.5)$$

Donc, la formule (2.19) prend la forme suivante :

$$K = \kappa \frac{\sigma_{th}}{M_a} \quad (3.6)$$

En utilisant la formule (3.6), et les valeurs de $\sigma_{a(th)}$, M_a pour Cl (Chart of the Nuclides (2002)) nous avons calculé les valeurs de κ pour l'eau et le béryllium : ($\kappa_{eau} = 0.38$, $\kappa_{ber} = 0.3$)

De cette façon, une fois obtenue la valeur expérimentale de K pour le Cl, nous sommes en mesure de calculer la constante K pour n'importe quel élément, en utilisant la formule suivante :

$$K_x = \kappa_{refl} \frac{\sigma_{th(x)}}{M_{a(x)}} \quad (3.7)$$

Où :

$\sigma_{th(x)}$ est la section efficace d'absorption des neutrons thermiques pour l'élément X

$M_{a(x)}$ est la masse atomique d'élément X.

Ces formules nous permettent maintenant de déterminer l'auto absorption de neutrons thermiques pour tous les éléments absorbeurs et tous les sites d'irradiation. Le K_g de 0.5

a été vérifié dans les sites d'irradiation 1, 6 et 8. Cependant, nous ne pouvons pas nécessairement conclure que cette valeur est bonne pour tous les sites d'irradiation de tous les réacteurs de recherche. Les valeurs de κ (0,38 pour l'eau ; 0,3 pour le béryllium) aussi ne sont pas nécessairement valides pour les autres sortes de réflecteurs (eau lourde, graphite) moins communs.

En utilisant les valeurs obtenues et en particulier les valeurs de $p=1$, $K_g=0.5$, nous pouvons maintenant écrire la formule complète de l'auto absorption de neutrons thermiques en simplifiant notre formule théorique comme suit :

$$G_{th} = \frac{1}{1 + Z} \quad (3.8)$$

$$G_{th} = \frac{1}{1 + \frac{m \cdot \kappa \frac{\sigma_{th}}{M_a}}{(R^2 + RH) \cdot \left(1 - \left(\frac{0,5R}{R_s}\right)\right)}} \quad (3.9)$$

Les résultats finaux avec ces constantes sont visualisés sur les Figures 3.15 et 3.16. Nous pouvons observer que la courbe théorique est bien ajustée aux points expérimentaux. Donc, nous avons trouvé les bonnes constantes.

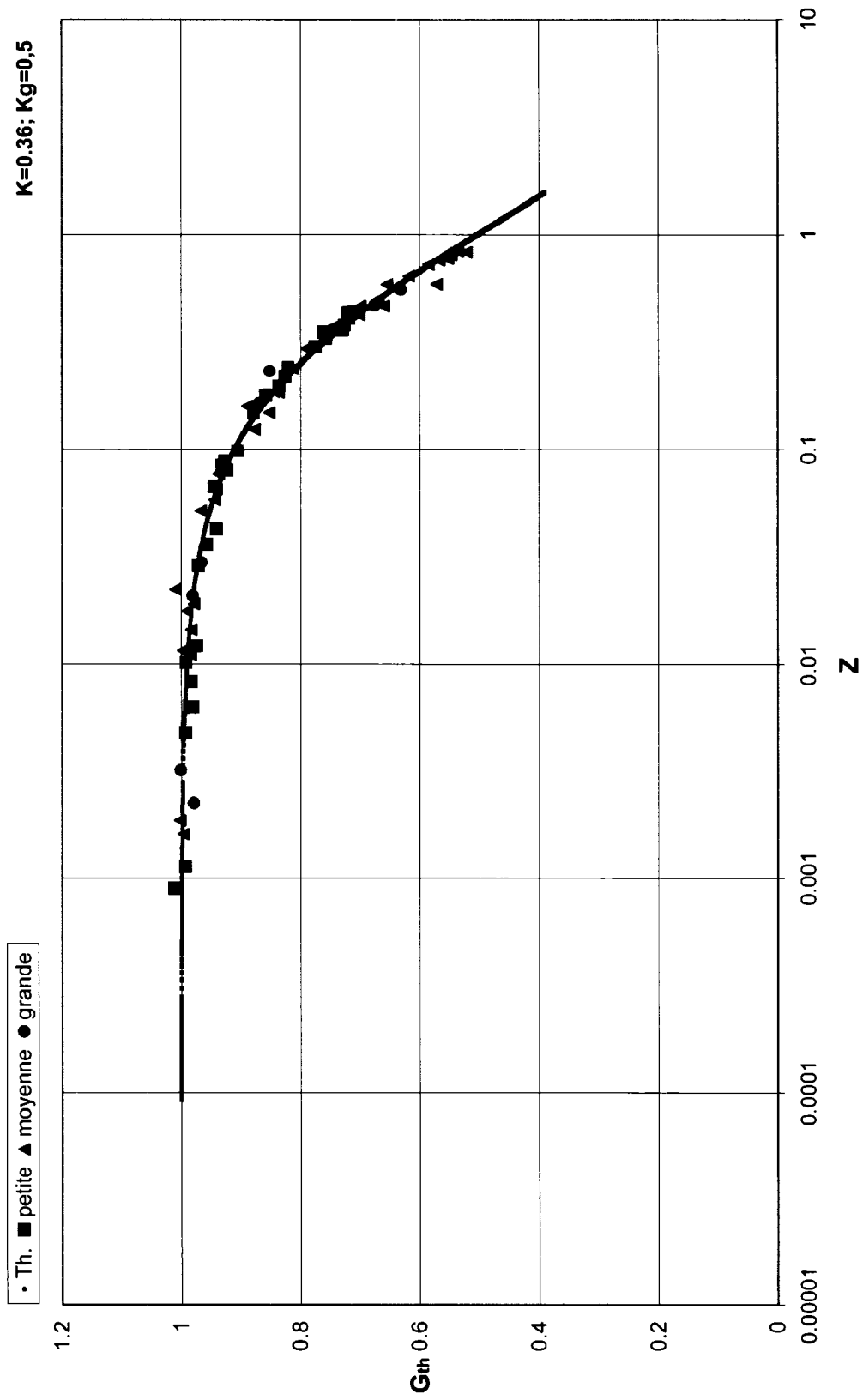


Figure 3.15 La courbe théorique et les résultats expérimentaux dans les sites 6 et 8 avec $K = 0.36$ et $K_g = 0.5$

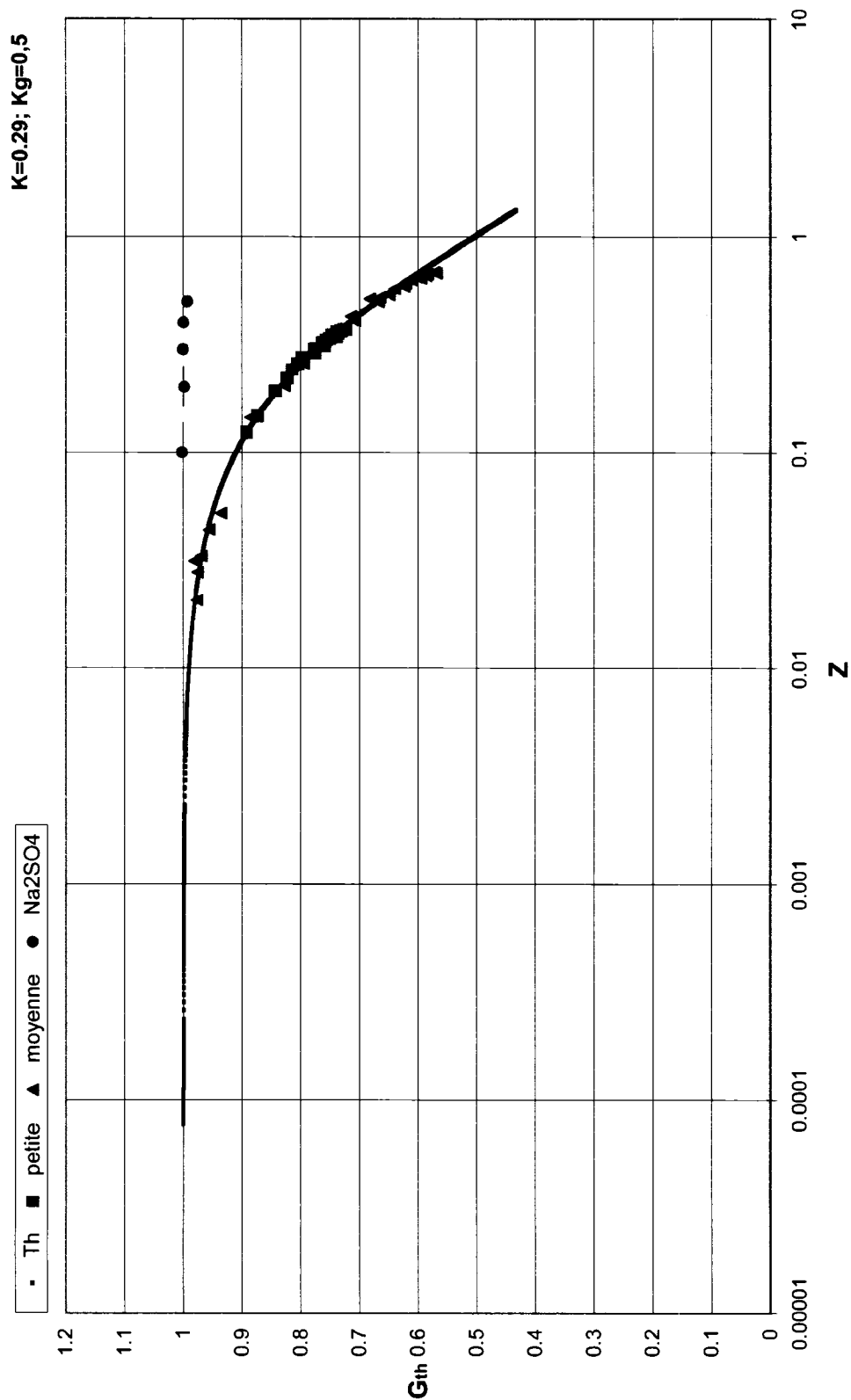


Figure 3.16 La courbe théorique et les résultats expérimentaux dans le site 1 avec $K = 0.29$ et $K_g = 0.5$

Conclusion

L'objectif principal de trouver la relation entre la quantité d'un élément absorbeur de neutrons et le flux thermique moyen dans un échantillon a été atteint. L'applicabilité et la validité de cette relation pour tous les sites d'irradiation et toutes les géométries d'échantillons ont été étudiées. Les résultats obtenus de ces études nous ont permis de raffiner la formule décrivant le phénomène d'auto absorption pour des échantillons cylindriques d'éléments ayant une grande section efficace d'absorption de neutrons thermiques. La nouvelle formule tient compte de la réflexion des neutrons par l'eau ou le béryllium entourant le site d'irradiation, ainsi que de toutes les géométries d'échantillons et de sites d'irradiation.

Dans le but d'atteindre nos objectifs, une méthodologie du travail permettant d'obtenir des résultats précis et d'éviter des erreurs qui peuvent se produire lors de la préparation, l'irradiation et le comptage des échantillons a été mise au point et appliquée.

Le temps réel de l'irradiation, et son incertitude, dans les sites 1, 2, 6 et 8 a été mesuré et une solution technique qui pourra rendre le temps d'irradiation plus précis a été proposée.

Les flux neutroniques relatifs dans les sites 6 et 8 par rapport au site 1 ont été déterminés. Les travaux expérimentaux ont démontré de quelle manière la présence d'un élément absorbeur des neutrons influence le flux neutronique près de l'échantillon. Ceci a clarifié

la compréhension de la manière qu'un échantillon absorbeur modifie le flux de neutrons réfléchissent dans les matériaux du site d'irradiation.

Nos recherches ont aidé aussi à élargir l'application de l'analyse par activation neutronique pour les échantillons contenant les éléments ayant des sections efficaces d'absorption élevées pour des neutrons thermiques. Par exemple, auparavant, il était impossible d'analyser un échantillon d'une masse de 1 g contenant plus que 10% de Cl. L'erreur causée par le phénomène d'auto protection était considérable et inconnue. Aujourd'hui, en appliquant la théorie développée lors de nos recherches, nous sommes en mesure de faire une analyse précise d'un échantillon contenant jusqu'à 60% de Cl; c'est la concentration de Cl trouvé dans le PCV (vinyle). Connaissant la grande présence dans notre environnement du Cl et d'autres éléments absorbeurs de neutrons, un plus grand nombre de substances est maintenant analysable par activation neutronique.

Pendant notre travail, nous avons affronté plusieurs problèmes et questions qui peuvent constituer eux mêmes la base pour des recherches futures. Ainsi, notre travail expérimental et théorique a tracé les problématiques qui devront être analysées et résolues : recherches sur d'autres éléments ayant de grandes sections efficaces d'absorption pour des neutrons thermiques et vérification de la validité des constantes pour ces éléments; recherches sur la variation du flux neutronique à l'intérieur de l'échantillon; vérification de l'applicabilité de nos résultats pour d'autres réacteurs, avec d'autres géométries de sites d'irradiation et d'autres géométries d'échantillons.

RÉFÉRENCES

Chart of the Nuclides. Knoll atomic power laboratory sixteen edition - revised to 2002.

Copley, J.R.D. (1991). *Scattering effects within an absorbing sphere immersed in a field of neutrons*. Nuclear Instruments and Methods A307, 389-397.

EACL. (1975). *Slowpoke*. IND-64 F 9/75, Énergie Atomique du Canada Limitée, Ottawa, Canada.

El Hajjaji, O. (1999). *La physique du réacteur SLOWPOKE-2 de l'École Polytechnique*. Thèse de Doctorat, Université de Montréal, Montréal, Canada.

E. Martinho, I.F. Gonçalves, J. Salgado. *Universal curve of epithermal resonance self-shielding factors in foils, wires and spheres*. Applied Radiation and Isotopes 58 (2003) 371-375.

E P P A, Manuel d'instruction, Version 2.20. Laboratoire SLOWPOKE-2 de l'École Polytechnique de Montréal.

I.F.Gonçalves, E.Martinho, J.Salgado, *Thermal neutron self-shielding factor in foils: a universal curve*, International Conference on Research Reactor Utilization, Safety, Decommissioning, Fuel and Waste Management, IAEA-CN-100, Santiago, Chile, 10-14, November 2003.

I.F. Gonçalves, E. Martinho, J. Salgado (2004). *Extension to cylindrical samples of the universal curve of resonance neutron self-shielding factors*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 213, 186.

Kennedy G., St-Pierre J., Wang K., Zhang Y., Preston J., Vutchkov M. (2000). *Activation constants for Slovpoke and MNS reactors calculated from the neutron spectrum and k_0 and Q_0 values*. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 245, No. 1 (2000) 167-172

Loiseaux, J.-M., Brissot, R. et coll. *Radioactivité, Radiation et Réactions Nucléaires: une brève introduction*, Grenoble, France, 2003.

Meyerhof, W. E. (1970). *Éléments de Physique Nucléaire*. Maîtrise de Physique. Certificat C3, Dunod, Paris, France.

Perdijon, J. (1967). *L'analyse par activation. Traitement des informations en spectrométrie gamma après irradiation aux neutrons*. Masson et C^{ie} éditeurs, Paris, France.

Rozon, D. (1992). *Introduction à la cinétique des réacteurs nucléaires*. Éditions de l'École Polytechnique de Montréal, Montréal, Canada.

Zikovsky, L. (1999). *Analyse par activation. Notes de cours*. Institut de Génie Nucléaire, École Polytechnique de Montréal, Montréal, Canada.