

Algérienne Démocratique et Populaire République
Ministère de l'enseignement Supérieur et de la Recherche
Scientifique

Université Saad Dahleb Blida 1

Faculté des Sciences

Département de physique

THÈSE DE DOCTORAT

Présentée en vue de l'obtention de diplôme de
doctorat 3^{ème} cycle en physique

Spécialité : Physique des rayonnements

Présentée par :

ADDALI Sabah el houda

Calcul Monte Carlo du facteur d'auto-Absorption pour Analyse par
Activation Neutronique Instrumentale : Détermination de la
Concentration des Lanthanides dans les Phosphates

Devant le jury composé de :

A. Aouabad	Professeur	U. Blida 1	Président
F. Benrachi	Professeur	U. Mentouri Constantine	Examinatrice
M.Ould Mohamed	MCA	U. Blida 1	Examineur
R. Khelifi	Professeur	U. Blida1	Directeur de Thèse
A. Azbouche	Chercheur senior	CRNA	Co-directeur de Thèse
S. Benarous	Chercheur Principale	CRNA	Invitée

Blida 2024

Résumé

Dans ce travail, la technique d'analyse par activation neutronique instrumentale a été exploitée pour la détermination précise des concentrations des lanthanides présentes dans les échantillons de phosphate collectés au niveau du gisement de phosphate de Jebel El Onk, dans l'est de l'Algérie, qui contient d'importantes ressources minérales, l'uranium et de thorium, avec des réserves estimées à plus de 2 milliards de tonnes dans cette région. L'Analyse par Activation Neutronique Instrumentale (INAA) est une méthode très efficace pour l'analyse des éléments à faible teneur dans les échantillons environnementaux, notamment les phosphates. Mais la présence des REEs et de phosphore dans l'échantillon de phosphate affecte la limite de détection de la technique.

L'irradiation des échantillons de phosphate sous un flux neutronique dans un réacteur nucléaire est affectée par la perturbation locale de flux de neutrons produits principalement par l'échantillon. La présence du phosphore dans la matrice de phosphate conduit à la production du ^{32}P sous irradiation par un flux de neutrons. Ce radioélément présente un spectre de Bremsstrahlung (bruit de fond) qui influe sur le spectre gamma des éléments de terres rares dans l'échantillon, affectant ainsi les limites de détection de la méthode. Pour assurer une analyse d'une grande précision, des corrections des paramètres d'irradiation et de mesure doivent être effectuées.

Une méthodologie d'analyse a été développée en se basant sur des simulations Monte Carlo et de mesures expérimentales pour la calibration de l'efficacité du détecteur Ge(Hp), l'optimisation de l'épaisseur du filtre pour réduire le bruit de Bremsstrahlung et l'estimation du facteur d'auto-absorption des neutrons thermiques et épithermiques.

La méthodologie développée a permis l'amélioration des limites de détection permettant une haute précision pour la détermination des teneurs en REEs tels que le La, Nd, Eu, Sm, Ce, Tb, Yb et Hf dans les échantillons de phosphate des gisements de Bled El Hadba. Les résultats obtenus peuvent servir comme une base de données précieuses pour la future exploitation de ces ressources.

Mots clés : Analyse par activation neutronique instrumentale ; Auto-absorption des neutrons ; simulation Monte-Carlo ; Réduction du spectre bêta ; Limite de détection ; Concentrations de lanthanides ; Phosphate.

ملخص

في هذا العمل، تم استغلال تقنية تحليل التنشيط النيوتروني لتحديد دقيق لتركيزات اللانثانيدات الموجودة في عينات الفوسفات التي تم جمعها من رواسب فوسفات جبل العنق، في شرق الجزائر، والتي تحتوي على موارد معدنية كبيرة، واليورانيوم والثوريوم وتقدر الاحتياطيات بأكثر من 2 مليار طن في هذه المنطقة. يعد التحليل الآلي لتنشيط النيوترونات (INAA) طريقة فعالة للغاية لتحليل العناصر ذات المستوى المنخفض في العينات البيئية، ولا سيما الفوسفات. لكن وجود العناصر الأرضية النادرة والفوسفور في عينة الفوسفات يؤثر على حد اكتشاف هذه التقنية.

يتأثر تشعيع عينات الفوسفات تحت تدفق النيوترونات في مفاعل نووي بالاضطراب المحلي لتدفقات النيوترونات التي تنتجها العينة بشكل رئيسي. يؤدي وجود الفوسفور في مصفوفة الفوسفات إلى إنتاج ^{32}P تحت إشعاع التدفق الحراري. يقدم هذا العنصر الراديوي طيف Bremsstrahlung (الخلفية) الذي يؤثر على طيف جاما للعناصر الأرضية النادرة في العينة. مما يؤثر على حدود الكشف عن الطريقة. ولضمان تحليل دقيق للغاية، يجب إجراء تصحيحات على معلمات التشعيع والقياس.

وقد تم تطوير منهجية التحليل الأمثل. استنادًا إلى عمليات محاكاة مونت كارلو والقياسات التجريبية لمعايرة كفاءة كاشف HPGe، وتحسين سماكة المرشح لتقليل ضوضاء Bremsstrahlung، وتقدير عامل الامتصاص الذاتي للنيوترون الحراري والحراري.

سمحت المنهجية التي تم تطويرها بتحسين حدود الكشف مما يسمح بدقة عالية لتحديد محتويات العناصر الأرضية النادرة مثل La و Nd و Eu و Sm و Ce و Tb و Yb و Hf في عينات الفوسفات من رواسب بليد الهضبة. ويمكن أن تكون النتائج التي تم الحصول عليها بمثابة قاعدة بيانات قيمة للاستغلال المستقبلي لهذه الموارد.

الكلمات المفتاحية: التحليل بواسطة التنشيط النيوتروني الآلي؛ الامتصاص الذاتي للنيوترونات؛ محاكاة مونت كارلو؛ الحد من طيف بيتا. الحد من الكشف؛ تركيزات اللانثانيدات. فوسفات.

Abstract

In this work, the instrumental neutron activation analysis technique was exploited for the precise determination of the concentrations of lanthanides present in phosphate samples collected from the Jebel El Onk phosphate deposit, in eastern Algeria, which contains significant mineral resources, uranium, and thorium, with reserves estimated at more than 2 billion tones in this region. Instrumental Neutron Activation Analysis (INAA) is a very effective method for analyzing low-level elements in environmental samples, notably phosphates. However, the presence of REEs and phosphorus in the phosphate sample affects the detection limit of the technique.

The irradiation of phosphate samples under a neutron flux in a nuclear reactor is affected by the local disruption of the neutron flux produced mainly by the sample. The presence of phosphorus in the phosphate matrix leads to the production of ^{32}P under thermal flow irradiation. This radioelement presents a Bremsstrahlung (background) spectrum which influences the gamma spectrum of the rare earth elements in the sample. Thus, affecting the detection limits of the method. The irradiation and measurement parameters must be corrected to ensure highly accurate analysis.

An analysis methodology has been developed. based on Monte Carlo simulations and experimental measurements for the calibration of the efficiency of the HPGe detector, the optimization of the filter thickness to reduce Bremsstrahlung noise, and the estimation of the neutron self-absorption factor thermal and epithermal.

The methodology developed improved the detection limits allowing high precision for determining the contents of REEs such as La, Nd, Eu, Sm, Ce, Tb, Yb, and Hf in phosphate samples from the Bled El deposits Hadba. The results obtained can serve as a valuable database for the future exploitation of these resources.

Keywords: instrumental neutron activation Analysis; neutron self-shielding; Monte Carlo simulation; Reduction of the beta spectrum; detection Limit; Lanthanide concentrations; Phosphate.

Remerciements

Je tiens à exprimer ma plus profonde gratitude à toutes les personnes qui ont contribué à la réalisation de cette thèse.

Tout d'abord, je souhaite également adresser mes remerciements les plus chaleureux à mon directeur de thèse, **Le professeur Khelifi Rachid**. Son regard complémentaire, ses suggestions pertinentes et son soutien constant ont grandement enrichi ce projet.

Je remercie sincèrement mon co-directeur de thèse **Monsieur Azbouche Ahmed, Chercheur senior (CRNA)**, ses précieux conseils et son soutien indéfectible tout au long de ces années de recherche. Son expertise et sa rigueur scientifique ont été essentielles pour la réussite de ce travail.

Je remercie également les membres du jury **Monsieur A. Aouabad** professeur à université Blida 1 et **Madame F. Benrachi** professeur à université de Constantine, pour avoir accepté d'évaluer ce travail. Leur temps, leurs critiques constructives et leurs remarques éclairées ont permis d'améliorer significativement cette thèse.

L'expression de mon profond respect m'est adressée à **Monsieur M. Ould Mohamed, MCA** à l'USDB 1 d'avoir accepté de revoir cet ouvrage.

Je remercie **Madame Benarous Samiha**, pour sa supervision exceptionnelle pour ses conseils avisés et son soutien constant ont été des éléments déterminants pour la réussite de ce travail. Également pour les nombreuses discussions enrichissantes, ses encouragements et sa patience qui m'ont permis de surmonter les défis rencontrés au cours de cette thèse.

Je n'oublie pas l'équipe du laboratoire des applications nucléaire CRNA, en particulier A. ARABI sans qui ce travail n'aurait pas pu voir le jour.

Merci à tous mes collègues pour leur aide précieuse, leur collaboration et les moments de convivialité qui ont jalonné ces années de recherche.

Enfin, je tiens à remercier ma famille et mes amis pour leur soutien moral et leur patience tout au long de cette aventure.

Dédicace

À ma famille, mes amis et à ceux qui ont occupé mon cœur,

Ce travail de thèse représente bien plus qu'une simple compilation de mots et d'idées. Il incarne les nombreuses heures de réflexion, de recherche et de détermination qui ont jalonné mon parcours académique. Tout au long de cette aventure, votre soutien inébranlable a été ma source de force et d'inspiration.

À mes parents, pour votre amour inconditionnel, votre encouragement constant et votre soutien indéfectible. Chaque étape de ce voyage a été enrichie par votre présence à mes côtés, et je suis infiniment reconnaissant pour les sacrifices que vous avez consentis pour que je puisse atteindre mes objectifs.

À ma sœur, pour ta bienveillance infinie, ton écoute attentive et tes encouragements constants. Tu as toujours été là pour moi, avec ta sagesse et ton soutien inébranlable. Cette thèse est également la tienne, car tu as été ma source d'inspiration depuis le tout début.

À mes frères, pour votre soutien indéfectible, vos conseils avisés et votre présence rassurante. Chacun de vous a joué un rôle essentiel dans mon parcours, me rappelant toujours de viser haut et de croire en mes rêves.

À mes amis, pour votre soutien sans faille, vos encouragements enthousiastes et vos éclats de rire qui ont illuminé même les jours les plus sombres de cette entreprise. Votre amitié a été un précieux réconfort et une source d'équilibre tout au long de ces années de recherche.

À vous tous, je dédie humblement ce travail. Puissent ces pages être le reflet de ma gratitude éternelle et de mon amour inconditionnel.

Avec tout mon amour et ma reconnaissance.

Table des matières

ملخص.....	III
Remerciements.....	V
Introduction.....	1
CHAPITRE 1 : Interaction Rayonnement -Matière	5
1. Interaction des rayons gamma avec la matière.....	5
1.1. Interaction Rayleigh.....	5
1.2. Effet photoélectrique.....	6
1.3. Diffusion Compton	7
1.4. Création de Paires	8
1.5. Atténuation d'un faisceau de photons dans la matière.....	9
2. Interaction des électrons avec la matière.....	10
2.1. Interaction avec les électrons atomiques	11
2.2. Interaction avec le champ de noyau atomique.....	11
2.3. Parcours de l'électron dans la matière.....	12
3. Interaction du neutron avec la matière.....	12
3.1. Propriétés des neutrons.....	12
3.2. Sources de neutrons	15
3.3. Interaction de neutron avec la matière	19
CHAPITRE 2 : Analyse par Activation Neutronique Instrumentale et Approche Monte Carlo.....	23
2.1. Analyse par Activation Neutronique Instrumentale.....	24
2.1.1. Principe de la technique INAA	24
2.1.2. Equation fondamentale de l'analyse par activation neutronique	25
2.1.3. Analyse qualitative et quantitative	26
2.1.3.1. Analyse qualitative	26
2.1.3.1.1. Interférence de premier ordre.....	26
2.1.3.1.2. Interférence de deuxième ordre.....	27
Mesures spectrométriques.....	27
Chaîne de mesure.....	28
2.1.3.2. Analyse quantitative	32
2.1.4. Application de la technique INAA.....	34
2.1.5. Facteur d'auto-absorption des neutrons (Self-Shielding).....	34
2.1.6. Limite de détection.....	35
2.2. Approche Monte Carlo.....	36
2.2.1. Introduction	36
2.2.2. Code MCNP5.....	38

2.2.3. Fichier input de code MCNP5	38
A) La géométrie	39
B) carte de données	42
CHAPITRE 3 : Matériels et Méthodes	44
Chapitre 3 : Matériels et Méthodes	45
3.1. Préparation des échantillons et irradiation	45
3.2. Mesures spectrométriques	45
3.2.1. Etalonnage de la chaîne de mesure	46
3.2.1.1. Calibration en énergie	46
3.2.1.2. Calibration en efficacité	47
3.3. Mesures des échantillons irradiés	48
3.4. Procédure de la simulation Monte Carlo	50
3.4.1. Optimisation des paramètres de mesure	50
3.4.1.1. <i>Simulation d'une source ponctuelle -détecteur</i>	50
3.4.1.2. <i>Simulation de la configuration de mesure d'une source parallélépipède- détecteur</i>	54
3.4.1.3. <i>Procédure de réduction de Bremsstrahlung dû au ³²P</i>	59
3.4.1.3.1. Simulation du spectre beta	59
3.4.1.3.2. Choix de filtre atténuateur	60
3.4.1.3.3. Limite de détection (DL)	67
3.4.1.3.4. Correction de l'atténuation des gammas	68
3.4.2. Optimisation des paramètres d'irradiation (Simulation de facteur d'auto-absorption des neutrons)	69
Chapitre 4 : Application du modèle optimisé pour la détermination des lanthanides dans les échantillons de phosphate	73
4.1. Zone d'étude	74
4.2. Détermination de la concentration des lanthanides	75
4.3. Méthodologie optimisée pour le dosage des REEs	76
4.4. Application des modèles de correction pour la détermination de la concentration des lanthanides	78
4.5. Correction des interférences de second ordre	80
4.5.1. Lanthane ¹⁴⁰ La	80
4.5.2. Néodyme ¹⁴⁷ Nd	81
Conclusion générale	83
Conclusion générale	84
Références	87
Annexe 1	95
Annexe 2	97

Listes des Figures

CHAPITRE 1 : Interaction Rayonnement -Matière

Figure 1. 1: Types d'interaction prédominantes en fonction de l'énergie de photon et du numéro atomique Z du matériau traversé	5
Figure 1. 2 : Diffusion Rayleigh.....	6
Figure 1. 3: Effet photoélectrique	7
Figure 1. 4:Diffusion Compton	8
Figure 1. 5: Création de paire	8
Figure 1. 6: Coefficient d'atténuation massique de l'aluminium et de l'eau en fonction de l'énergie de photon incident	10
Figure 1. 7: Interaction des électrons avec la matière	11
Figure 1. 8 : Parcours de l'électron dans la matière	12
Figure 1. 9: Spectre de neutron	14
Figure 1. 10: Réaction en chaine	15
Figure 1. 11: Contrôle des réactions en chaine	16
Figure 1. 12: Spectre de neutron des sources Be (α , n)	18
Figure 1. 13: Types de réactions induites par les neutrons	19
Figure 1. 14: Diffusion élastique	20
Figure 1. 15: Diffusion inélastique	21

CHAPITRE 2 : Analyse par Activation Neutronique Instrumentale et Approche Monte Carlo

Figure 2. 1: Principe de la INAA	24
Figure 2. 2: Spectre gamma mono-énergétique des différents événements produit	28
Figure 2. 3: Chaîne de mesure de la spectrométrie gamma	28
Figure 2. 4: Définition de la résolution en énergie pour un pic gaussien	30
Figure 2. 5: Historique d'une particule dans un milieu ralentisseur	37

CHAPITRE 3 : Matériels et méthodes

Figure 3. 1: Procédure de préparation de la capsule d'irradiation	45
Figure 3. 2: Dispositif expérimental de la technique de spectrométrie gamma	46
Figure 3. 3: Droite d'étalonnage de la chaîne de mesure	47
Figure 3. 4 : Courbe d'efficacité expérimentale du détecteur.....	48
Figure 3. 5 : Spectre d'un échantillon de phosphate pour les moyennes périodes	49
Figure 3. 6 : Géométrie du détecteur simulé par MCNP5	51
Figure 3. 7: Spectre qualitatif de ^{152}E expérimental et simulé par MCNP5	52
Figure 3. 8: Courbe d'efficacité expérimentale et simulée de détecteur par MCNP5.....	53
Figure 3. 9: Spectre qualitatif d'une matrice de phosphate par la technique ED- XRF	55
Figure 3. 10: Géométrie du détecteur-matrice de phosphate simulée par MCNP5 suivant l'axe XZ ...	56
Figure 3. 11 : Spectre qualitatif des REEs simulé par MCNP5.....	57
Figure 3. 12: Efficacité simulée par MCNP5 à 17cm.....	58
Figure 3. 13: Efficacité simulée par MCNP5 a 8.5cm.....	58
Figure 3. 14: Spectre bêta émis par le ^{32}P obtenus par MCNP5.....	60

Figure 3. 15: Configuration de mesure échantillon de phosphate-filtre-détecteur simulée par MCNP.	61
Figure 3. 16: Spectre beta sans et avec filtre de l'aluminium.....	62
Figure 3. 17: Spectre beta du P-32 filtré par des filtres d'aluminium de différentes épaisseurs.....	62
Figure 3. 18 : Spectre beta avec un filtre d'aluminium et un filtre de plomb	63
Figure 3. 19: Spectre expérimentale d'un échantillon de phosphate sans et avec filtre aluminium.....	65
Figure 3. 20 : Amélioration de la limite de détection avec et sans filtre en aluminium	68
Figure 3. 21: Mode de simulation de facteur d'auto absorption des neutrons thermique et épithermique.....	68

CHAPITRE 4 : Application du modèle optimisé pour la détermination des lanthanides dans les échantillons de phosphates

Figure 4. 1: Classification des lanthanides dans le tableau périodique.....	73
Figure 4. 2: Site de Jebel el Onk	75
Figure 4. 3: Méthodologie suivie pour l'optimisation du dosage des REEs	77
Figure 4. 4: Concentration des REEs avant et après l'utilisation de filtre.....	79
Figure 4. 5 : Concentration de ¹⁴⁷ Nd et ¹⁴⁰ La avant et après correction d'interférence de second ordre.	82

Listes des tableaux

CHAPITRE 1 : Interaction Rayonnement -Matière

Tableau 1. 1: Classification de neutron selon leur énergie	13
Tableau 1.2 : Caractéristiques des sources Be (α , n).....	17

CHAPITRE 2 : Analyse par activation neutronique instrumentale et l'approche Monte Carlo

Tableau 2. 1: Réactions de fission interférentes pour lors du dosage des REEs	27
Tableau 2. 2: Unités de quelques constantes des bases utilisées dans le code MCNP5	38
Tableau 2. 3 : Bibliothèque des cartes des surfaces dans le code MCNP.....	41

CHAPITRE 3 : Matériels et méthodes

Tableau 3. 1: Dimensions du détecteur Ge (Hp)	50
Tableau 3. 2: Epaisseur de la couche morte après ajustement	51
Tableau 3. 3: Valeurs de l'efficacité expérimentale et simulée	53
Tableau 3. 4: la composition élémentaire de la matrice de phosphate par XRF	55
Tableau 3.5: Les valeurs d'efficacités du détecteur pour les éléments lanthanides déterminés par MCNP5 et réaction nucléaire utilisée pour la détermination des lanthanides	59
Tableau 3. 6: les différents filtres utilisés	61
Tableau 3. 7: Intensités de pic d'absorption totale des REEs avant et après l'utilisation de filtre	66
Tableau 3. 8: Limite de détection pour REE avant et après l'utilisation de filtre	67
Tableau 3.9: Intensité des pics d'absorption totale de REEs avant et après correction de l'atténuation de filtre.....	69
Tableau 3. 10: Facteur de self-Shielding des neutrons thermiques et épithermiques	70

CHAPITRE 4 : Application du modèle optimisé pour la détermination des lanthanides dans les échantillons de phosphates

Tableau 4. 1: Concentration d'éléments lanthanides (ppm) dans des échantillons de phosphate de Jebel el Onk par analyse instrumentale par activation neutronique (INAA)	75
Tableau 4. 2: Concentration d'éléments lanthanides (ppm) dans des échantillons de phosphate de Jebel el Onk par analyse instrumentale par activation neutronique (INAA)après toutes les corrections	78
Tableau 4. 3: Concentration en ppm de ^{147}Nd et ^{140}La sans et après corrections d'interférence	81

Liste des équations

CHAPITRE 1 : Interaction Rayonnement -Matière

$\hbar\nu = E - El$	1.1	6
$E\gamma' = E\gamma1 + E\gamma mec2(1 - \cos\theta)$	1.2	7
$h\nu = h\nu' + E\acute{e} + Ee +$	1.3	8
$.dI dx = -\mu I$	1.4	9
$I = I0e - \mu x$	1.5	9
$\mu = n\sigma tot$	1.6	9
Il est exprimé par la relation suivante : $R = E0(dEdx) - 1 dE$	1.7	12
$E = k\beta T$	1.8	13
$Eth = 0 \infty EnE dE = 32k\beta T$	1.9	14
$Er = En4A(1 + A)2\cos2\theta$	1.10	20

CHAPITRE 2 : Analyse par Activation Neutronique Instrumentale et Approche Monte Carlo

$R = N00 \infty \varphi(E)\delta(E)dE$	2.1	25
$R0 = Rth + Re\pi i = N0 (\Phi\pi i I0 + \Phi th\sigma th)$	2.2	25
$dN(t)dt = R - \lambda N(t)$	2.3	25
$Nt = R\lambda 1 - e - \lambda ti$	2.4	25
$As = m\theta NA M (\Phi\pi i I0 + \Phi th\sigma th)$	2.5	25
$At = As S D$	2.6	25
$As = m\theta NA M (Gth\Phi th\sigma th + Ge\pi i\Phi\pi i I0)$	2.7	26
$R(\%) = FWHME \times 100$	2.8	30
$\epsilon a = \frac{\text{Nombre de rayonnements détectés}}{\text{Nombre de rayonnements émis}}$	2.9	31
$\epsilon i = \frac{\text{Nombre de rayonnements détectés}}{\text{Nombre de rayonnements pentrant dans le détecteur}}$	2.10	31
$Np = AsS\epsilon ytdtd + tce -$	2.11	32
$Np = As\epsilon y SDC$	2.12	32
$m = M\lambda Np/\theta NA \epsilon y\Phi\pi i Ge\pi i I0 + \Phi thGth\sigma th1 - e - \lambda tie - \lambda td1 - e - \lambda tc$	2.13	32
$\Delta mm = \Delta\varphi\varphi 2 + \Delta NpNp 2 + \Delta I I 2 + \Delta\sigma\sigma 2 + \Delta\epsilon\epsilon 2$	2.14	33
$NsamNst = msam(e - \lambda td)sammst(e - \lambda td)st$	2.15	33
$DL = 2.71 + 4.65\sqrt{B}$	2.16	35

Liste d'abréviation

REEs	Eléments de terre rares
INAA	Analyse par Activation Neutronique Instrumentale
ICP MS	Spectrométrie de masse à plasma à couplage inductif
ICP-AES	Spectrométrie d'émission atomique à plasma à couplage inductif
ID-TIMS	Dilution isotopique-thermique, spectrométrie de masse à ionisation
Ge(hp)	Détecteur au germanium de haute pureté
ED-XRF	Spectrométrie par fluorescence X a dispersion d'énergie
Ppm	Partie par million
G_{th}	Facteur d'auto-absorption des neutrons thermique
$G_{épi}$	Facteur d'auto-absorption des neutrons épithermique
Φ_{th}	Flux thermique
$\Phi_{épi}$	Flux épithermique

Introduction Générale

Introduction

Les technologies basées sur les éléments de terres rares (REEs) soutiennent un éventail de plus en plus large de secteurs industriels. Le rôle crucial des REEs dans les industries de haute technologie a créé une hausse de la demande dépassant rapidement l'offre mondiale connue. La dépendance croissante à l'égard des REEs a intensifié la concurrence mondiale pour identifier de nouvelles ressources probables [1]. Dans la nature, les REEs (La, Ce, Nd, Sm, Eu, Tb, Ho et Yb) n'existent pas en tant que métaux natifs individuels ; ils sont présents ensembles dans de nombreux minerais ; silicates, carbonates, oxydes et phosphates. Certains gisements de phosphate dans le monde en contiennent jusqu'à 2 000 ppm, et jusqu'à 18,000 mg/g ont été trouvés dans les gisements de phosphate de type sédimentaire. Les écarts dépendent principalement de l'origine et de la géologie du site, ce qui suggère que les gisements sédimentaires de phosphate constituent des ressources à fort potentiel pour les REEs.

Ces dernières années, de nombreuses études ont été réalisées pour déterminer la concentration des lanthanides dans les phosphates dans le monde. Dans les recherches récentes, les concentrations des lanthanides sont généralement déterminées par spectrométrie de masse à plasma à couplage inductif (ICP MS), spectrométrie d'émission atomique à plasma à couplage inductif (ICP-AES) et dilution isotopique-thermique, spectrométrie de masse à ionisation (ID-TIMS) [1 -2]. Ces techniques analytiques nécessitent un prétraitement avant la mesure. Par conséquent, la plupart des techniques analytiques ne répondent pas directement à la nécessité d'analyser des éléments traces [2 -5].

La technique d'analyse par activation neutronique instrumentale (INAA) présente de nombreux avantages par rapport aux autres méthodes, tels que la bonne sensibilité et la capacité de l'INAA à détecter les REEs la rendent très intéressante.

Cette technique ne nécessite aucune préparation chimique, ce qui minimise les risques de contamination chimique. De plus, la bonne sensibilité et la capacité de l'INAA à détecter les REEs la rendent plus souhaitable. Cette méthode est une technique nucléaire largement utilisée dans différents domaines, elle semble être une technique intéressante pour déterminer les métaux lourds et les REEs présents dans les échantillons biologiques, géologiques et environnementaux, et a été établie il y a plus d'un demi-siècle et est largement utilisée depuis la disponibilité de sources de neutrons à haut flux, telles que les réacteurs nucléaires [6-13].

Introduction générale

L'irradiation d'échantillons avec un flux neutronique élevé, fourni par les réacteurs nucléaires, est la première étape de l'analyse réalisée par l'INAA [12]. Lors de l'irradiation, les neutrons incidents interagissent avec les éléments cibles par des réactions de capture de neutrons (n, γ). Dans de nombreux cas, les produits de la réaction sont des noyaux instables. Ils se désintègrent généralement par émission β^- et s'accompagnent de l'émission de rayons gamma caractéristiques qui peuvent être détectés à l'aide d'un détecteur au germanium de haute pureté Ge (Hp).

La précision et la limite de détection des REEs par l'INAA dépendent des paramètres d'irradiation et de mesure ; elle dépend aussi fortement du type de matériau analysé. Pour les échantillons de phosphate, les concentrations élevées de P_2O_5 dans la matrice de phosphate affectent la sensibilité de cette méthode en raison du fond bêta de ^{32}P produit par la réaction $^{31}P (n, \gamma)^{32}P$, conduisant à une sous-estimation de la concentration des lanthanides. De plus, l'auto-absorption neutronique et les interférences de second ordre réduisent la sensibilité de la méthode.

Cette étude vise à développer une nouvelle approche d'analyse basée sur la méthode absolue de l'INAA pour évaluer les concentrations des lanthanides dans les échantillons de phosphate collectés dans le gisement de Djebel Onk, situé à l'est de l'Algérie wilaya de Tebessa.

La méthodologie développée est une combinaison de simulations Monte Carlo utilisant le code MCNP5 et de mesures expérimentales, pour réduire les sources importantes d'incertitude dans la méthode absolue telles que :

- Les paramètres d'irradiations : les facteurs d'auto-absorption des neutrons thermiques et épithermiques (ϕ_{th} , $\phi_{épi}$, G_{th} , $G_{épi}$).
- Les paramètres de mesures : l'efficacité du détecteur et l'optimisation de l'épaisseur de filtre, ainsi que les corrections des interférences liées à la contribution de la réaction de fission.

Après cela, la méthode a été utilisée expérimentalement en mesurant les échantillons de phosphate irradiés, avec le filtre en aluminium optimisé.

Les résultats montrent une amélioration des limites de détection des lanthanides et une réduction significative des incertitudes sur les concentrations des REEs.

Cette thèse est structurée en quatre parties avec un résumé et une conclusion générale.

Introduction générale

Dans le premier chapitre, nous passons en revue les principes fondamentaux de la physique nécessaires pour comprendre les mécanismes qui sous-tendent la façon dont les électrons et les neutrons, ainsi que le rayonnement électromagnétique, interagissent avec la matière.

Le deuxième chapitre, décrit la méthodologie d'analyse par activation neutronique instrumentale, des différentes techniques de détection de rayonnements basées sur des détecteurs à semi-conducteurs, des détecteurs à scintillateurs et la chaîne de détection associée, ainsi que les bases de la simulation Monte Carlo.

Dans le chapitre 3 le dispositif expérimental et la méthodologie utilisée dans cette étude notamment la spectrométrie gamma et la ED-XRF (Energy dispersive X-Ray fluorescence) sont présentées, ainsi que les modèles développés par le code MCNP5 pour l'évaluation de l'efficacité du détecteur Ge (Hp) pour les lanthanides, les facteurs d'auto-absorption des neutrons thermiques et épithermiques et l'optimisation de l'épaisseur du filtre pour la réduction du spectre bêta et leurs résultats.

Le chapitre 4 décrit l'application des résultats obtenus dans le chapitre précédent pour calculer et déterminer avec précision les concentrations des lanthanides (Ho, Sm, Ce, Yb, Hf, Nd, Tb, Eu, La) dans les échantillons de phosphate de Djebel et Onk.

Les principales conclusions et résultats de ce travail de thèse sont résumés dans la conclusion.

CHAPITRE 1 : Interaction Rayonnement - Matière

CHAPITRE 1 : Interaction Rayonnement -Matière

1. Interaction des rayons gamma avec la matière

Les rayons gamma sont des rayonnements électromagnétiques, indirectement ionisants, sans charge et sans masse. Ils sont émis lors d'une désintégration d'un noyau ou de sa désexcitation lors des transitions nucléaires internes.

Bien qu'un grand nombre de mécanismes d'interaction possibles soient connus pour les rayons gamma dans la matière, seuls trois types principaux jouent un rôle important dans les mesures des rayonnements : l'effet photoélectrique, la diffusion Compton et la production de paires. Tous ces processus conduisent au transfert partiel ou complet de l'énergie des photons gamma en énergie électronique (figure 1.1). [14]

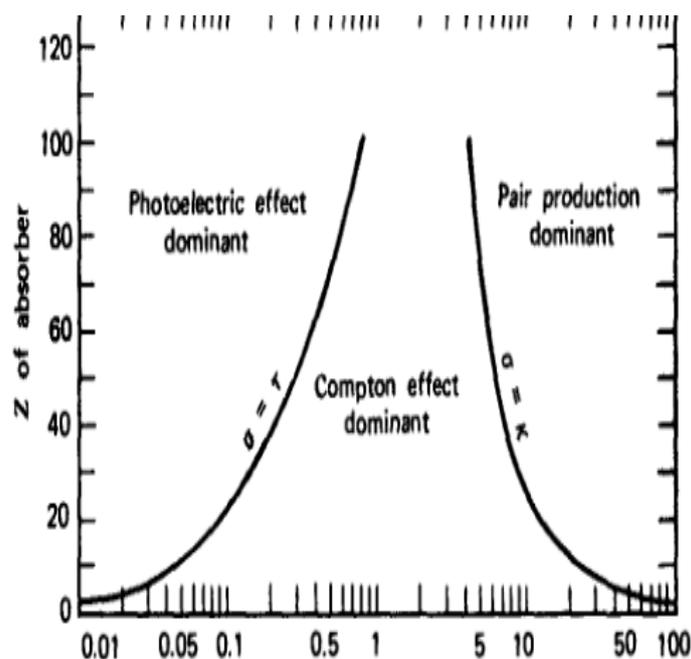


Figure 1. 1: Types d'interaction prédominantes en fonction de l'énergie de photon et du numéro atomique Z du matériau traversé [14]

1.1. Interaction Rayleigh

Une interaction entre un photon et un atome absorbant, connue sous le nom de diffusion cohérente (Rayleigh) est caractérisée par la diffusion des photons avec des électrons atomiques

liés, sans excitation de l'atome et sans perte d'énergie. Par conséquent, aucune énergie n'est absorbée dans le milieu ni convertie en mouvement. Suite à l'interaction, les électrons liés reviennent à leur état initial et l'atome n'est ni excité ni ionisé [14-15]. (Figure 1.2)

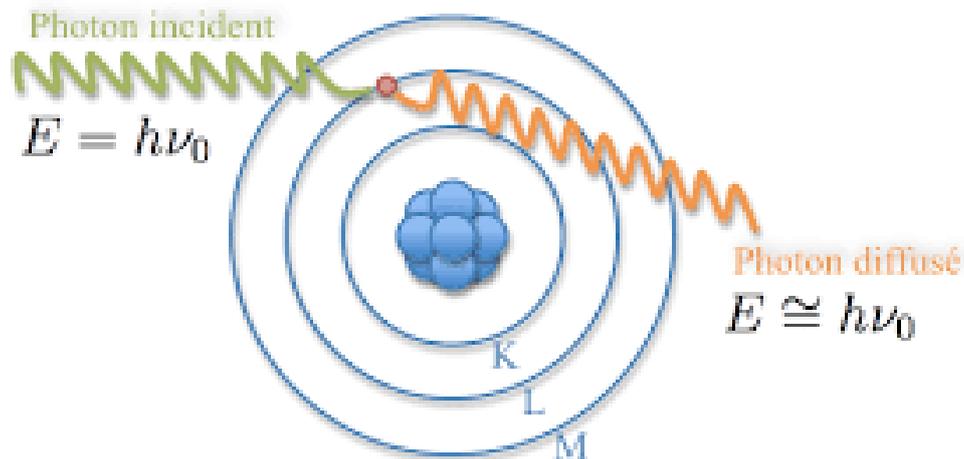


Figure 1. 2 : Diffusion Rayleigh

1.2. Effet photoélectrique

Dans l'effet photoélectrique, un photon subit une interaction avec un atome absorbeur dans laquelle le photon disparaît complètement. A sa place, un photoélectron énergétique est éjecté par l'atome de l'une des orbites liées. L'interaction s'effectue avec l'atome dans son ensemble et ne peut avoir lieu avec des électrons libres. Pour les rayons gamma d'énergie suffisante, l'origine la plus probable du photoélectron est la couche K la plus étroitement liée de l'atome. Le photoélectron apparaît avec une énergie donnée par :

$$\hbar\omega = E - E_l \quad 1.1$$

Où E_l représente l'énergie de liaison du photoélectron dans son orbite d'origine.

L'interaction crée sert à éjecter un électron de son orbite qui laisse derrière lui une lacune. Cette lacune est rapidement comblée grâce à la capture d'un électron libre du milieu et/ou au réarrangement des électrons provenant d'autres couches de l'atome avec une émission d'un photon de fluorescence ou un électron Auger [14-19]. (Figure 1.3)

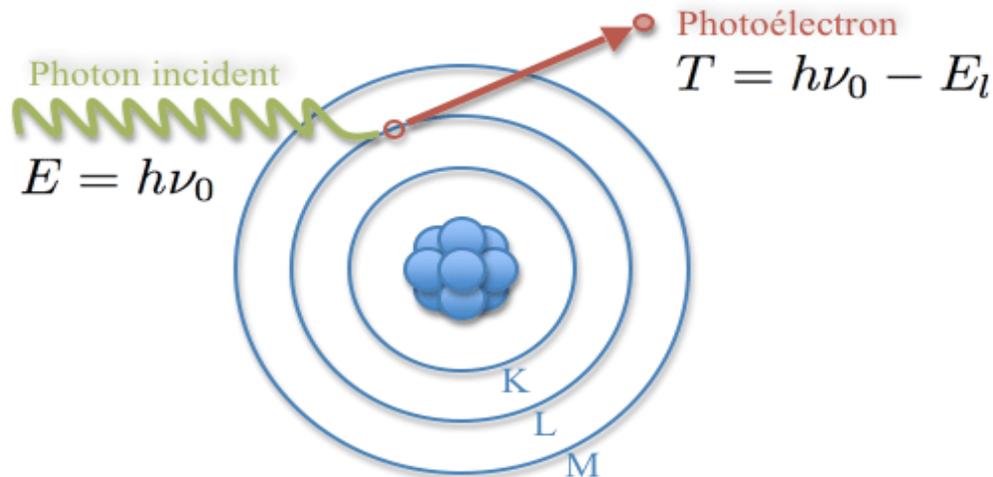


Figure 1. 3: Effet photoélectrique [19]

1.3. Diffusion Compton

Le photon gamma incident et l'électron d'un atome interagissent via le mécanisme de diffusion Compton. Lorsqu'un photon incident d'énergie $E = \hbar\nu$ entre en collision avec un électron moyen (provenant d'une couche externe moins liée), une partie de l'énergie du photon est transférée à l'électron. Suite à une diffusion inélastique, l'électron recule d'un angle ϕ avec l'énergie E_e , et le photon dévie d'un angle θ par rapport à sa direction initiale et son énergie $\hbar\nu' < E = \hbar\nu$. [14]. (Figure 1.4)

$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_e c^2} (1 - \cos \theta)} \quad 1.2$$

Avec

$$E_{\gamma'} = \hbar\nu'$$

θ : l'angle de diffusion du photon et de l'énergie du photon incident $E_\gamma = \hbar\nu$,

$m_e c^2 = 511 \text{ keV}$ est l'énergie de masse au repos de l'électron [14-22].

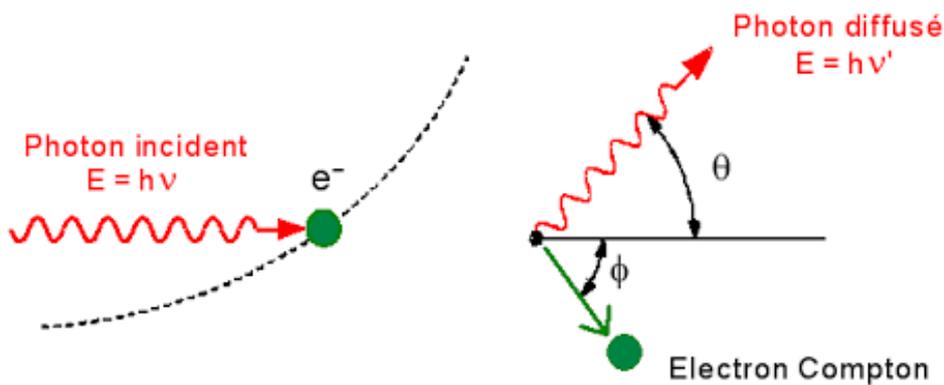


Figure 1. 4: Diffusion Compton [19]

1.4. Création de Paires

Si l'énergie du rayonnement gamma est plus du double de l'énergie de la masse au repos d'un électron (1,02 MeV), la formation de paires est énergétiquement réalisable. Ainsi, la création des paires est principalement limitée au rayonnement gamma de haute énergie. Ce phénomène, basé sur la pénétration de photons d'énergies supérieures à $2m_0c^2$ dans le champ coulombien du noyau (où les photons interagissent fortement avec le champ électromagnétique d'un noyau atomique), se matérialise sous la forme d'une paire électron-positon. Le positon s'annihile avec un électron de milieu pour produire deux photons de 511 KeV. [14,19-22]

$$h\nu = h\nu' + E_e + E_{e^+} \tag{1.3}$$

E_{e^+}, E_e sont respectivement l'énergie de le positon et d'électron.

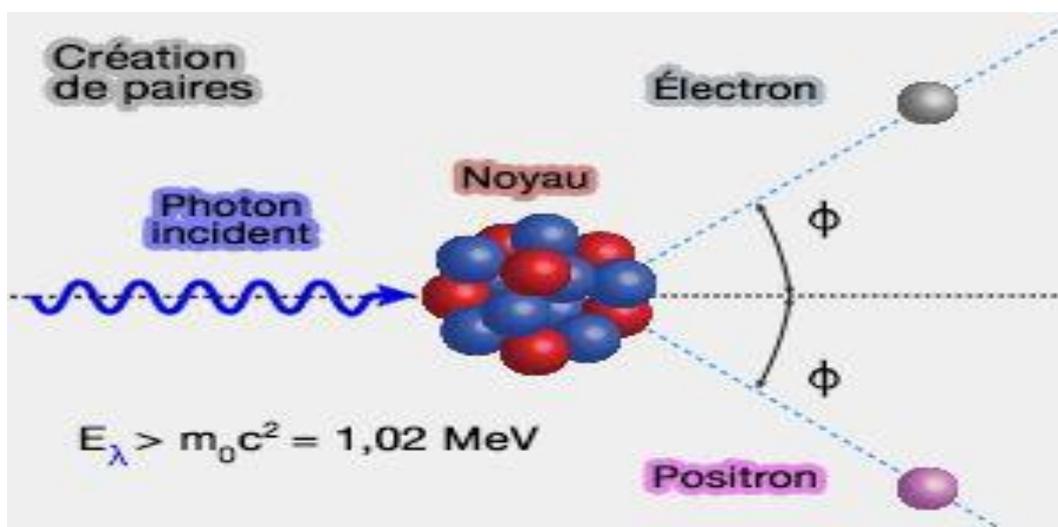


Figure 1. 5: Création de paires [19]

1.5. Atténuation d'un faisceau de photons dans la matière

Ce phénomène dont les photons sont absorbés par la matière dépend du type de matière et de l'énergie des photons. Il s'écrit en fonction d'un coefficient d'absorption, qui montre combien de photons interagissent avec une unité de longueur. Cette variable examine les sections efficaces des quatre processus d'interaction dont nous avons parlé précédemment [14-22].

Ce coefficient nous indique de combien l'intensité du rayonnement I diminue le long d'un parcours dx dans l'absorbeur :

$$\frac{dI}{dx} = -\mu I \quad 1.4$$

$$I = I_0 e^{-\mu x} \quad 1.5$$

Où :

I : Intensité du faisceau transmis ; x : Epaisseur du matériau ;

I_0 : Intensité du faisceau incident ;

μ : Coefficient d'atténuation linéaire donné par la relation :

$$\mu = n\sigma_{tot} \quad 1.6$$

Avec $n = N_a \rho / A$, est le nombre d'atomes par unité de volume.

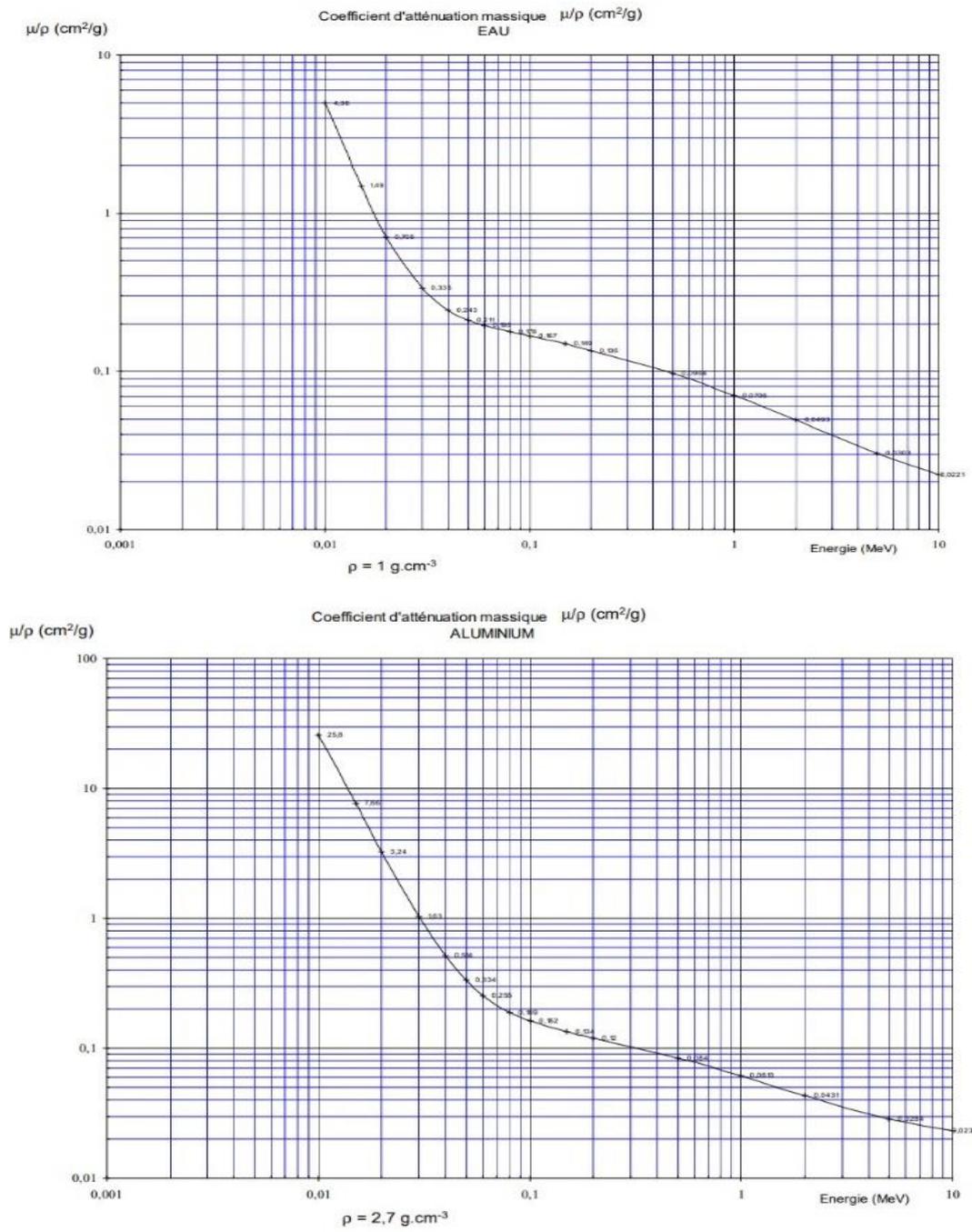


Figure 1. 6: Coefficient d'atténuation massique de l'aluminium et de l'eau en fonction de l'énergie de photon incident [17]

2. Interaction des électrons avec la matière

Electron :

L'électron est une particule légère directement ionisante, qui a été découvert en 1897 par Sir Joseph et John Thomson, de charge différente, d'une charge positive pour les positrons (β^+) et

négative pour les négatons (β^-). Lors de leur passage dans la matière, les électrons perdent leurs énergies par collisions élastiques et inélastiques avec les électrons et les noyaux atomiques du milieu ralentisseur [18-19].

2.1. Interaction avec les électrons atomiques

Cela implique la collision d'un électron ou d'un positron de basse énergie avec les électrons du cortège atomique, soit par une collision élastique ou inélastique. Le transfert d'énergie de l'électron incident aux électrons du milieu est l'interaction dominante. Si l'énergie transférée est supérieure à l'énergie de liaison, l'atome est ionisé et un électron secondaire est éjecté, qui peut alors interagir avec le milieu traversé. Si l'énergie transférée est moindre l'atome est excité et un rayon X ou un électron Auger est produit [19].

2.2. Interaction avec le champ de noyau atomique

Lors d'une collision l'électron change de trajectoire, l'interaction électron -noyau est dominante pour les hautes énergies et pour des noyaux denses. L'électron subit une forte décélération dans le champ de noyau, qui conduit à l'émission d'un rayon X, appelé Bremsstrahlung (rayonnement de freinage). [14-19]

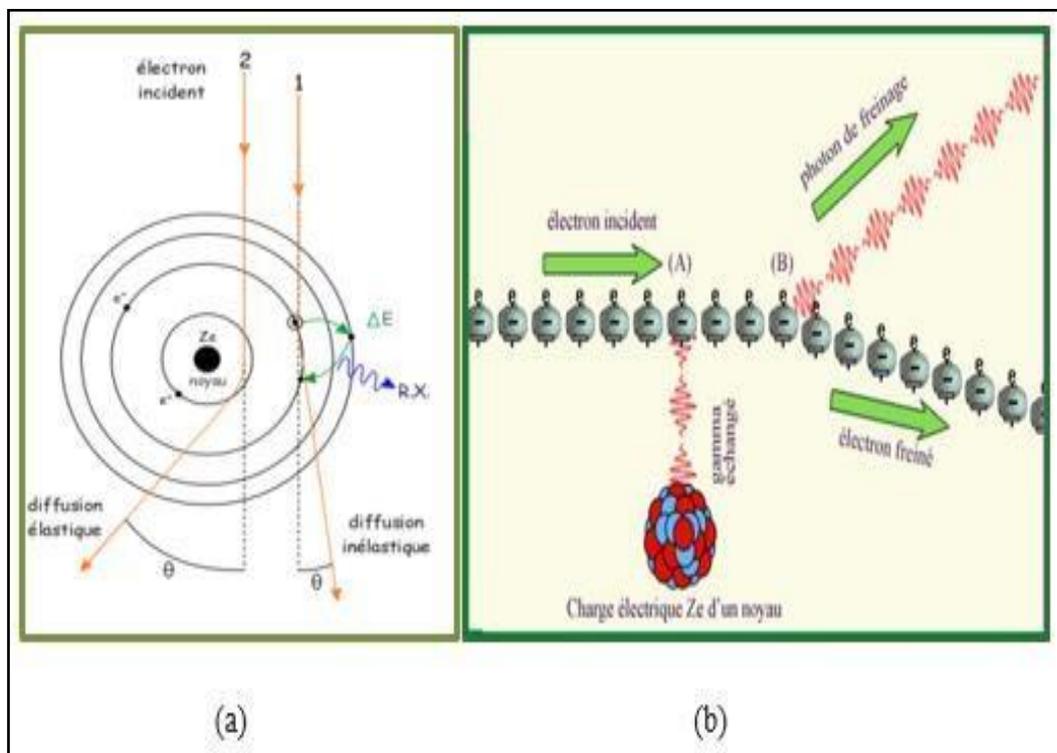


Figure 1. 7: Interaction des électrons avec la matière [20]

2.3. Parcours de l'électron dans la matière

C'est la distance maximale qu'un électron incident peut parcourir avant d'être complètement absorbé par le matériau et de perdre toute son énergie. La trajectoire de l'électron change lors d'une collision ; contrairement aux particules lourdes, elle n'est plus droite mais plutôt extrêmement sinueuse, avec un potentiel de rétrodiffusion. Le passage d'un faisceau d'électron travers la matière est illustré dans la figure 1.8. [17,29-30]

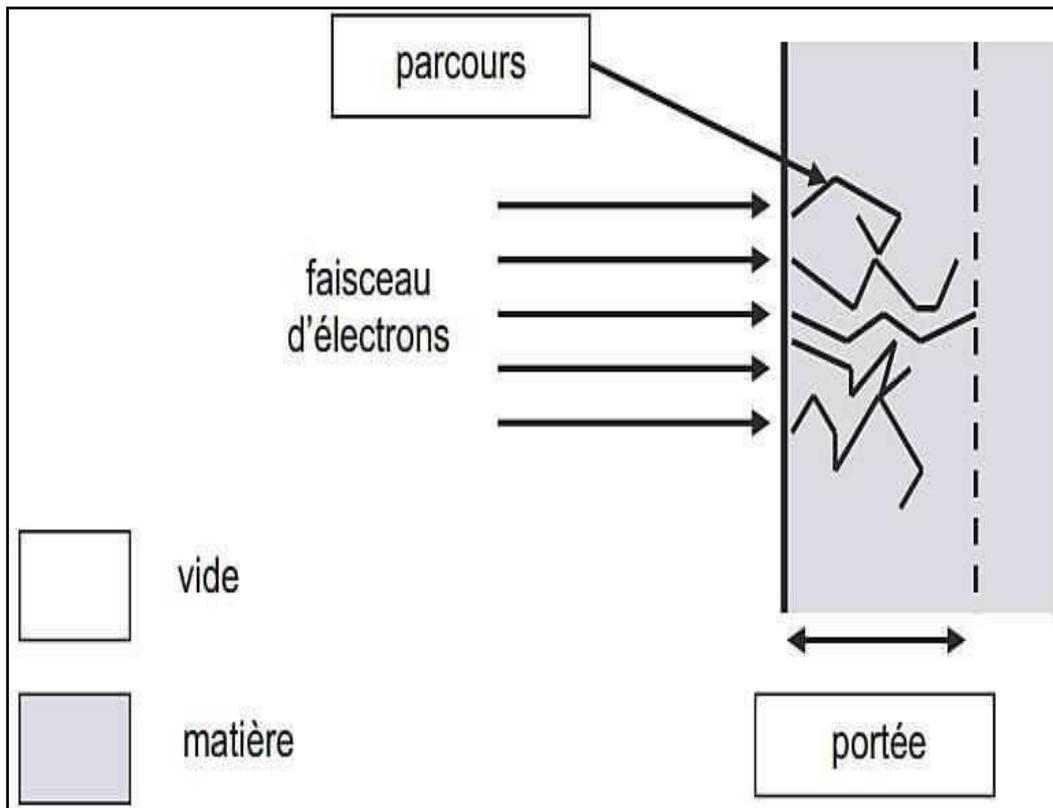


Figure 1. 8 : Parcours de l'électron dans la matière [19]

Il est exprimé par la relation suivante : $R = \int_E^0 \left(\frac{dE}{dx}\right)^{-1} dE$

1. 7

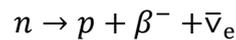
Où : $\frac{dE}{dx}$ c'est la perte d'énergie

3. Interaction du neutron avec la matière

3.1. Propriétés des neutrons

Le neutron est une particule constitutive de noyau atomique, a été découverte en 1932 par le physicien James Chadwick. Le neutron a été utilisé pour la première fois par Clifford Shull en 1946 comme outil pour des expériences de diffusion. Les neutrons sont des particules neutres

(charge nulle) de masses $m_n=939.56\text{MeV}/c^2$ légèrement supérieure à celle de proton, c'est une particule de type fermion de spin $1/2$. En raison d'absence de charge électrique (neutre), ils interagissent avec les noyaux d'atomes et non pas avec les électrons de la matière traversée, Cela leur permet de pénétrer la matière sans être stoppé par la barrière Coulombienne. A l'état libre, le neutron est instable, de demi de vie inférieure à 15 min τ (878.5 ± 0.8) s. Il se désintègre par désintégration β^- selon la réaction suivante [18,23-26] :



Son appartenance à la catégorie des particules indirectement ionisantes dépend de la nature du noyau cible et de son énergie incidente. Les neutrons sont classés habituellement selon leur énergie [23].

Tableau 1. 1: Classification de neutron selon leur énergie [19]

Neutrons	Energie
Thermique	$E_n < 0.5 \text{ eV}$
épi thermique	$1 \text{ eV} < E_n < 500 \text{ keV}$
Rapide	$500 \text{ keV} < E_n < 10 \text{ MeV}$
Relativiste	$E_n > 10 \text{ MeV}$

Neutrons thermiques

Les neutrons thermiques sont des neutrons qui sont en équilibre thermodynamique avec leur milieu. Dans un premier temps, il s'agit de neutrons rapides qui perdent leur énergie grâce à des diffusions élastiques successives dans un milieu très absorbant jusqu'à l'énergie thermique. [14-19,23]

Leur énergie est décrite par la formule suivante :

$$E = k_\beta T \quad 1.8$$

Avec

k_β : est la constante de Boltzmann,

T : c'est la température absolue. Pour la température normale $T = 293.6 \text{ K}$ (20.4 C) on obtient :

$$E_0 = 0.0253 \text{ eV}$$

Selon la distribution en énergie de Maxwell-Boltzmann, il est évident que les neutrons ne possèdent pas la même énergie, ce qui permet de déterminer l'énergie nominale des neutrons : [19]

$$E_{th} = \int_0^{\infty} E_n(E) dE = \frac{3}{2} k_B T \quad 1.9$$

Neutrons intermédiaires

Les neutrons intermédiaires appartiennent à la gamme d'énergie 0.5 eV- 0.5 MeV. Ce domaine est caractérisé par l'existence des niveaux d'excitation des noyaux qui se manifestent par des résonances (formation de noyau composé) lors de l'interaction avec les noyaux. [14-19,23]

Neutrons Rapides

Les neutrons rapides sont des neutrons d'énergie supérieure à 500 keV, sont produit principalement par les réactions suivantes (n, p) , $(n, 2n)$ et (n, α) . [14-19,27]

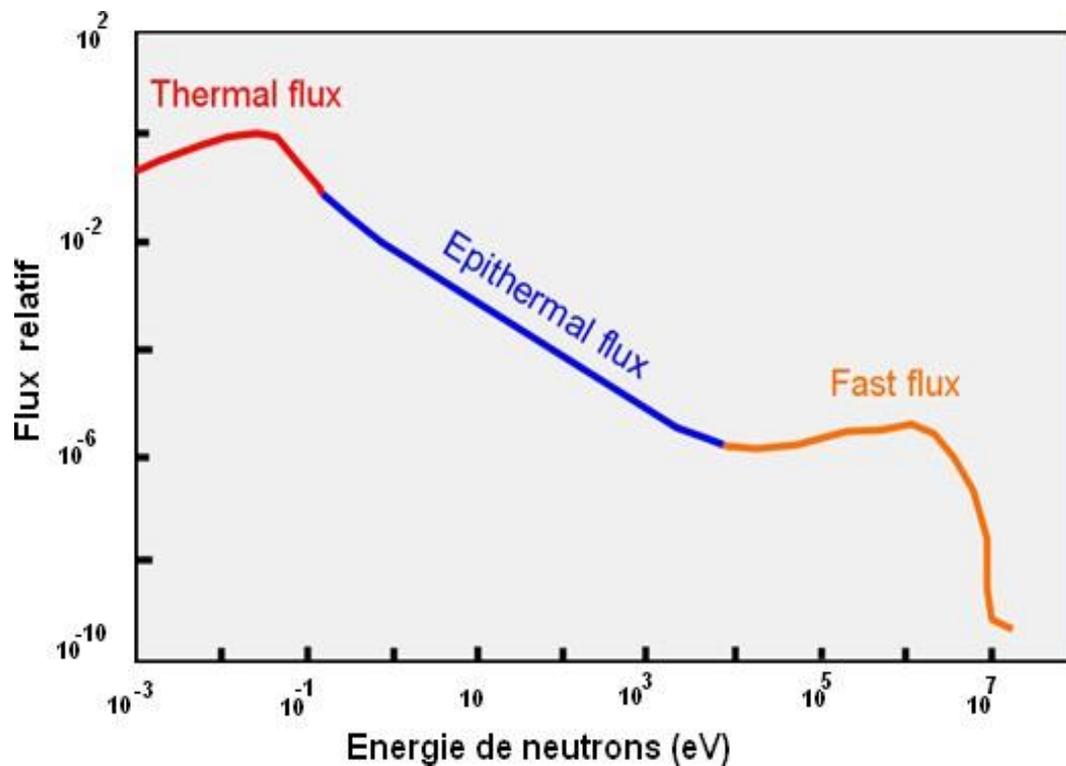


Figure 1. 9: Spectre de neutron [17]

3.2. Sources de neutrons

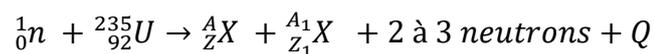
Les sources de neutrons les plus courantes sont :

- Réacteurs nucléaires
- Sources isotopiques
- Accélérateurs de particules [19]

3.2.1. Réacteur nucléaire

La réaction de fission nucléaire basée sur l'interaction des neutrons avec des noyaux fissiles tel que ^{235}U , elle est considérée comme une source intense des neutrons (10^{13} à 10^{15} n cm^{-2} s^{-1}). Cette réaction produit 2 à 3 neutrons selon les différents produits de la fission nucléaire. [17-21]

La réaction de fission :



La distribution énergétique des neutrons produits par fission est bien décrite par une fonction de Maxwell-Boltzmann avec une énergie moyenne de l'ordre de 2 MeV. [19]

Les neutrons émis lors de la fission peuvent interagir avec d'autres noyaux fissiles provoquant d'autres fissions, créant la réaction en chaîne illustrée par la figure suivante [19] :

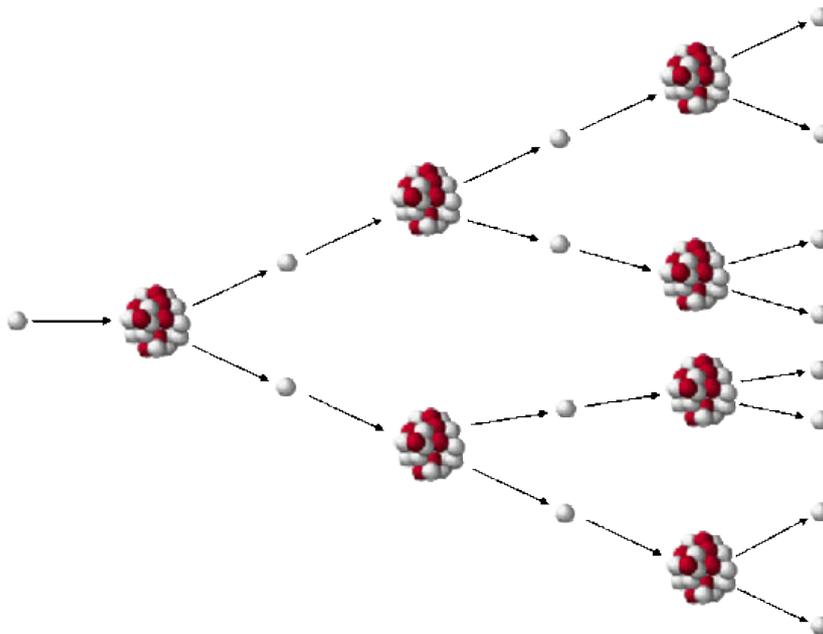


Figure 1. 10: Réaction en chaîne [19]

Au niveau du cœur de réacteur nucléaire, les barres de contrôle fait d'un matériau absorbeur de neutrons tel que le cadmium afin de contrôler la réaction en chaîne.

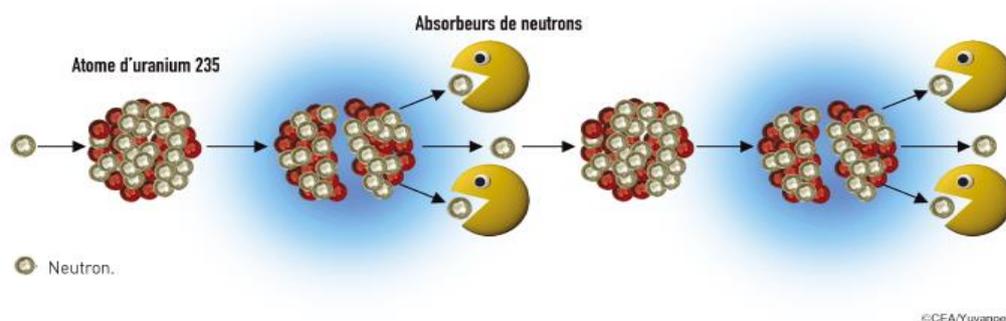


Figure 1. 11: Contrôle des réactions en chaîne[19]

3.2.2. Sources isotopiques

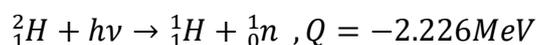
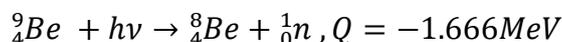
- Fission spontanée.
- Les photo-réactions (γ, n).
- Réactions nucléaires (α, n).

Fission spontanée

Le Californium ^{252}Cf est une bonne source émettrice de neutrons avec une période de 2,65 ans [21]. Il fissionne spontanément avec une probabilité relative de désintégration partielle de 3,1 % et émet en moyenne 2,5 neutrons par fission, Cette source fournit une fluence spécifique de l'ordre de $2,310^{12} n \cdot s^{-1} \cdot g^{-1}$ ou $4.3 \cdot 10^9 n \cdot s^{-1} \cdot Ci^{-1}$, et elle possède une énergie moyenne d'environ 2 MeV [14-19].

Les photo-réactions (γ, n)

C'est l'interaction d'un émetteur gamma γ et une cible. Les cibles les plus courantes utilisées sont béryllium ^9Be et le deuton ^2H . La réaction (γ, n) est possible, si l'énergie de photon incident est supérieure à l'énergie de séparation de dernier neutron lié, donc un neutron peut être libéré. Les réactions pour ces deux éléments sont : [14-21,26-27]



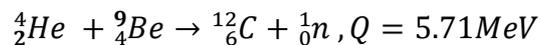
Les émetteurs ^{226}Ra , ^{124}Sb , ^{124}Ga , ^{140}La et le ^{24}Na sont principalement les plus utilisés pour la fabrication de ce type de source. [26]

Réactions nucléaires (α, n)

Il est composé d'un mélange d'un élément léger tel que ^9Be , ^{10}B ou le ^{11}B et un émetteur α comme Am, Cm, Ac, Ra, Pu, Rn. [28]

Le meilleur rendement est obtenu avec le béryllium ^9Be selon la réaction suivante

$^9\text{Be}(\alpha, n)^{12}\text{C}$:



Le tableau 1.2 représente les caractéristiques des radioéléments qui peuvent être utilisés comme des sources α :

Tableau 1.2 : Caractéristiques des sources Be (α, n) [19]

Le nucléide	La période	$E_\alpha(\text{MeV})$	Intensité des α ($n \cdot \text{S}^{-1}$) par $10^6 \alpha$	Intensité des n ($n \cdot \text{S}^{-1} \cdot \text{Ci}^{-1}$) 10^6	Energie moyenne des neutrons en MeV
^{238}Pu	89 années	5.5	-	2.8	4.0
^{239}Pu	24.360 années	5.14	65	1.6	4.59
^{210}Po	138 jours	5.30	73	2.5	4.54
^{241}Am	458 années	5.48	82	2.2	4.46
^{244}Cm	18.1 années	5.79	100	3.0	4.31
^{242}Cm	163 jours	6.10	118	4.0	4.16
^{226}Ra	1620 années	7.69	502	1.1	3.94
^{227}Ac	22 années	7.36	702	1.5	3.87

Le spectre de neutron des sources Be (α, n) est donné dans la figure 1.12 :

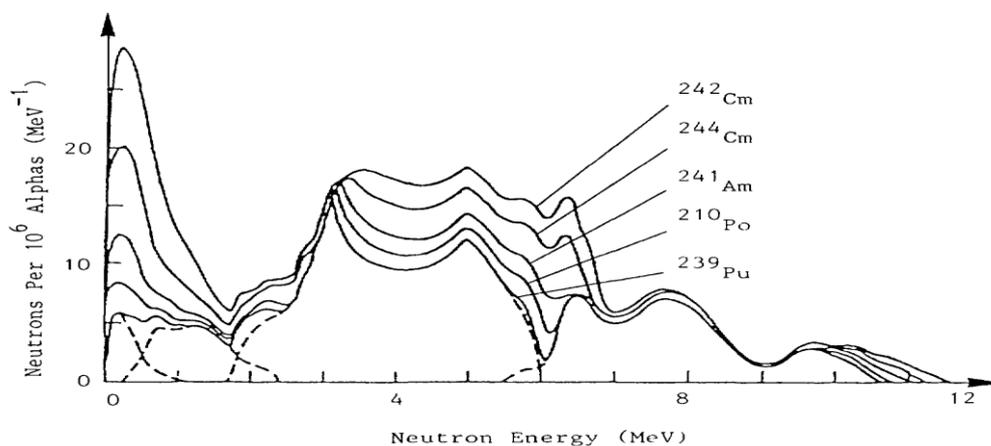


Figure 1. 12: Spectre de neutron des sources Be (α, n) [19]

3.2.3. Accélérateurs de particules (générateur des neutrons)

Les neutrons sont produits à partir de la réaction nucléaire par particules chargées fournis par des accélérateurs de particules. [17-20,28]

Les accélérateurs à basse tension sont aussi utilisés pour la production des neutrons rapides selon les deux réactions suivantes :



L'énergie des neutrons produits est de 2.5 MeV pour la réaction DD et de 14.1 MeV pour la réaction DT [19].

Les ions de deuton sont accélérés sous une tension de 100 kV à 400 keV, à savoir le type de générateur et le but d'utilisations [25].

Les réactions : ${}^9\text{Be} (d, n)$, ${}^7\text{Li} (p, n)$ et ${}^3\text{H} (p, n)$ peuvent aussi générées des neutrons au niveau des accélérateurs avec un bilan négatif. Ce type d'interaction nécessite un apport d'énergie cinétique par la particule incidente et donc des accélérations plus puissantes [14-26].

3.3. Interaction de neutron avec la matière

L'interaction neutron avec la matière est décrit par deux processus principaux qui dépendent de l'énergie du neutron et du type d'interaction avec le noyau :

- **La diffusion** : (prépondérante dans la région rapide) qui conduit à une modification de la trajectoire et à une variation de l'énergie de la particule incidente.
- **Absorption** : (plus probable dans la région thermique) mécanisme par lequel le neutron incident est absorbé par un noyau. [19]

Les différents types d'interactions (figure 1.13) : [19]

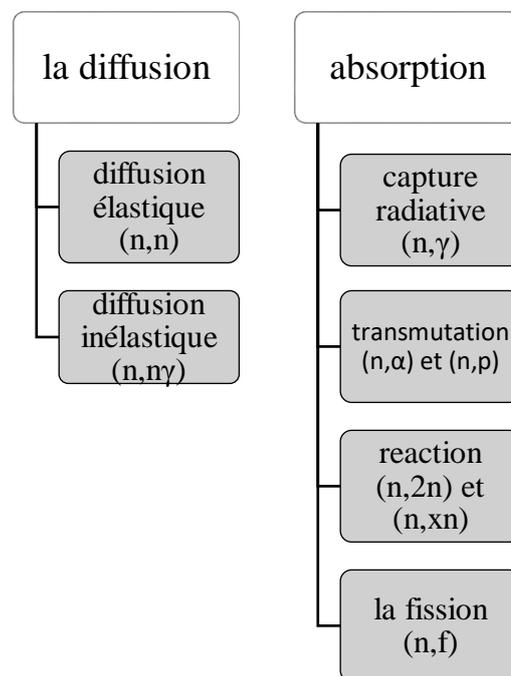


Figure 1. 13: Types de réactions induites par les neutrons [19]

3.3.1. La diffusion

La diffusion se décompose en deux types élastique et inélastique :

- **Diffusion élastique (n, n) :**

C'est une interaction sans seuil, dont l'énergie est conservée avant et après la réaction. Si la masse de noyau de recul est identique à la masse de neutron, La perte d'énergie est très importante, et plus que le nombre de masse atomique de la cible est faible, plus il est efficace en tant que modérateur. Lors de l'interaction de neutrons d'énergie E_n avec un noyau cible supposé au repos, l'énergie transmise au noyau de recul, dans le système du laboratoire est donnée par la formule suivante : [16-19].

$$E_r = E_n \frac{4A}{(1+A)^2} \cos^2 \theta \quad 1.10$$

Où : E_n : est énergie du neutron ; E_r : énergie du noyau de recul ; A : masse atomique du noyau de recul ; et θ : l'angle entre la direction du neutron incident et celle du neutron diffusé

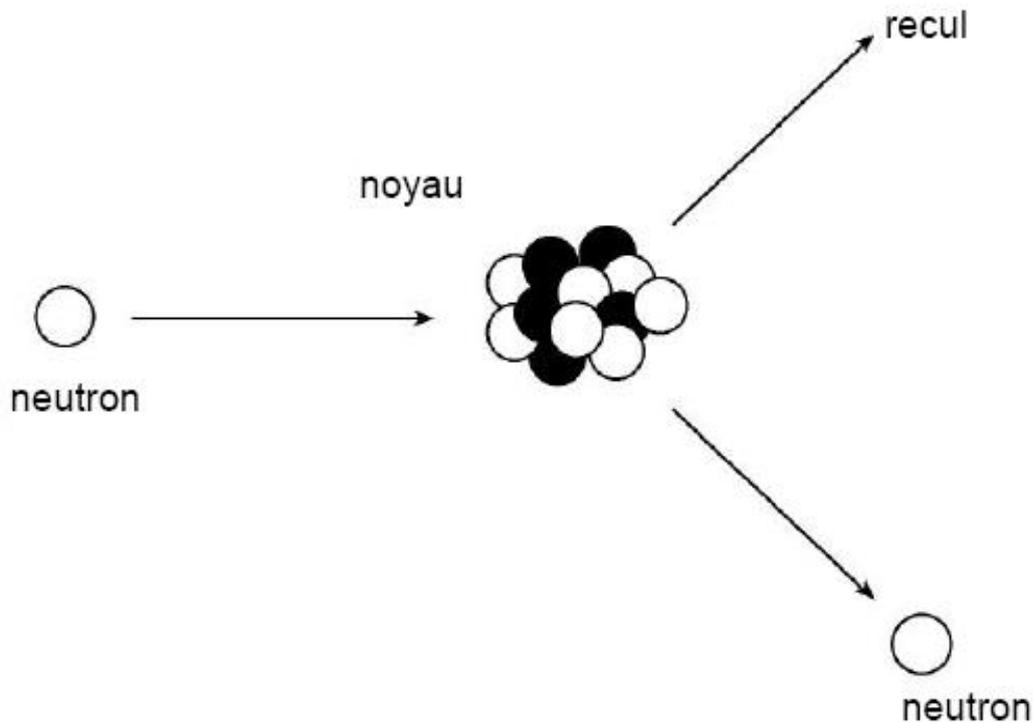
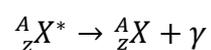
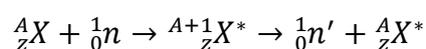


Figure 1. 14: Diffusion élastique [19]

Diffusion inélastique (n, γ)

Ce type d'interaction possède une absorption de neutron par le noyau, dans laquelle la formation de noyau composé, d'une durée de vie est de l'ordre de 10^{-14} s. Le neutron incident partage une partie de son énergie avec le noyau, qui se transforme à son tour en un noyau excité. Il se désexcite par l'émission des rayonnements gamma. Ce type d'interaction est très important dans le cas de l'interaction des neutrons rapides avec les noyaux lourds ($E_n > 10 \text{ MeV}$). [14,16-19,28]



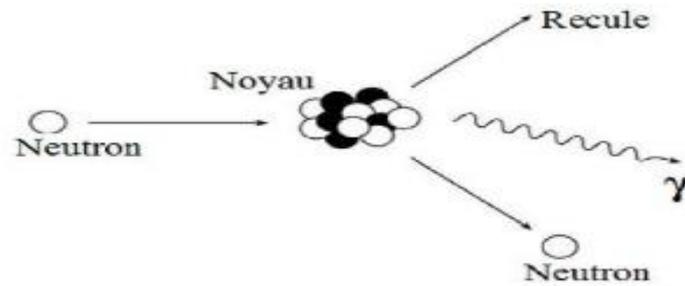
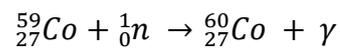


Figure 1. 15: Diffusion inélastique [19]

3.3.2. Absorption

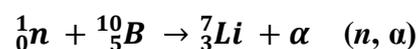
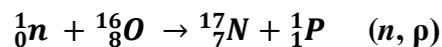
Capture radiative (n, γ)

Cette réaction basée sur la formation de noyau composé dans laquelle, le neutron incident va être totalement absorbé par le noyau cible. Le noyau se désexcite par émission d'un ou de plusieurs rayons gamma. Cette réaction est plus probable par les neutrons thermiques. [14]



Transmutation (n, α), (n, p)

C'est une réaction basée sur l'absorption d'un neutron par le noyau qui conduit à la formation d'un noyau composé. Ce noyau se désexcite généralement par émission d'une particule alpha ou d'un proton. Ces réactions sont possibles sur des noyaux cibles légères, pour laquelle la barrière coulombienne est suffisamment basse pour l'échappement de la particule chargée dans la voie de sortie. [19]



Réaction (n, 2n)

C'est une réaction à seuil (n, 2n) produite par des neutrons rapides (au-dessus de quelques MeV) [14,19]

Réaction de fission

La réaction de fission c'est une réaction induite par l'absorption des neutrons par des noyaux lourds tels que ${}^{232}\text{Th}$, ${}^{235}\text{U}$, ${}^{239}\text{Pu}$

Ces noyaux (noyaux composés) se scindent en deux fragments avec l'émission d'un ou plusieurs neutrons rapides. Il existe deux types de noyaux lourds sont les noyaux fissiles et les noyaux fertile. Les noyaux fissiles tel que $^{233}_{92}U$ et $^{235}_{92}U$ et le plutonium $^{239}_{94}Pu$ et $^{241}_{94}Pu$ nécessite un neutron thermique pour induire la fission par contre aux noyaux fertiles qui nécessite des neutrons rapides pour fissionner (l'uranium $^{238}_{92}U$). [14,16-19]

CHAPITRE 2 : Analyse par Activation Neutronique Instrumentale et Approche Monte Carlo

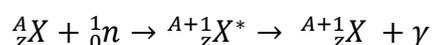
CHAPITRE 2 : la technique de Analyse par Activation Neutronique Instrumentale et Approche Monte Carlo

2.1. Analyse par Activation Neutronique Instrumentale

La technique dite INAA, ou analyse par activation neutronique instrumentale, est une méthode analytique. Elle a été soulignée par Hevesy G. et Levi H. en 1936. La NAA est devenue une méthode d'analyse très utile, surtout après l'introduction des réacteurs nucléaires. Il s'agit d'une technique analytique multi-élémentaire, non destructive et extrêmement sensible qui fonctionne bien pour l'analyse quantitative et qualitative des éléments à faible teneur [17-18,29].

2.1.1. Principe de la technique INAA

L'échantillon à étudier est irradié par un flux de neutrons thermiques ou épithermiques issu du réacteur nucléaire (la capture est cruciale dans les domaines th et épi). Cette méthode d'analyse nucléaire est basée sur la réaction de capture radiative. Son fondement est la détection et la quantification de rayonnements particuliers émis par les radionucléides produits par des réactions nucléaires. Le noyau composé produit se désexcite par émission d'un rayons gamma (gamma prompt). [17-18,27] :



Il existe plusieurs modes de désintégration des éléments radioactifs, notamment la désintégration de transition bêta, alpha et isomérique. Un rayonnement gamma est libéré simultanément à cette dégradation. Les énergies de ces rayons gamma sont indicatives des radioéléments qui les libèrent. La réaction de désintégration bêta est la suivante :

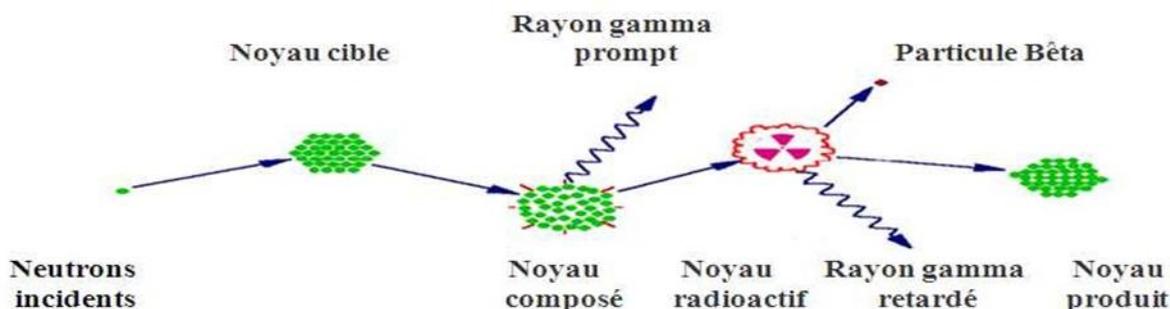
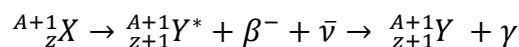


Figure 2. 1: Principe de la INAA

2.1.2. Equation fondamentale de l'analyse par activation neutronique

Le taux de réaction lors l'irradiation dans le détecteur (n, γ) est :

$$R = N_0 \int_0^{\infty} \varphi(E) \delta(E) dE \quad 2.1$$

$\varphi(E)$: le flux de neutrons thermique et épithermique

Pour le taux d'une réaction

$$R = N_0 \delta \varphi$$

Pour les neutrons thermiques

$$R_{th} = N_0 \varphi_{th} \delta_{th}$$

Pour les neutrons épithermiques

$$R_{epi} = N_0 \varphi_{epi} I_0$$

I_0 : Intégrale de résonance, et, $N_0 = \frac{m\theta N_A}{M}$, θ est l'abondance isotopique.

Le taux de réaction dans un échantillon irradié dans le réacteur est donc donné par la relation suivante :

$$R_0 = R_{th} + R_{epi} = N_0 (\Phi_{epi} I_0 + \Phi_{th} \sigma_{th}) \quad 2.2$$

Le nombre de radio-isotopes formés lors de l'irradiation est donné par la formule suivante :

$$\frac{dN(t)}{dt} = R - \lambda N(t) \quad 2.3$$

En tenant compte des conditions initiales, l'équation différentielle donnée, qui est du premier ordre, peut être résolue facilement : ($N=0, t=0$).

La relation suivante indique combien de noyaux ont été créés à la fin du rayonnement :

$$N(t) = \frac{R}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_i}) \quad 2.4$$

$S = (1 - e^{-\lambda t_i})$ Facteur de saturation, t_i est le temps d'irradiation.

L'activité de saturation A_s est obtenue lorsque $t_i \gg T_{1/2}$; donné par la relation suivante :

$$A_s = \frac{m\theta N_A}{M} (\Phi_{epi} I_0 + \Phi_{th} \sigma_{th}) \quad 2.5$$

Après un temps de décroissance : t_d , L'équation de l'activité d'un radioélément est donnée par la relation suivante :

$$A(t) = A_s S D \quad 2.6$$

$D = e^{-\lambda t_d}$ Facteur de décroissance.

L'activité finale des radioéléments après irradiation peut être déterminée à l'aide de la relation ci-dessous, en tenant compte les facteurs d'auto absorption des neutrons thermique et épithermique (G_{th} , G_{epi}) :

$$A_s = \frac{m\theta N_A}{M} (G_{th} \Phi_{th} \sigma_{th} + G_{epi} \Phi_{epi} I_0) \quad 2.7$$

2.1.3. Analyse qualitative et quantitative

2.1.3.1. Analyse qualitative

Les éléments émetteurs gamma retrouvés dans l'échantillon analysé ont été identifiés, et nous tenant compte des paramètres :

- L'énergie du gamma γ (les isotopes spécifiques peuvent être identifiés par leurs rayons gamma d'énergie caractéristique)
- Le temps de demi-vie ($T_{1/2}$) de la radioactivité
- La réaction nucléaire utilisée et la section efficace de production des radioéléments.

Il existe des interférences potentielles dans l'analyse d'activation qui doivent être prises en compte et corrigées ; il s'agit notamment des réactions d'activation interférentes et des interférences spectrales des rayons gamma. [29]

2.1.3.1.1. Interférence de premier ordre

Généralement, on trouve plusieurs émetteurs gamma de même énergie, qui a été produit à partir des réactions nucléaires différents, par exemple, certains radioéléments de type (n, γ) créés par des processus de capture radiative, ces derniers étant produits par des neutrons thermiques. Les réactions de types (n, p), (n, 2n) ou (n, α) avec un flux de neutrons rapides donnent les mêmes radioéléments. Les réactions d'interférence de premier ordre sont ce que ces réactions sont classées. [19-20,29]

Exemple : ^{27}Al (n, γ) ^{28}Al . Le ^{28}Al peut également être produit par Si et P avec des neutrons de haute énergie via les réactions ^{28}Si (n, p) ^{28}Al et ^{31}P (n, α) ^{28}Al .

Ce phénomène n'empêche pas les éléments d'être mal identifiés ; une véritable correction est donc nécessaire pour identifier correctement les éléments. La section efficace de capture ou la demi-vie radioactive de l'élément peuvent être prises en compte dans l'analyse spectrale pour s'adapter à ce type d'interférence [30].

2.1.3.1.2. Interférence de deuxième ordre

Lors que le temps d'irradiation est très grand sous un flux neutronique élevé, on se trouve dans le cas de la production d'un radionucléide par plusieurs réactions, qui conduit à une interférence de second ordre. Cette interférence peut être minimisée par irradiation dans un flux de neutrons bien thermalisés [30].

Exemple : la fission de ^{235}U donne : $^{235}\text{U} (n, f) ^{147}\text{Nd}$ avec un rendement de réaction de $\eta = 2,3\%$.

Tableau 2. 1: Réactions de fission interférentes pour lors du dosage des REEs [17]

Elément	Réaction de fission	Période	Rendement
Zr	$^{235}\text{U} (n, f) ^{95}\text{Zr}$	64.4 jours	6.5
Mo	$^{235}\text{U} (n, f) ^{99}\text{Mo}$	2.76 jours	6.9
La	$^{235}\text{U} (n, f) ^{140}\text{Ba} \longrightarrow ^{140}\text{La}$	40.3 heures	6.33
Ce	$^{235}\text{U} (n, f) ^{141}\text{Ce}$	32.4 jours	5.78
Nd	$^{235}\text{U} (n, f) ^{147}\text{Nd}$	11.1 jours	2.3
Sm	$^{235}\text{U} (n, f) ^{153}\text{Sm}$	1.95 jours	0.27

Mesures spectrométriques

L'une des méthodes radiométriques les plus puissantes disponibles est la spectrométrie gamma. Cette approche est non destructive et permet de quantifier et d'identifier le rayonnement γ émis spontanément par le matériau. Le dispositif expérimental comprend un système de classification basé sur l'énergie des photons qui interagissent avec le milieu détecteur. La méthode a un impact significatif dans la radioactivité environnementale [31-34].

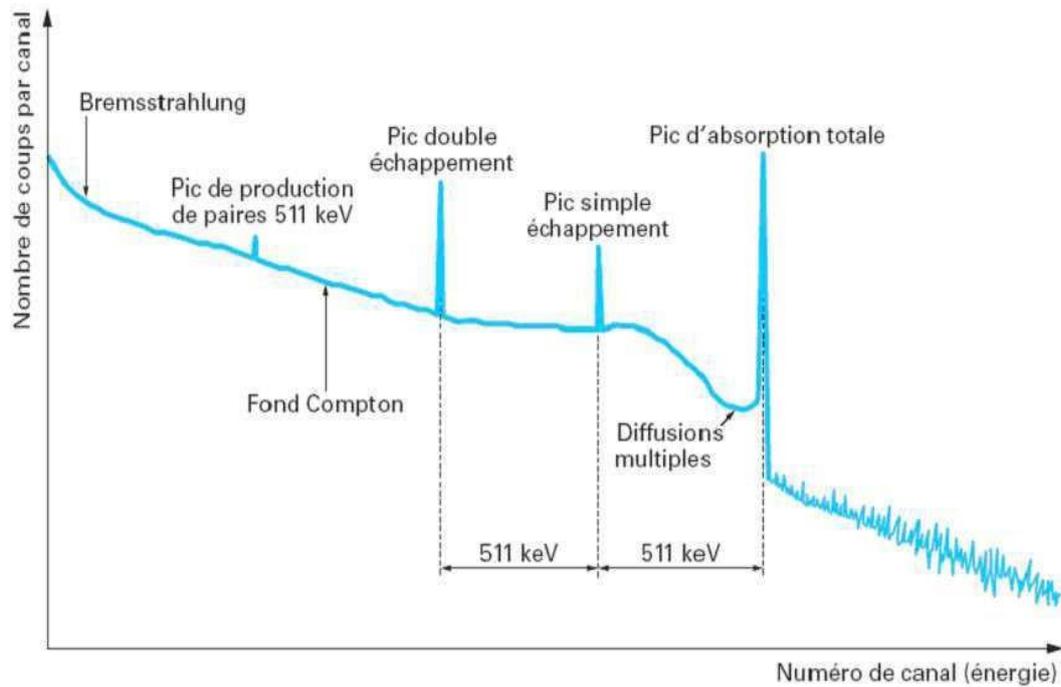


Figure 2. 2: Spectre gamma mono-énergétique des différents événements produit [20]

Chaîne de mesure

Comme le montre le schéma, la chaîne de mesure pour la spectrométrie gamma est principalement composée de suivi d'acquisition électrique (préamplificateur, amplificateur, analyseur multicanal (AMC), convertisseur analogique-numérique (ADC) et logiciel d'acquisition et d'analyse) : [17-20,31-32]

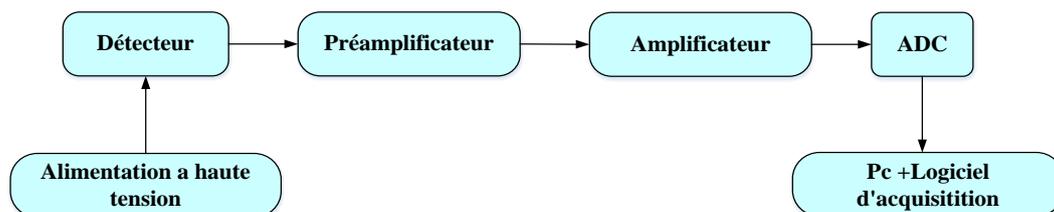


Figure 2. 3: Chaîne de mesure de la spectrométrie gamma [20]

Détecteur

Les scintillateurs et les semi-conducteurs sont les principaux types de détecteurs utilisés en spectrométrie gamma, qui sont utilisés dans la gamme d'énergie allant de 20 keV à quelques MeV, selon le domaine d'application de la spectrométrie γ [20].

Détecteurs à scintillation

Le détecteur à scintillation utilise les processus de luminescence, conversion photoélectrique et émission d'électrons secondaires. Le détecteur est constitué d'un scintillateur et d'un ou plusieurs photo-tubes multiplicateurs.

Le scintillateur, par le mécanisme de la luminescence, convertit les interactions transformé les photons gamma en une série de photons de faible énergie dont les longueurs sont dans la région visible. Le photo-tube convertit ces basses énergies photons en photoélectrons qui sont multipliés par émission secondaire. Les électrons d'émission secondaire sont collectés et observés comme un signal électrique.

Les détecteurs à scintillation fournissent une grande efficacité pour la détection des rayons gamma et, en même temps, capable d'une résolution énergétique suffisamment bonne pour être utile dans la séparation des contributions des sources de rayons gamma poly énergétiques. On distingue plusieurs types de scintillateurs : solide, organique, liquide, inorganique, et les scintillateurs thermo-luminescents. L'iodure de sodium dopé au Thallium (NaI (Tl)) est le scintillateur solide le plus couramment utilisé en raison de son moindre coût et de sa grande efficacité de détection intrinsèque (6.10^{-2} à 1332 keV). Cependant, du fait de sa faible résolution en énergie (80 keV à 1332keV), son champ d'application est restreint à la détection de radionucléides mono-énergétiques émetteurs γ [34-35].

Détecteurs à semi-conducteurs

Les matériaux classés comme semi-conducteurs ont des conductivités électriques qui se situent entre celles des isolants et des métaux [18]. Une caractéristique qui diffère grandement selon les matériaux est la conductivité électrique. Les semi-conducteurs sont fréquemment utilisés dans la création de plusieurs types de détecteurs.

Les détecteurs au germanium sont plus adaptés à la détection des photons que les détecteurs au silicium en raison de leurs propriétés favorables (Z élevé). Les germaniums offrent une résolution énergétique exceptionnelle, ce qui est crucial pour les études de spectrométrie gamma car ils permettent une séparation claire des pics de photons gamma.

La concentration d'impuretés dans le germanium hyper pur varie de 10^{13} à 10^{10} atomes par cm^3 [17]. Il existe trois configurations géométriques pour les détecteurs au germanium : planaire, coaxial et puits. Les rayons gamma de faible énergie peuvent être mesurés grâce à la géométrie planaire, qui est également utilisée pour détecter les rayons X des éléments lourds (tels que les éléments fissiles ou transuraniens). La résolution de ce type de détecteur est généralement

définie par le point 5,9 keV du ^{55}Fe (raie α de ^{55}Mn) ou le point 122 keV du ^{57}Co . Ce type de détecteur a un volume actif qui peut atteindre 1 ou 2 cm³, ce qui donne un volume relativement minuscule de 10 à 30 cm³. [17-20,31-32]

Ce problème peut être évité grâce à la conception coaxiale, qui permet au volume actif de dépasser 750 cm³. Alternativement, la réponse énergétique peut être augmentée jusqu'à des énergies élevées (entre 10 keV -10MeV). La raie 1332,5 keV du ^{60}Co est utilisée pour mesurer la résolution de ce type de détecteur. Cette structure cristalline permet également la création d'une géométrie puits ; la réponse du détecteur se situe dans la même plage d'énergie que celle d'une géométrie coaxiale, mais la possibilité d'introduire un échantillon à l'intérieur du détecteur augmente l'efficacité de la détection.

Alors que la géométrie du puits offre une résolution supérieure à haute énergie, la géométrie coaxiale offre une meilleure résolution à basse énergie.

Caractéristique des détecteurs

1. Résolution du détecteur

C'est le pouvoir de séparation entre deux raies successives dans le spectre gamma ; c'est un paramètre très important en spectrométrie gamma. Dans le cas d'un spectre gamma, l'effet de la résolution d'un détecteur apparaît clairement sur la forme du spectre, notamment sur le pic d'absorption totale. La résolution absolue s'exprime par la relation suivante : [14,17-20,31-32]

$$R(\%) = \frac{FWHM}{E} \times 100 \quad 2.8$$

FWHM est la largeur à mi-hauteur du pic correspondant.

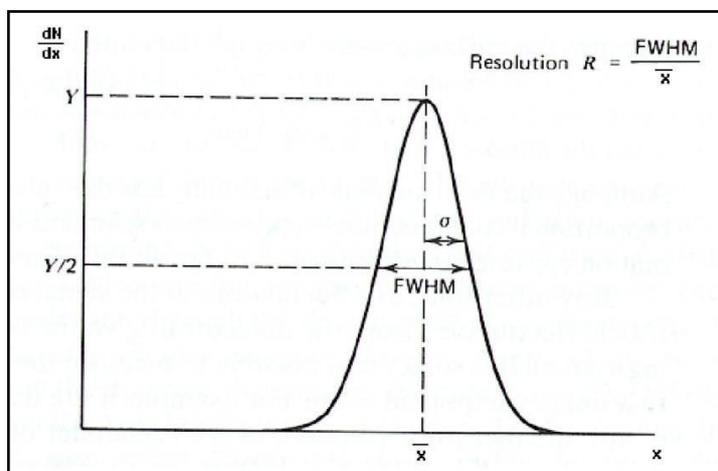


Figure 2. 4: Définition de la résolution en énergie pour un pic gaussien [20]

2. Efficacité du détecteur

L'efficacité de détection est l'une des caractéristiques énergétiques les plus importantes en spectrométrie gamma, elle exprime la probabilité pour qu'une particule entrant dans le détecteur soit réellement détectée. Il devient alors nécessaire de connaître précisément l'efficacité du détecteur afin de relier le nombre d'impulsions comptées au nombre de neutrons ou de photons incidents sur le détecteur. Il est pratique de subdiviser les efficacités de comptage en deux classes : absolue et intrinsèque. Les efficacités absolues sont définies comme : [17-20,31-33]

$$\varepsilon_a = \frac{\text{Nombre de rayonnements détectés}}{\text{Nombre de rayonnements émis}} \quad 2.9$$

L'efficacité intrinsèque est définie par la relation suivante :

$$\varepsilon_i = \frac{\text{Nombre de rayonnements détectés}}{\text{Nombre de rayonnements pentrant dans le détecteur}} \quad 2.10$$

Electroniques associées

- a) Alimentation haute tension : Quel que soit le détecteur, l'alimentation est un composant nécessaire. Il génère un champ électrique qui déplace les charges vers les électrodes et collecte les charges créées par le détecteur.
- b) Préamplificateur : c'est un composant positionné extrêmement près du détecteur. La fonction du préamplificateur est de collecter et d'amplifier la charge électronique créée dans le détecteur par ionisation due à un événement de rayons gamma, pour minimiser le bruit tout en garantissant un degré extrêmement faible de bruit électronique au signal détecté et maintenir un niveau élevé de degré de stabilité du gain. De plus, il a la capacité d'effectuer une conversion de la charge en tension électrique.
- c) Amplificateur : la fonction principale de l'amplificateur dans la chaîne est de minimiser la déformation d'impulsion en employant la mise en forme des impulsions pour améliorer les mesures telles que la résolution énergétique et le temps de résolution. Aussi, il a la capacité d'amplifier le signal et d'éliminer le bruit de fond électronique. Les impulsions de sortie de l'amplificateur principal ont une forme presque gaussienne et sont d'une amplitude qui est linéairement liée à l'entrée du préamplificateur.

- d) Les impulsions, ou signal analogique, sont converties par le convertisseur analogique-numérique (ADC) en un signal numérique, ou signal logique, qui sert d'adresse à l'électronique d'acquisition pour associer les canaux de l'analyseur utilisés pour couper le spectre final. Le logiciel spectroscopique Génie 2000, qui offre à l'opérateur le plus de flexibilité, est utilisé pour faire fonctionner le DSA-1000 [14,17-20,31-33].

2.1.3.2. Analyse quantitative

Lors des mesures spectrométriques des échantillons analysés, l'intensité I_γ peut être utilisée pour la quantification des éléments, qui est le nombre du gamma d'énergie E_γ mesuré par unité de temps. L'analyse est effectuée en comparant les raies de pic photo-électrique avec celles du spectre d'un échantillon standard, irradié et compté dans des conditions identiques.

$$N_p = A_s S \varepsilon \gamma \int_{t_d}^{t_d+t_c} e^{-\lambda t_d} dt_d \quad 2.11$$

L'aire du pic caractéristique de l'élément à mesurer est obtenue en intégrant cette équation tout en tenant compte des restrictions d'intégration, selon la relation suivante :

$$N_p = A_s \varepsilon \gamma SDC \quad 2.12$$

$C = \frac{(1-e^{-\lambda t_c})}{\lambda}$, t_c est le temps de comptage, t_d est le temps de décroissance, S et D sont définis précédemment.

L'approche absolue et la méthode relative sont les deux principales méthodes de mesurer des éléments à l'aide de la technique INAA [17].

2.1.3.2.1. Méthode absolue

Cette approche consiste à calculer la concentration des éléments dans l'échantillon, utilisant l'ensemble des paramètres d'irradiation et de mesure ainsi que les grandeurs physiques de l'élément à analyser. La relation suivante fournit la masse de l'élément dans l'échantillon analysé :

$$m = \frac{M \lambda N_p}{\theta N_A \varepsilon \gamma (\Phi_{epi} G_{epi} I_0 + \Phi_{th} G_{th} \sigma_{th}) (1 - e^{-\lambda t_i}) (e^{-\lambda t_d}) (1 - e^{-\lambda t_c})} \quad 2.13$$

Où : M est la masse atomique de l'élément, λ est la constante de désintégration, N_p est la surface nette du pic de l'élément d'intérêt, ε est l'efficacité du détecteur à l'énergie des rayons gamma et Na est le nombre d'Avogadro. $(1 - e^{-\lambda t_i})$ le facteur de saturation, $(e^{-\lambda t_d})$ est le facteur de désintégration, $(1 - e^{-\lambda t_c})$ est le facteur de comptage respectivement, $(\Phi_{epi} I_0 + \Phi_{th} \sigma_{th})$ où (G_{th}) , (G_{epi}) sont les facteurs d'auto-absorption des neutrons thermiques et épithermiques dans l'échantillon, φ_{th} , φ_{epi} est le flux du neutron thermique et épithermique dans l'échantillon, I_0 est l'intégrale résonante et σ_{th} est la section efficace.

Ces paramètres génèrent des incertitudes considérables à la méthode absolue de la technique INAA, qui affectent la quantification des éléments dans l'échantillon. Les incertitudes ont été calculées par la relation suivante [36] :

$$\frac{\Delta m}{m} = \sqrt{\left(\frac{\Delta \varphi}{\varphi}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N_p}{N_p}\right)^2 + \left(\frac{\Delta I}{I}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \sigma}{\sigma}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \varepsilon}{\varepsilon}\right)^2} \quad 2.14$$

2.1.3.2.2. Méthode relative

La méthode relative est faisable dépend de la disponibilité de standard de référence. L'échantillon inconnu est irradié avec un standard contenant une quantité connue du ou des éléments d'intérêt. Le standard est mesuré dans les mêmes conditions expérimentales que l'échantillon. A partir de la comparaison des aires nette de pic dans les deux spectres mesurés, on peut calculer la masse de l'élément d'intérêt [17-18,27-28] :

$$\frac{N_{sam}}{N_{st}} = \frac{m_{sam}(e^{-\lambda t_d})_{sam}}{m_{st}(e^{-\lambda t_d})_{st}} \quad 2.15$$

Où :

m_{st} , m_{sam} sont les masses de standard et de l'élément dans l'échantillon respectivement.

Cette méthode est plus précise est plus facile que la méthode absolu (les interférences sont éliminer lors de l'utilisation de standard).

Les erreurs liées à la méthode relative influence la précision des résultats. Elles surviennent notamment lors de la préparation des échantillons et lors de la mesure de l'intensité du rayonnement γ . [27]

2.1.3.2.3 Méthode -K₀

Une méthode d'analyse différente connue sous le nom de méthode k₀ (méthode de standardisation absolue) a été développée dans les années 1980. Le fondement de cette méthode est l'irradiation du moniteur avec l'échantillon prévu afin de déterminer le rapport du flux de neutrons thermiques ou flux de neutrons épithermiques. Ce comparateur (moniteur) sert de référence pour tous les autres éléments. Le dosage utilisant cette méthode doit prendre en compte les caractéristiques nucléaires des radio-isotopes, les conditions d'irradiation telles que la variation des sections efficaces en fonction de l'énergie neutronique et l'efficacité de la détection à différentes distances mesurées [37].

La concentration de l'élément analysé dans un échantillon exposé aux mêmes conditions de rayonnement que le comparateur est fourni par :

$$C_{ech} = \frac{N_{ech}}{N_{mo}} \frac{1}{K_0} \left(\frac{f + Q_{mo} (\alpha_{smo})}{f + Q_{ech} (\alpha)_{sech}} \right) \frac{\varepsilon_{mo}}{\varepsilon_{ech}}$$

Où :

C : concentration en ppm, *K₀* est le facteur k-zéro pour cet isotope, *f* est le rapport du flux thermique au flux épithermique, *Q_{mo}* et *Q_{ech}* sont les rapports de l'intégrale de résonance à section efficace des neutrons thermiques de moniteur et de l'échantillon respectivement, *α* est le facteur qui traduit l'écart à la loi de la variation de flux épithermique en fonction de l'inverse de l'énergie, *ε* c'est l'efficacité de détecteur à l'énergie gamma considérée [17].

2.1.4. Application de la technique INAA

L'INAA est une technique analytique multi-éléments très sensible et polyvalente, utilisée dans plusieurs études d'exploration pour la détermination précise de la concentration des éléments majeurs, mineurs et traces, y compris les métaux lourds et les REEs, présents dans des échantillons environnementaux ; sol, sédiments, plantes, eau, particules de l'air. Puisque cette technique fournit des informations précises résultats dans un délai raisonnable. [15]

2.1.5. Facteur d'auto-absorption des neutrons (Self-Shielding)

Lorsqu'un échantillon ou un étalon est immergé dans un champ de neutrons (dans le cœur de réacteur nucléaire) conduit à une auto-absorption des neutrons. Étant donné que les matériaux de l'échantillon absorbent et dispersent les neutrons, l'intérieur sera exposé à un taux de fluence neutronique inférieur à celui de l'extérieur, sauf si l'échantillon contient des noyaux fissiles

(production des neutrons par la réaction en chaîne) [38]. Cet effet, l'auto-absorption des neutrons, varie en fonction des sections efficaces d'absorption ainsi que la taille et la forme de l'échantillon. C'est la fraction de neutron qui est absorbée ou rétrodiffusée par l'échantillon sans contribution à la réaction de capture nucléaire. En tant que facteur de correction, cette fraction est directement liée aux composants qui composent la matrice échantillon [31-35].

2.1.6. Limite de détection

Le rapport signal sur bruit d'un pic dans le spectre des rayons gamma sert de base à la limite de détection dans l'INAA [17-18,29]. Cela dépend du type d'échantillon, du bruit ambiant et de la meilleure sélection des paramètres « temps ». La sensibilité de la méthode peut être considérablement diminuée par le bruit provenant de la détection de la radioactivité naturelle et du fond électronique, les interférences des spectres gamma et le blanc des matériaux qui composent l'enveloppe de l'échantillon, les problèmes d'encapsulation de l'échantillon et les contraintes de sécurité.

La quantité d'échantillon peut affecter la sensibilité de la méthode ; si elle est supérieure à 250 mg, l'échantillon va auto-atténuer les gammas et absorber le flux de neutrons lors de l'irradiation. [17]

La limite de détection a été estimée à l'aide de la formule suivante [17-18,37-38] :

$$DL = 2.71 + 4.65 \sqrt{B} \quad 2.16$$

Où B est le comptage de bruit de fond sous le pic d'absorption total du constituant d'intérêt.

La méthode absolue de la technique INAA a été utilisée dans cette étude afin de déterminer les concentrations des lanthanides dans les échantillons de phosphates. Néanmoins, elle génère plusieurs facteurs qui affectent la précision des résultats. La simulation Monte Carlo permet de réduire les procédures expérimentales et réaliser une analyse rapide et à faible coût. Elle est basée sur la détermination de paramètres d'irradiation (flux neutronique, facteurs d'auto-absorption neutronique thermique et épithermique) et des paramètres de mesure (efficacité du détecteur, optimisation de l'épaisseur de filtre) utilisant le code MCNP5 pour réduire les incertitudes altérations liée à la méthode absolue afin d'obtenir des concentrations des lanthanides dans les phosphates avec une bonne précision.

2.2. Approche Monte Carlo

2.2.1. Introduction

Un ensemble d'approches numériques basées sur l'utilisation des nombres aléatoires a été surnommé « Monte Carlo » dans les années 1940 par les scientifiques travaillant sur le projet d'armes nucléaires de Los Alamos [39].

La méthode de Monte Carlo peut être utilisée pour résoudre un large éventail de problèmes mathématiques et physiques difficiles, et reproduire théoriquement un processus statistique (comme l'interaction de particules nucléaires avec des matériaux) et est particulièrement utile pour les problèmes complexes qui ne peuvent pas être modélisés par des codes informatiques. En général, la simulation est effectuée sur un ordinateur numérique car le nombre d'essais nécessaires pour décrire correctement le phénomène est généralement assez important [16-17,39].

Cette approche permet de simuler l'histoire d'une particule individuelle à travers un milieu atténuateur, en intégrant la nature probabiliste des différents phénomènes physiques qu'elle peut rencontrer en chemin (elle consiste à suivre réellement chacune des nombreuses particules depuis une source tout au long de sa vie jusqu'à sa mort dans une certaine catégorie terminale absorption, échappement, etc.). Cette simulation prend en compte les éventuelles particules secondaires générées et s'arrête dès que l'énergie de la particule descend en dessous d'un seuil prédéfini ou qu'elle atteint une zone de réjection.

Une histoire débute avec la naissance de la particule (émission depuis une source) et se termine par sa disparition (par absorption ou fuite). La figure 2.5 présente un organigramme simplifié de la construction d'une telle histoire :

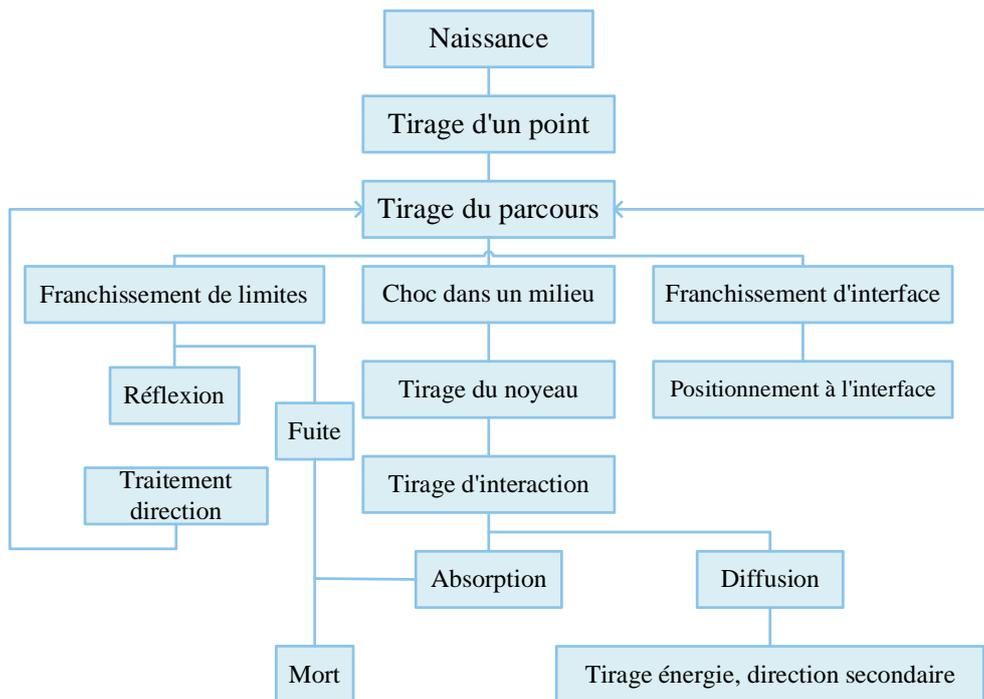


Figure 2. 5: Historique d'une particule dans un milieu ralentisseur [16]

Les méthodes de Monte Carlo sont aujourd'hui utilisées dans de nombreux codes, tels que EGS4, MCNP, Geant4, Fluka et Penelope.

EGS4/EGSnrc (Electron Gamma Shower) : Le code de Monte Carlo est l'un des premiers outils mis à disposition des chercheurs pour simuler le transport des paires électron/photon dans la matière."

GEANT 4.0 : Le programme GEANT a été initialement développé par le CERN pour l'étude des expériences en physique des hautes énergies.

FLUKA : Le code FLUKA (FLUKtuierende KAskade) est un code Monte Carlo dédié à l'interaction et au transport des particules, capable de modéliser les cascades induites par des particules de haute énergie [43].

PENELOPE (PENetration and Energy LOSS of Positrons and Electrons) : Développé par l'équipe du Professeur Salvat à la faculté de physique de l'Université de Barcelone, le code PENELOPE simule le transport des électrons, des positrons et des photons avec des énergies comprises entre 50 eV et 1 GeV. Il peut être utilisé pour des matériaux simples ($Z=1$ à $Z=99$) ainsi que pour des matériaux composites. Ce code combine une simulation détaillée du

transport des photons avec une simulation mixte pour le transport des électrons et des positrons [16,40].

2.2 .2. Code MCNP5

Le MCNP est un code Monte Carlo N-Particules à usage général qui peut être utilisé pour le transport de neutrons, de photons, d'électrons, ou un couple photon électron. Le code traite une configuration tridimensionnelle arbitraire de matériaux dans des cellules géométriques délimitées par des surfaces du premier et du deuxième degré. La gamme d'énergie des photons va de 1 keV à 100 GeV, celle des électrons de 1 keV à 1 GeV et la gamme d'énergie des neutrons va de 10MeV à 20 MeV pour tous les isotopes et jusqu'à 150 MeV pour certains isotopes. Une autre caractéristique commune est la possibilité de calculer les valeurs propres de K_{eff} pour les systèmes fissiles [17-20,40].

MCNP utilise des bibliothèques de données nucléaires et atomiques à énergie continue. Pour les neutrons, toutes les réactions données dans une évaluation de section efficace particulière (par exemple ENDF/B-VI) sont prises en compte. Les neutrons thermiques sont décrits à la fois par les modèles de gaz libre et S (α , β). Pour les photons, le code prend en compte la diffusion incohérente et cohérente, la possibilité d'émission fluorescente après absorption photoélectrique, l'absorption en production de paires avec émission locale de rayonnement d'annihilation et le Bremsstrahlung. Un modèle de ralentissement continu est utilisé pour le transport d'électrons qui inclut les positrons, les rayons X de la couche K et le Bremsstrahlung.

Les unités des constantes de base utilisées dans le code MCNP sont [39] :

Tableau 2. 2: Unités de quelques constantes des bases utilisées dans le code MCNP5[39]

Constants de base	Unité
Energie	MeV
Distance	Cm
Température	MeV (KT)
Densité atomique	g/cm ³
Section efficace	Barns (10^{-24} cm ²)

2.2.3. Fichier input de code MCNP5

Le fichier INP, qui porte le nom par défaut, est le fichier d'entrée principal de l'utilisateur et contient les données d'entrée nécessaires pour définir le problème. Ici, nous présenterons

uniquement le sous-ensemble des cartes requis pour exécuter le problème de démonstration de source simple résolu. La forme d'un fichier d'entrée est la suivante :

Message Block

Blank Line Delimiter

One-line Problem Title Card

Cell Cards

-
-

Blank Line Delimiter

Surface Cards

-
-

Blank Line Delimiter

- Data Cards

-
-

Blank Line Terminator (optional)

A) La géométrie

1. Les cellules

Les cellules peuvent être formées par l'intersection, l'union ou le complément de plusieurs surfaces. La formulation pour définir correctement une cellule est la suivante :

j m d geom (params)

Où :

J : la première entrée définit le numéro de la cellule.

m : désigne le numéro de matériau qui constituant la cellule J. Si on choisit $m = 0$, la cellule est déclarée vide.

d : La densité du matériau cellulaire est indiquée dans cette entrée. Une densité atomique mesurée en atomes/cm³ est considérée comme une entrée positive, tandis qu'une densité de masse mesurée en g/cm³ est interprétée comme une entrée négative. Une cellule vide n'a pas de densité insérée.

geom. : comprend une liste de surfaces signées qui définissent les limites de la cellule, le signe indiquant la direction des régions définies par ces surfaces.

Params : sont des spécifications optionnelles de paramètres des cellules.

2. Les surfaces

Les surfaces sont les formes géométriques qui définissent les limites du problème modélisé. Le code MCNP5 donne accès aux tores elliptiques et dégénérés du quatrième degré de géométrie analytique, ainsi qu'aux surfaces des premiers et deuxièmes degrés. Dans MCNP, les paramètres de surface peuvent être spécifiés de deux manières : (1) en fournissant les coefficients corrects pour remplir l'équation de surface, ou (2) en fournissant des emplacements géométriques connus sur une surface symétrique par rapport à un axe de coordonnées et symétrique en rotation. Pour en définir une, on entre la formulation suivante [17-20,40-43] :

J a list

Où :

j : est un nombre compris entre 1 et 99999 désignant le numéro de la surface.

a et list : représentent respectivement l'abréviation d'une surface reconnue par le programme et les paramètres qui s'y réfèrent (Type et description de surface (plan, sphère, cylindre, rayon, démonisons) .Dans le tableau 2.3 sont données les cartes des surfaces reconnues par le code MCNP.

Tableau 2. 3 : Bibliothèque des cartes des surfaces dans le code MCNP [16-17,39]

Mnemonic	Type	Description	Equation	Card Entries
P	Plane ↓	General	$Ax + By + Cz - D = 0$	$ABCD$
PX		Normal to X-axis	$x - D = 0$	D
PY		Normal to Y-axis	$y - D = 0$	D
PZ		Normal to Z-axis	$z - D = 0$	D
SO	Sphere ↓	Centered at Origin	$x^2 + y^2 + z^2 - R^2 = 0$	R
S		General	$(x - \bar{x})^2 + (y - \bar{y})^2 + (z - \bar{z})^2 - R^2 = 0$	$\bar{x} \bar{y} \bar{z} R$
SX		Centered on X-axis	$(x - \bar{x})^2 + y^2 + z^2 - R^2 = 0$	$\bar{x} R$
SY		Centered on Y-axis	$x^2 + (y - \bar{y})^2 + z^2 - R^2 = 0$	$\bar{y} R$
SZ		Centered on Z-axis	$x^2 + y^2 + (z - \bar{z})^2 - R^2 = 0$	$\bar{z} R$
C/X	Cylinder ↓	Parallel to X-axis	$(y - \bar{y})^2 + (z - \bar{z})^2 - R^2 = 0$	$\bar{y} \bar{z} R$
C/Y		Parallel to Y-axis	$(x - \bar{x})^2 + (z - \bar{z})^2 - R^2 = 0$	$\bar{x} \bar{z} R$
C/Z		Parallel to Z-axis	$(x - \bar{x})^2 + (y - \bar{y})^2 - R^2 = 0$	$\bar{x} \bar{y} R$
CX		On X-axis	$y^2 + z^2 - R^2 = 0$	R
CY		On Y-axis	$x^2 + z^2 - R^2 = 0$	R
CZ		On Z-axis	$x^2 + y^2 - R^2 = 0$	R
K/X	Cone ↓	Parallel to X-axis	$\sqrt{(y - \bar{y})^2 + (z - \bar{z})^2} - t(x - \bar{x}) = 0$	$\bar{x} \bar{y} \bar{z} t^2 \pm 1$
K/Y		Parallel to Y-axis	$\sqrt{(x - \bar{x})^2 + (z - \bar{z})^2} - t(y - \bar{y}) = 0$	$\bar{x} \bar{y} \bar{z} t^2 \pm 1$
K/Z		Parallel to Z-axis	$\sqrt{(x - \bar{x})^2 + (y - \bar{y})^2} - t(z - \bar{z}) = 0$	$\bar{x} \bar{y} \bar{z} t^2 \pm 1$
KX		On X-axis	$\sqrt{y^2 + z^2} - t(x - \bar{x}) = 0$	$\bar{x} t^2 \pm 1$
KY		On Y-axis	$\sqrt{x^2 + z^2} - t(y - \bar{y}) = 0$	$\bar{y} t^2 \pm 1$
KZ		On Z-axis	$\sqrt{x^2 + y^2} - t(z - \bar{z}) = 0$	$\bar{z} t^2 \pm 1$
				± 1 used only for 1 sheet cone
SQ	Ellipsoid Hyperboloid Paraboloid	Axes parallel to X-, Y-, or Z-axis	$A(x - \bar{x})^2 + B(y - \bar{y})^2 + C(z - \bar{z})^2 + 2D(x - \bar{x}) + 2E(y - \bar{y}) + 2F(z - \bar{z}) + G = 0$	$A B C D E$ $F G \bar{x} \bar{y} \bar{z}$
GQ	Cylinder Cone Ellipsoid Hyperboloid Paraboloid	Axes not parallel to X-, Y-, or Z-axis	$Ax^2 + By^2 + Cz^2 + Dxy + Eyz + Fzx + Gx + Hy + Jz + K = 0$	$A B C D E$ $F G H J K$
TX	Elliptical or circular torus. Axis is Parallel to X-, Y-, or Z-axis		$(x - \bar{x})^2/B^2 + (\sqrt{(y - \bar{y})^2 + (z - \bar{z})^2} - A)^2/C^2 - 1 = 0$	$\bar{x} \bar{y} \bar{z} A B C$
TY			$(y - \bar{y})^2/B^2 + (\sqrt{(x - \bar{x})^2 + (z - \bar{z})^2} - A)^2/C^2 - 1 = 0$	$\bar{x} \bar{y} \bar{z} A B C$
TZ			$(z - \bar{z})^2/B^2 + (\sqrt{(x - \bar{x})^2 + (y - \bar{y})^2} - A)^2/C^2 - 1 = 0$	$\bar{x} \bar{y} \bar{z} A B C$
X Y Z P	Surfaces defined by points		See pages 3-16 and 3-18	

B) carte de données

1. Définition de la source

Une carte de définition de source SDEF est l'une des quatre méthodes disponibles pour définir les particules de départ. Elle est définie par plusieurs paramètres de base, dont certains tels que :

POS : position de la source (par défaut en (0 ;0 ;0)).

Cell : numéro de cellule de la particule de départ

ERG : énergie des particules sources (par défaut 14 MeV).

VEC : vecteur directeur de la source si non isotrope.

DIR : cosinus directeur de la source si non isotrope.

PAR : le type de particule ($N=1$, $P=2$, $E=3$, défaut dépendant de la carte MODE utilisée) ou N est neutron, P est photon et E est électron.

2. Définition des tallies

Le code MCNP propose plusieurs types de comptage pour plusieurs particules (six comptes de neutrons standard, six comptes de photons standard et quatre comptes d'électrons s). Il est possible de définir des différents tallies (résultats) dans le code MCNP en fonction du résultat qu'on souhaite obtenir. Les comptages sont identifiés par type de comptage et type de particule. Toutes les cartes de pointage et leur description complète sont données ci-dessous.

F1 : N or $F1:P$ or $F1 : E$ Courant de surface

F2 : N or $F2:P$ or $F2 : E$ flux d'une surface

F4 : N or $F4:P$ or $F4 : E$ flux d'une cellule

F5a : N or $F5a:P$ Flux en un point (détecteur ponctuel)

F6 : N or $F6:P$ or $F6 : N, P$ dépôt d'énergie

F7 : N dépôt d'énergie de fission

F8:P or *F8* : E or *F8:P, E* Distribution d'énergie des impulsions créées dans un détecteur

A. Définition des matériaux

Cette carte précise la composition isotopique des matériaux et les évaluations des sections efficaces à utiliser dans les cellules. Comme indiqué précédemment, le matériau qui constitue une cellule se voit attribuer un numéro m dans la définition des cellules. La carte Mm contient ce numéro m ; son format simple est :

Mm ZAID fraction

Où :

Mm : correspond au numéro de matériel sur la carte des cellules.

Zaid : utilisé pour identifier l'élément ou le nucléide souhaité.

Cette entrée se décompose en ZZZAAA.nnx, où ZZZ est le numéro atomique de l'élément considéré, AAA est le numéro de masse (masse atomique).

n : la bibliothèque des sections efficaces et *x* la classe de l

CHAPITRE 3 : Matériels et Méthodes

Chapitre 3 : Matériels et Méthodes

3.1. Préparation des échantillons et irradiation

Les échantillons de phosphate ont été placés dans une étuve à 105°C pendant 24 h, puis broyés en une fine poudre et tamisés pour éliminer les plus grosses particules. Une quantité de 80 mg d'échantillons de phosphate a été emballée dans des feuilles d'aluminium de 1 cm² et conditionnée dans une capsule d'irradiation en aluminium (figure 3.1), qui a été irradiée pendant 4 heures sous un flux de neutrons thermiques de $2,36 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ et un flux de neutrons épithermiques de $8,7 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ au réacteur de recherche nucléaire NUR.



Figure 3. 1: Procédure de préparation de la capsule d'irradiation

3.2. Mesures spectrométriques

Les échantillons irradiés ont été mesurés par spectrométrie gamma à l'aide d'un système de détection composé essentiellement d'un détecteur à semi-conducteur du modèle GX-3519 de type P en germanium de haute pureté Ge (Hp), fabriqué par Canberra, avec une fenêtre en carbone époxy. Le détecteur a une résolution énergétique (FWHM) de 1,85 keV à 1 332,5 keV de rayons gamma ⁶⁰Co et une efficacité relative de 35 %. Le détecteur est entouré d'un blindage composé de plomb de 100 mm d'épaisseur, de 1 mm d'étain et de 1,6 mm de cuivre pour réduire la contribution des rayons X du plomb au spectre gamma [44-45].



Figure 3. 2: Dispositif expérimental de la technique de spectrométrie gamma

Les spectres obtenus ont été analysés à l'aide d'un analyseur multicanal 8k et du logiciel Génie 2000, bien indiqué dans le traitement des spectres de rayons gamma. [42,45,51]. Deux campagnes de mesures ont été réalisées en fonction du temps de désintégration des radioéléments.

3.2.1. Etalonnage de la chaîne de mesure

Pour réaliser une mesure précise avec des bons résultats et une identification correcte des radio-isotopes, il est impératif de calibrer la chaîne de détection en énergie et en efficacité.

3.2.1.1. Calibration en énergie

La calibration en énergie de la chaîne de la spectrométrie gamma représente la première tâche, qui doit être mise en œuvre avant chaque mesure. Elle consiste à déterminer la droite d'étalonnage en énergie en fonction du numéro de canal utilisant une source radioactive d'énergie gamma bien défini. La source d' ^{152}Eu d'une géométrie ponctuelle et d'activité initiale de 62.61 KBq a été utilisée pour l'étalonnage de la chaîne de spectrométrie gamma. La source a été mesurée pendant 3600 s.

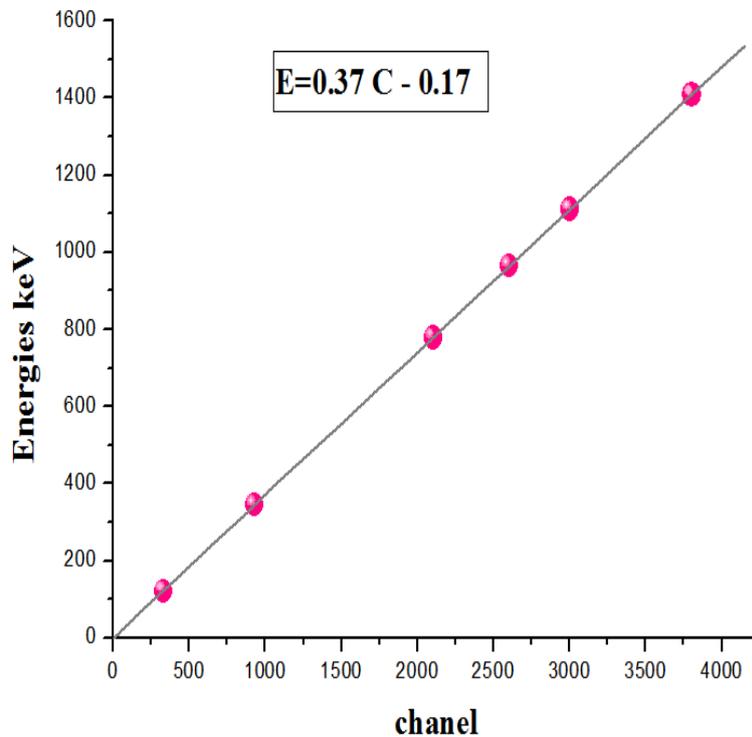


Figure 3. 3: Droite d'étalonnage de la chaine de mesure

3.2.1.2. Calibration en efficacité

La calibration en efficacité, c'est la détermination de l'efficacité absolue du détecteur par la relation suivante :

$$\varepsilon = \frac{N/t_c}{A * \delta}$$

Avec :

ε : efficacité absolue du détecteur , N : l'intensité de pic de l'absorption totale , t_c : le temps de comptage, A :l'activité de la source et δ est le facteur d'embranchement

L'erreur sur l'efficacité est donnée par la formule suivante :

$$\frac{\Delta\varepsilon}{\varepsilon} = \sqrt{\left(\frac{\Delta N}{N}\right)^2 + \left(\frac{\Delta A}{A}\right)^2 + \left(\frac{\Delta\delta}{\delta}\right)^2 + \left(\frac{\Delta t_c}{t_c}\right)^2}$$

La mesure a été effectuée à l'aide d'une source ponctuelle d' ^{152}Eu , mesurée pendant un temps t_c de 1000 s et à une distance source- détecteur de 17 cm. (figure 3.5)

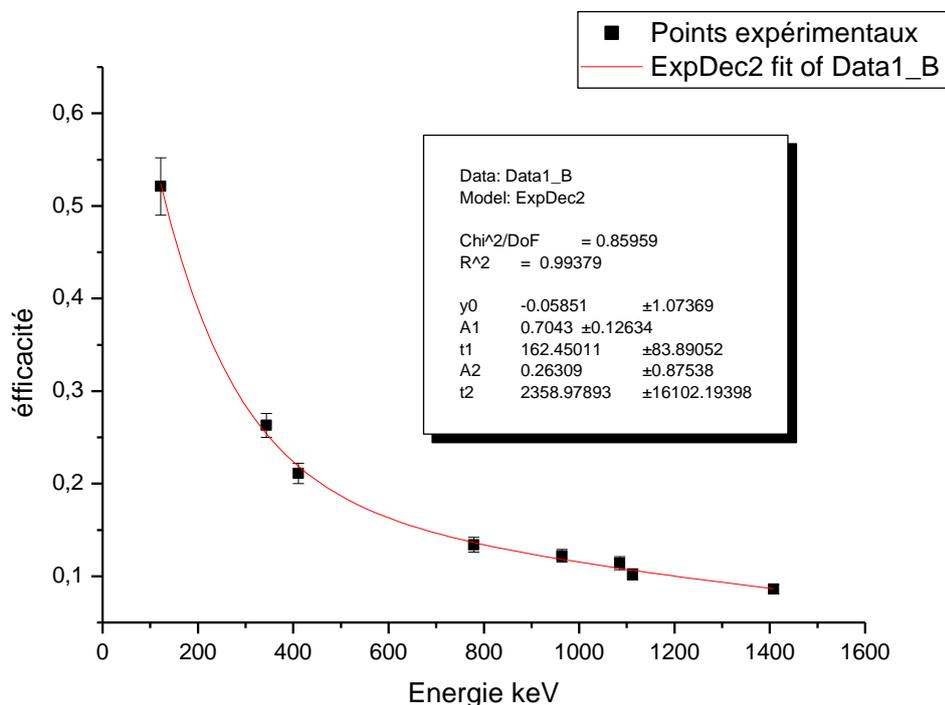


Figure 3. 4 : Courbe d'efficacité expérimentale du détecteur

3.3. Mesures des échantillons irradiés

Après un temps de refroidissement approprié, les échantillons irradiés ont été mesurés par spectrométrie gamma, utilisant un détecteur germanium hyper pur Ge (hp). Cette décroissance permet la disparition des radioéléments de courtes périodes pour permettre l'identification de radio-isotopes à vie moyennes et longues.

Deux campagnes de mesures ont été réalisées en fonction de la période des radioéléments. La première mesure a été effectuée après 8 jours de décroissance pour déterminer les radioéléments de moyennes périodes. Les mesures ont été effectuées durant 3000 secondes pour une distance échantillon-détecteur $d=17\text{cm}$. Cette distance est choisie afin de maintenir un temps mort inférieur à 2%. Les secondes mesures ont été mesurées pendant 3600 secondes pour la détermination des radioéléments de longues périodes après 27 jours de désintégration à une distance source-détecteur $d= 8,5\text{ cm}$.

L'analyse qualitative est obtenue après un traitement des spectres gamma obtenus grâce au logiciel Genie2000. La figure ci-dessous montre un spectre expérimental d'un échantillon de phosphate irradiée durant 04 heures.

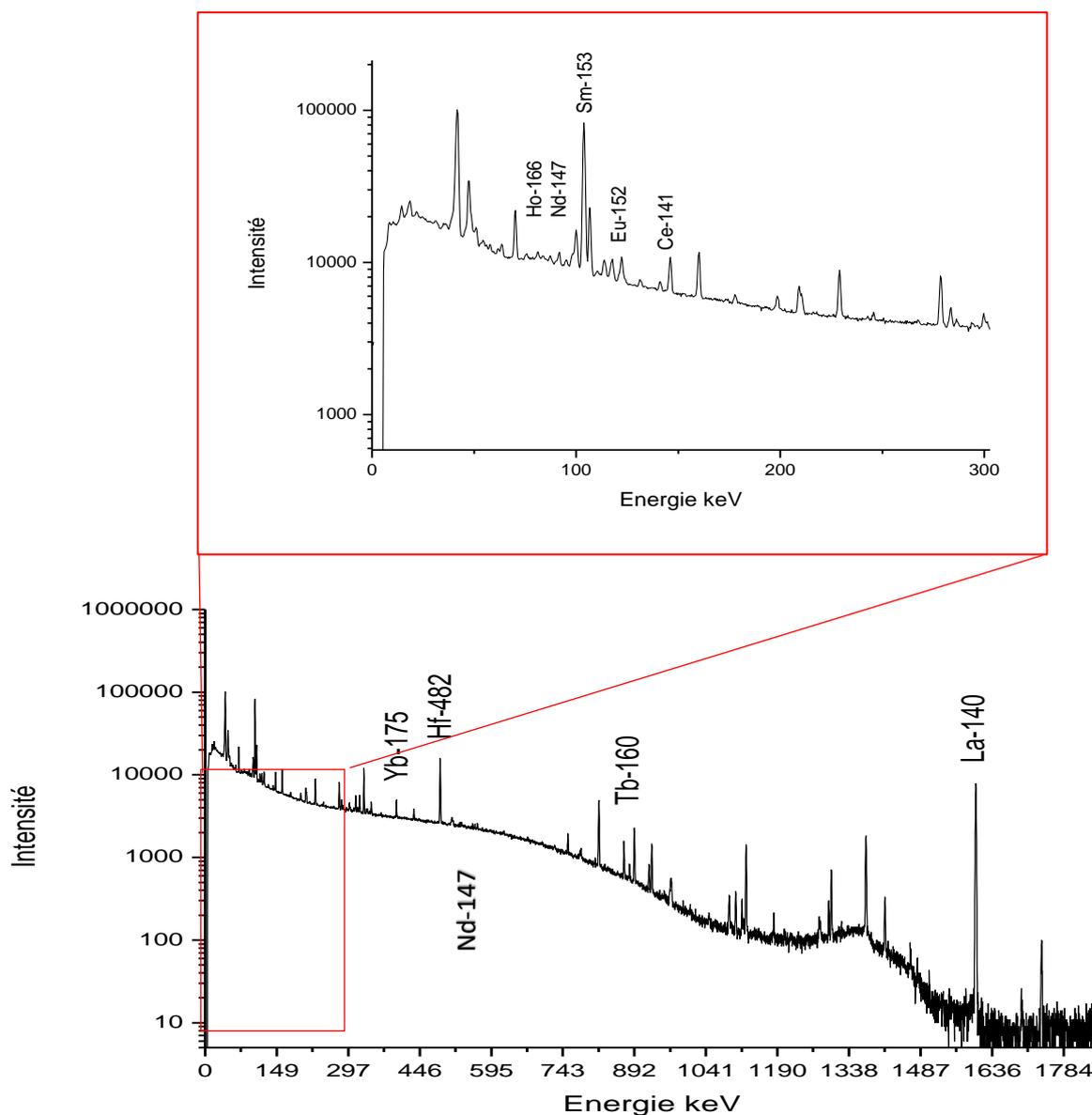


Figure 3. 5 : Spectre d'un échantillon de phosphate pour les moyennes périodes

La présence de phosphore dans la matrice du phosphate sous la forme de P_2O_5 avec une concentration élevée (environ 30%), conduit à la production de ^{32}P sous l'irradiation par un flux thermique $^{31}P (n, \gamma)^{32}P$ d'énergie maximale de 1,71 MeV et d'énergie moyenne de 695 keV. Cet émetteur bêta (β^-) pur présente un spectre de Bremsstrahlung (bruit de fond) qui influence le spectre gamma des lanthanides dans l'échantillon, affectant l'identification de l'intensité exacte des radioéléments.

3.4. Procédure de la simulation Monte Carlo

Le code Monte Carlo N-Particule Code (MCNP5), a été utilisé pour développer des modèles de corrections des paramètres d'irradiation et de mesure tels que l'efficacité du détecteur, facteur d'auto-absorption des neutrons et ainsi que pour la réduction du spectre de Bremsstrahlung afin d'améliorer la limite de détection INAA.

3.4.1. Optimisation des paramètres de mesure

3.4.1.1. Simulation d'une source ponctuelle -détecteur

La forme du détecteur a été modélisée dans une première étape en utilisant les caractéristiques du détecteur fournies par le fabricant (Canberra) comprenant : les matériaux, la géométrie et les dimensions du détecteur et ses composants, présentées dans le tableau ci-dessous [46-48].

Tableau 3. 1: Dimensions du détecteur Ge (Hp) [46-48]

Détecteur	Dimensions (mm)
Diamètre du cristal Ge	60,5
Longueur du cristal Ge	61
Epaisseur de la couche morte	0.004
Diamètre de la cavité	12
Longueur de la cavité	51
Epaisseur de l'aluminium	1,5
Epaisseur de la couche du carbone	0,5
Distance entre le Ge et l'aluminium	5

Cependant, certaines données fournies peuvent changer avec le temps, comme l'épaisseur de la couche morte, ce qui nécessite une ré-caractérisation du détecteur [53-56]. L'épaisseur de la couche morte du détecteur Ge (Hp) type P a été déterminée et validée au préalable [18]. Les résultats de l'ajustement de l'épaisseur de la couche morte sont présentés dans le tableau 3.2.

Tableau 3. 2: Epaisseur de la couche morte après ajustement[18]

La couche	Latérale	Haut	Trou
L'épaisseur	3mm	150 μ m	2 mm

L'épaisseur de la couche morte en germanium et les dimensions du détecteur optimisés ont été prises en considération. La géométrie optimisée du détecteur Ge (Hp) utilisées représentée sur la figure suivante :

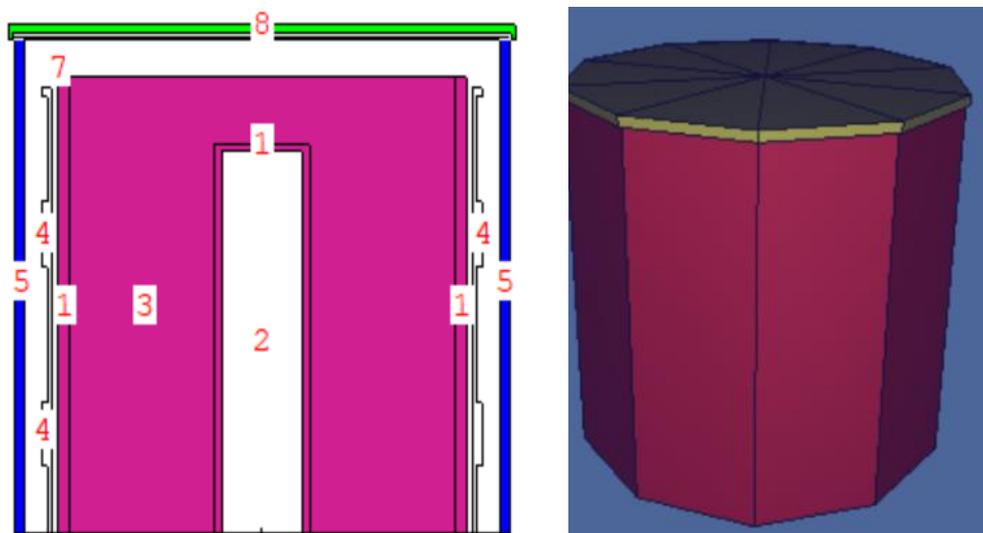


Figure 3. 6 : Géométrie du détecteur simulé par MCNP5

Nous avons ensuite vérifié notre géométrie en calculant l'efficacité du détecteur à l'aide d'une source ponctuelle d' ^{152}Eu .

Les mesures expérimentales nous ont permis de valider les résultats simulés par le code MCNP5.

La première étape de validation consiste à simuler un spectre qualitatif de la source afin de le comparer avec le spectre obtenu expérimentalement. Pour cela, nous avons introduit sur la carte SDEF les énergies gamma les plus intenses de la source d'Europium. La figure 3.7 illustre une analyse comparative entre le spectre qualitatif simulé et mesuré.

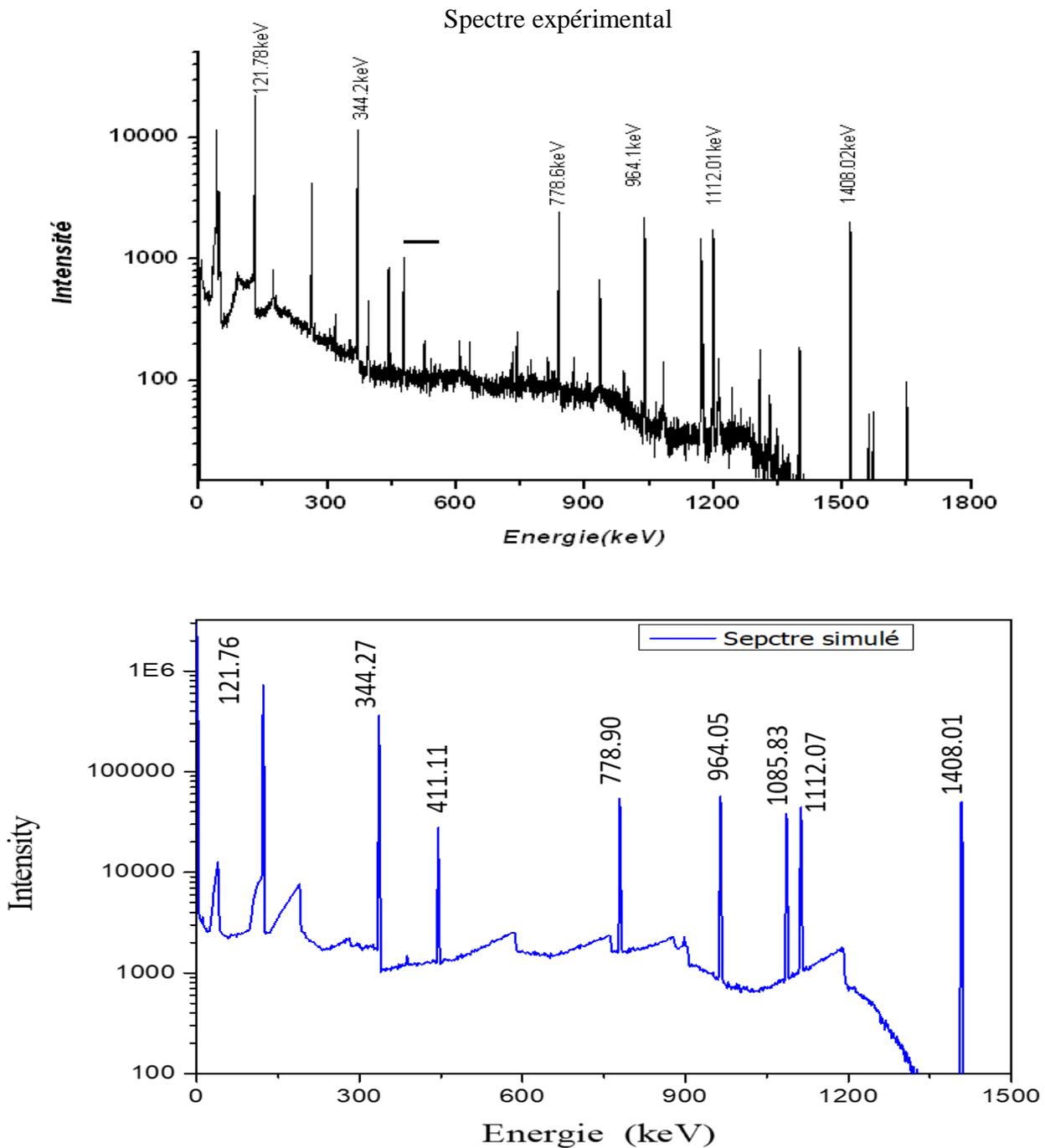


Figure 3. 7: Spectre qualitatif de ^{152}E expérimental et simulé par MCNP5

Une fois le spectre qualitatif obtenu, nous avons simulé énergie par énergie pour déterminer les efficacités simulées du détecteur pour la source d'euporium ^{152}Eu . La figure 3.8 et le

tableau 3.3 montrent les valeurs d'efficacité obtenues expérimentalement et par simulation pour le détecteur coaxial Ge (Hp).

Tableau 3. 3: Valeurs de l'efficacité expérimentale et simulée

Energie (keV)	ϵ_{exp}	$\epsilon_{simulé}$	Déviaton
121.78	0.513 ± 0.02	0.506	2%
344.27	0.265 ± 0.01	0.264	1%
411.11	0.233 ± 0.01	0.226	3%
778.90	0.136 ± 0.007	0.132	3%
964.05	0.115 ± 0.006	0.111	3%
1085.83	0.101 ± 0.005	0.098	3%
1112.07	0.101 ± 0.005	0.097	4%
1408.01	0.084 ± 0.004	0.080	5%

La déviaton a été calculée par la relation suivante : $D = \left(\frac{\epsilon_{exp} - \epsilon_{sim}}{\epsilon_{exp}} \right) \times 100$

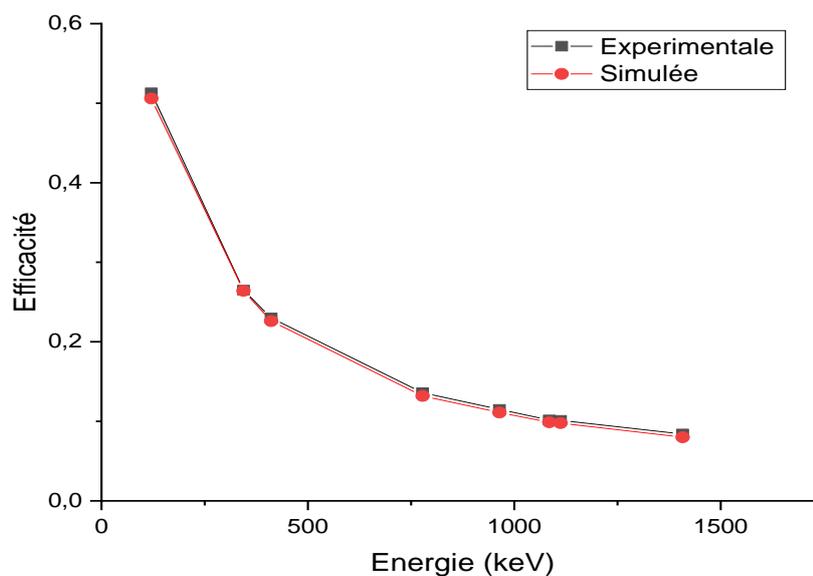


Figure 3. 8: Courbe d'efficacité expérimentale et simulée de détecteur par MCNP5

La différence entre les efficacités simulées obtenues à partir de notre configuration détecteur-source ponctuelle et les efficacités mesurées est inférieure à 5 %. L'accord entre les efficacités simulées et expérimentales démontre que le modèle développé est précis et fiable pour calculer l'efficacité à l'aide de la simulation Monte Carlo.

3.4.1.2 Simulation de la configuration de mesure d'une source parallélépipède- détecteur

La configuration de mesure comprend le détecteur Ge(hp) et une source parallélépipédique (matrice de phosphate) de dimension 1 cm × 1 cm × 0,1 cm.

Afin de fournir une carte des matériaux pour le code MCNP5, la technique XRF est utilisée pour déterminer la composition chimique de la matrice de phosphate. Dans cette étude nous avons employé un spectromètre de fluorescence des rayons X à dispersion d'énergie (ED-XRF) de marque QUANT'X fourni par Thermo- Fisher.

Analyse des échantillons de phosphate par ED-XRF :

La technique d'analyse par fluorescence X à dispersion d'énergie (ED-XRF) est une méthode analytique non destructive bien connue pour la spectroscopie d'émission de rayons X. Même dans les situations où les quantités d'échantillons disponibles sont limitées, cette technique constitue un instrument puissant pour des analyses multi-éléments rapides et permet l'identification simultanée de plusieurs éléments dans un solide ou un liquide avec une excellente sensibilité de détection [49].

L'analyseur utilise une source d'excitation de tube à rayons X avec une anode de Rhodium de 50 W à hauts flux avec une tension d'excitation de 4 à 50 KV et un détecteur à semi-conducteur de type silicium (SDD) avec une résolution typique de 151 eV à Cu $K\alpha$ pour fournir une analyse spectroscopique d'éléments, allant du sodium à l'uranium (numéros atomiques de 11 à 92). Un filtre Cu épais et un temps de mesure de 300 s ont été utilisés. La figure ci-dessous montre un

spectre acquis avec le spectromètre ARL QUANT’X d'un échantillon de phosphate.

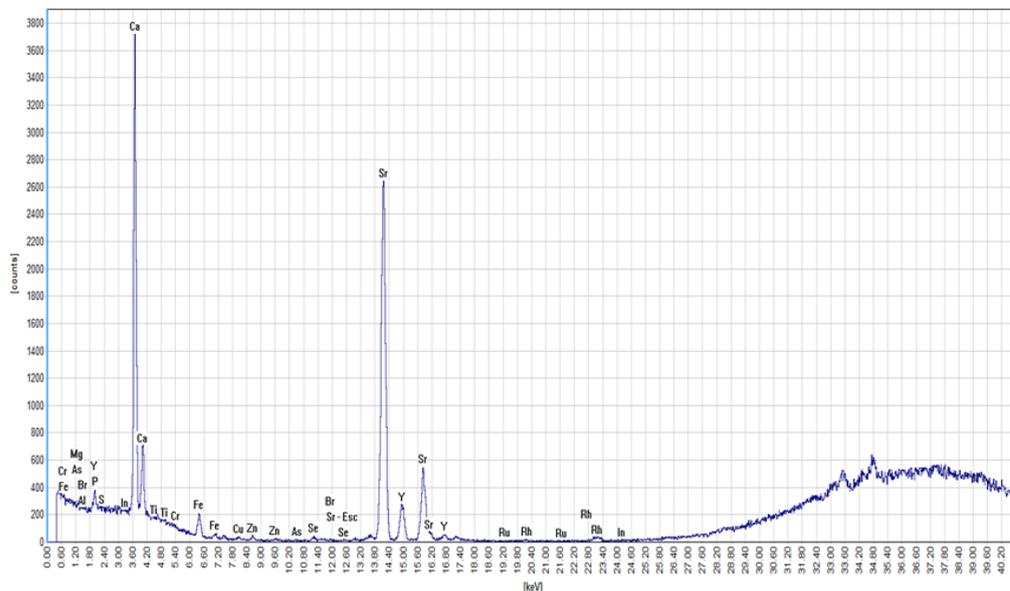


Figure 3. 9: Spectre qualitatif d'une matrice de phosphate par la technique ED- XRF

Les résultats quantitatifs obtenus sont donnés dans le tableau, qui a été utilisés dans le fichier input du code MCNP5.

Tableau 3. 4: la composition élémentaire de la matrice de phosphate par XRF

Matrice	Composition %	
Matrice de phosphate	P ₂ O ₅	30.22%
	CO ₂	6.35%
	SO ₃	2.95%
	CaO	50.20%
	MgO	0.91%
	Fe ₂ O ₃	0.38%
	Al ₂ O ₃	0.42%
	Na ₂ O	1.12%
	K ₂ O	0.1
	SiO ₂	2.12%
	F	3.48%

Le fichier d'entrée est composé de 43 surfaces, 15 cellules et 15 matériaux, l'option carte F8 du code MCNP5 et la fonction GEB (c'est l'élargissement gaussien donné par l'équation

d'élargissement gaussien de l'énergie, il est appliqué pour tenir compte de la résolution expérimentale du détecteur Ge (HP) pour chaque énergie de photon.

Les données expérimentales de la largeur totale à mi-hauteur (FWHM) ont été ajustées par la fonction suivante :

$$\text{FWHM}(\text{MeV}) = a + b\sqrt{E} + cE^2$$

Où : $a = 0,707 \cdot 10^{-3} \text{ MeV}$, $b = 0,946 \cdot 10^{-3} \text{ MeV}^{1/2}$, $c = 0$ fournie par le logiciel genie2000. Ont été utilisées pour calculer l'efficacité absolue du détecteur avec des énergies comprises entre (50 et 2000 keV) pour une géométrie parallélépipédique (figure 3.10). Les énergies de coupure pour les photons ont été fixées à 1 keV pour tenir compte de tous les modes d'interaction des photons avec le cristal germanium (interaction photoélectrique, diffusion Compton et l'effet de création de pair pour les photons de hautes énergies). Le nombre de particules (NPS) simulés est fixé à 10^8 particules afin d'obtenir une erreur de simulation inférieure à 1%. (Annexe 1) [46-52].

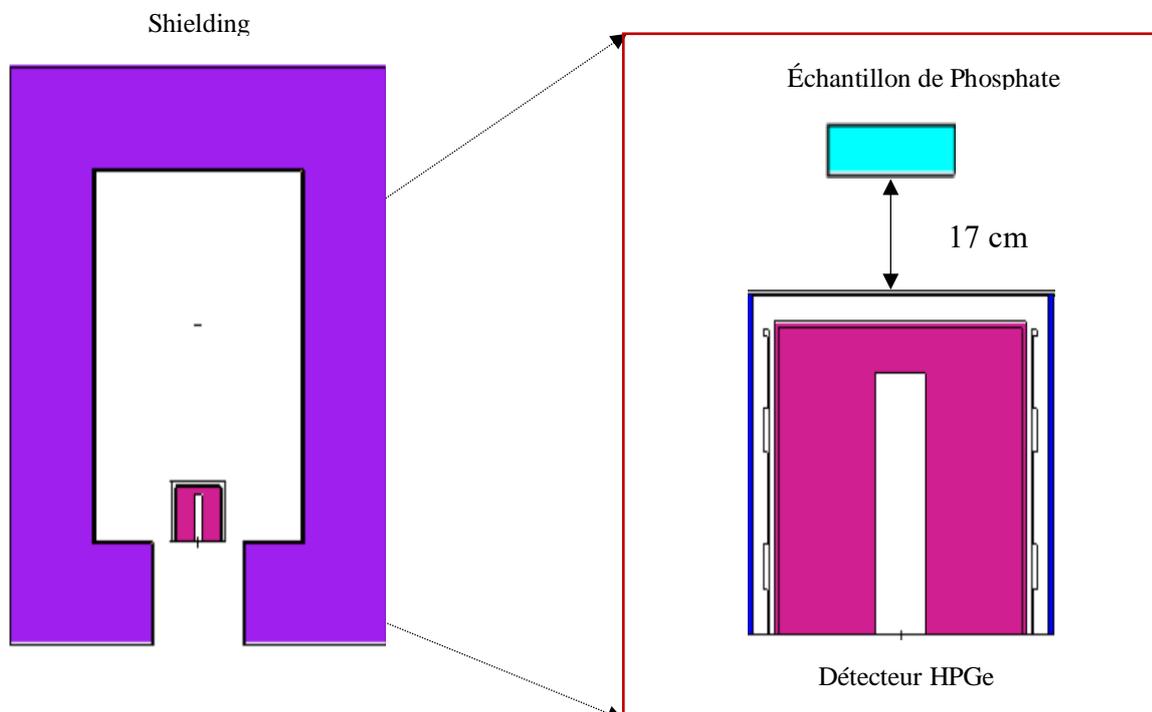


Figure 3. 10: Géométrie du détecteur-matrice de phosphate simulée par MCNP5 suivant l'axe XZ

Le modèle simulé de l'efficacité du détecteur nous permet de donner un spectre qualitatif des éléments de terre rares avec des valeurs précises de l'efficacité à une énergie de rayon gamma spécifique.

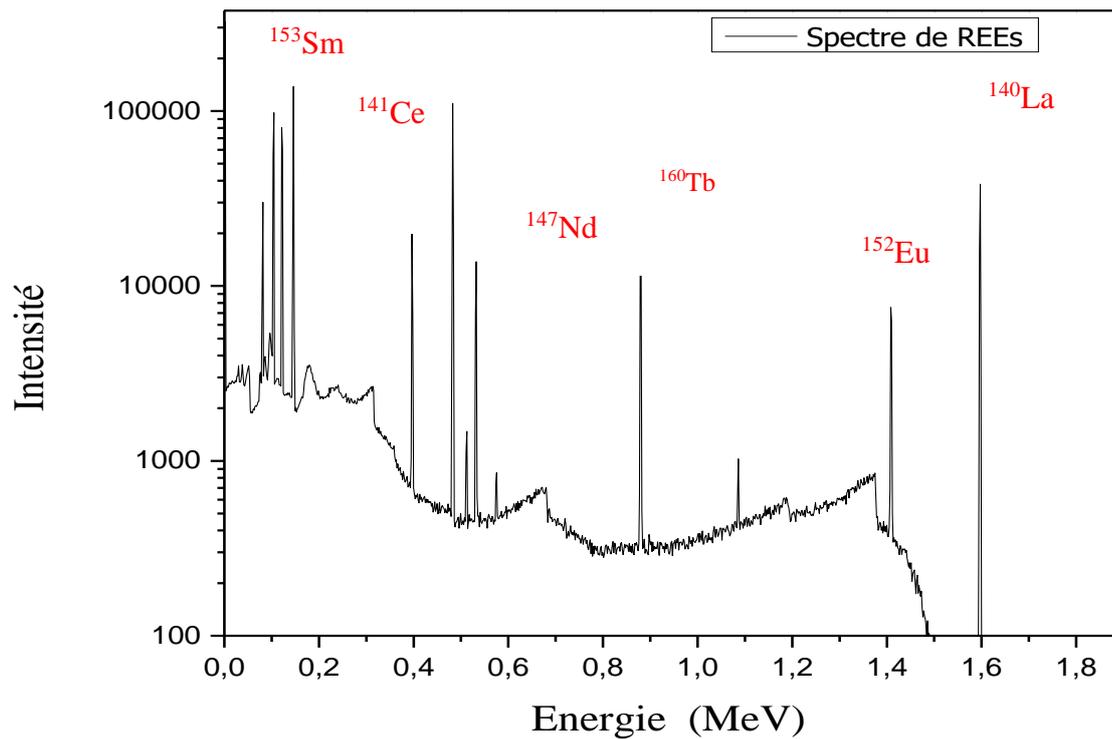


Figure 3. 11 : Spectre qualitatif des REEs simulé par MCNP5

Deux courbes d'efficacité ont été modélisées par MCNP5, la première à une distance de 17 cm, utilisée pour le dosage des éléments de moyennes périodes, et à une distance de 8.5cm pour les éléments de longues périodes. Les courbes des efficacités en fonction de l'énergie sont représentées dans les deux figures suivantes (figure 3.12 et figure 3.13) :

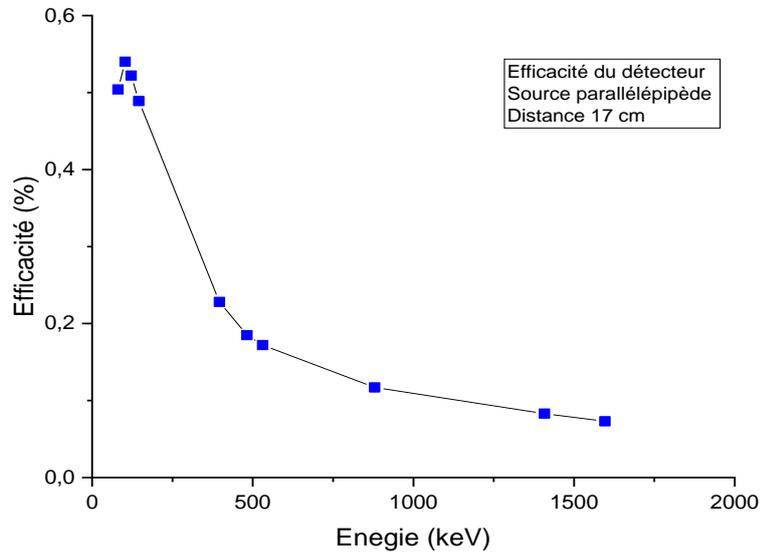


Figure 3. 12: Effacité simulée par MCNP5 à 17cm

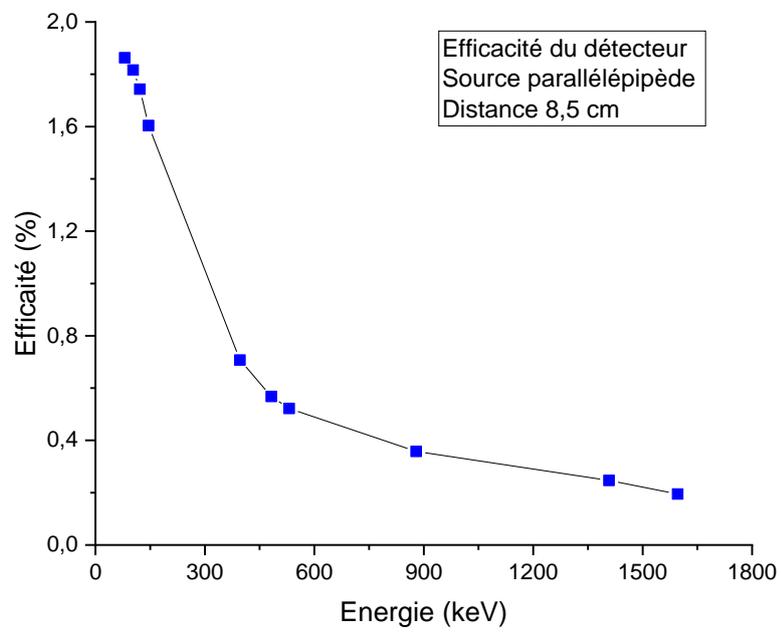


Figure 3. 13: Effacité simulée par MCNP5 a 8.5cm

Le tableau suivant présente les voies de réactions nucléaires, les périodes, les énergies gamma des radioéléments utilisées pour le dosage des éléments de terre rares dans les échantillons de phosphate, le mode de dosage et les efficacités de ces éléments, qui ont été déduites à partir de deux précédents courbes.

Tableau 3.5: Les valeurs d'efficacités du détecteur pour les éléments lanthanides déterminés par MCNP5 et réaction nucléaire utilisée pour la détermination des lanthanides

Élément	Reaction	Demi-de vie	Énergie (keV)	Mode	ε %
Ce	$^{140}\text{Ce} (n, \gamma) ^{141}\text{Ce}$	32.511d	145.44	LP	1.604
Sm	$^{152}\text{Sm} (n, \gamma) ^{153}\text{Sm}$	46.28 h	103.18	MP	0.536
Nd	$^{146}\text{Nd} (n, \gamma) ^{147}\text{Nd}$	11.03 d	531.01	LP	0.548
La	$^{139}\text{La} (n, \gamma) ^{140}\text{La}$	1.678 d	1596	MP	0.073
Yb	$^{174}\text{Yb} (n, \gamma) ^{175}\text{Yb}$	4.185 d	396.33	MP	0.222
Tb	$^{159}\text{Tb} (n, \gamma) ^{160}\text{Tb}$	72.3 d	879.37	LP	0.358
Eu	$^{151}\text{Eu} (n, \gamma) ^{152}\text{Eu}$	13.51 y	121.78	LP	1.743
			1408	LP	0.247
Ho	$^{165}\text{Ho} (n, \gamma) ^{166}\text{Ho}$	26.824 h	80.57	MP	0.504
Hf	$^{180}\text{Hf} (n, \gamma) ^{181}\text{Hf}$	42.39 d	482.18	LP	0.516

Avec MP: moyenne periode LP : Longue periode

Néanmoins, la présence de phosphore dans la matrice phosphatée qui influence le spectre gamma des lanthanides dans l'échantillon, affecte ainsi les limites de détection de la méthode. Pour réaliser une analyse avec une bonne précision, des corrections liées aux mesures spectrométriques doivent être apportées. Pour réduire ce spectre bêta, le code de simulation MCNP5 a été appliqué pour optimiser le type et l'épaisseur de filtre.

3.4.1.3. Procédure de réduction de Bremsstrahlung dû au ^{32}P

3.4.1 .3 .1. Simulation du spectre beta

La configuration détecteur-source qui a été développé précédemment par MCNP5 a été utilisée pour modéliser le spectre bêta en modifiant le tally, type de particule et le mode sur la carte SDEF. Le mode PE (photon-électron) et la fonction F4 ont été utilisés dans cette simulation. Cette fonction est une carte qui donne le flux moyen sur une cellule. Le nombre total de

particules considérées dans cette simulation est de 10^7 particules, suffisamment grand pour obtenir une incertitude minimale inférieure à 1%. [57-58] La géométrie du détecteur est donnée sur la figure (3.10)

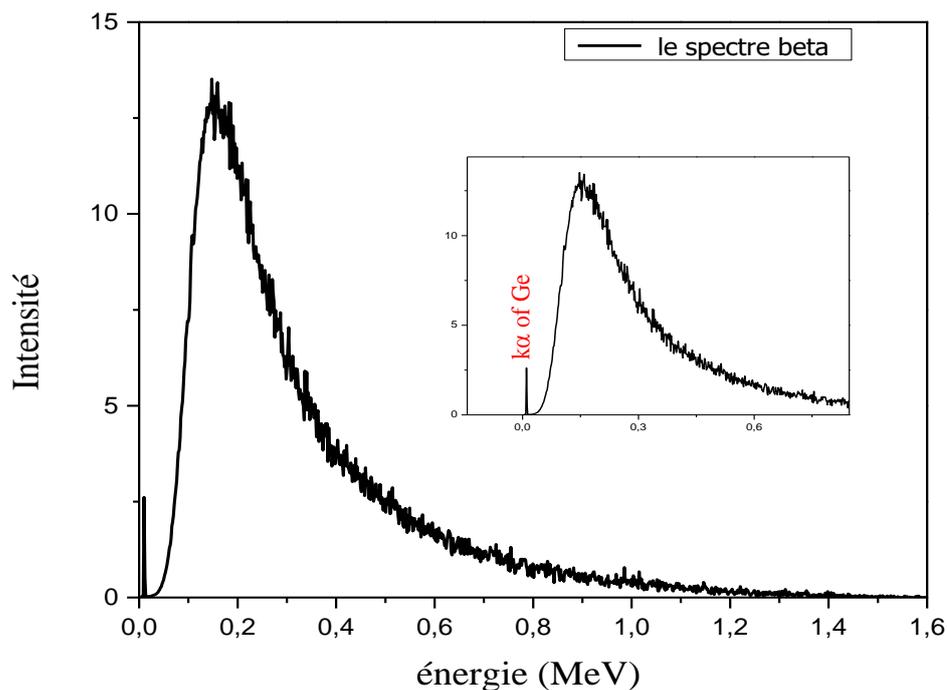


Figure 3. 14: Spectre bêta émis par le ^{32}P obtenu par MCNP5

L'interaction du bêta émis par le ^{32}P avec le cristal de germanium actif du détecteur conduit à la présence d'un rayonnement de freinage intense ainsi qu'à la présence du pic $k\alpha$ du germanium ($k\alpha = 9,98\text{keV}$). (Figure 3.14)

3.4.1.3.2. Choix de filtre atténuateur

Pour réduire ce spectre bêta, la simulation Monte Carlo a été appliquée pour optimiser les épaisseurs et le type de filtre. Dans cette simulation, l'échantillon de phosphate a été placé à 17 cm du détecteur. Entre l'échantillon et le détecteur, plusieurs filtres d'épaisseurs différentes ont été utilisés (Figure 3.15). Pour cet objectif, quatre filtres en aluminium d'épaisseurs différentes (ρx) : Al_1 ($654,2 \text{ mg cm}^{-2}$), Al_2 ($943,2 \text{ mg cm}^{-2}$), Al_3 ($1450,5 \text{ mg cm}^{-2}$) et Al_4 ($1596,3 \text{ mg cm}^{-2}$) ont été utilisés respectivement.

Tableau 3. 6: les différents filtres utilisés

Filtre	Al ₁	Al ₂	Al ₃	Al ₄	Pb
Coefficient d'atténuation massique mg cm ⁻²	654,2	943,2	1450,5	1596,3	2014,7

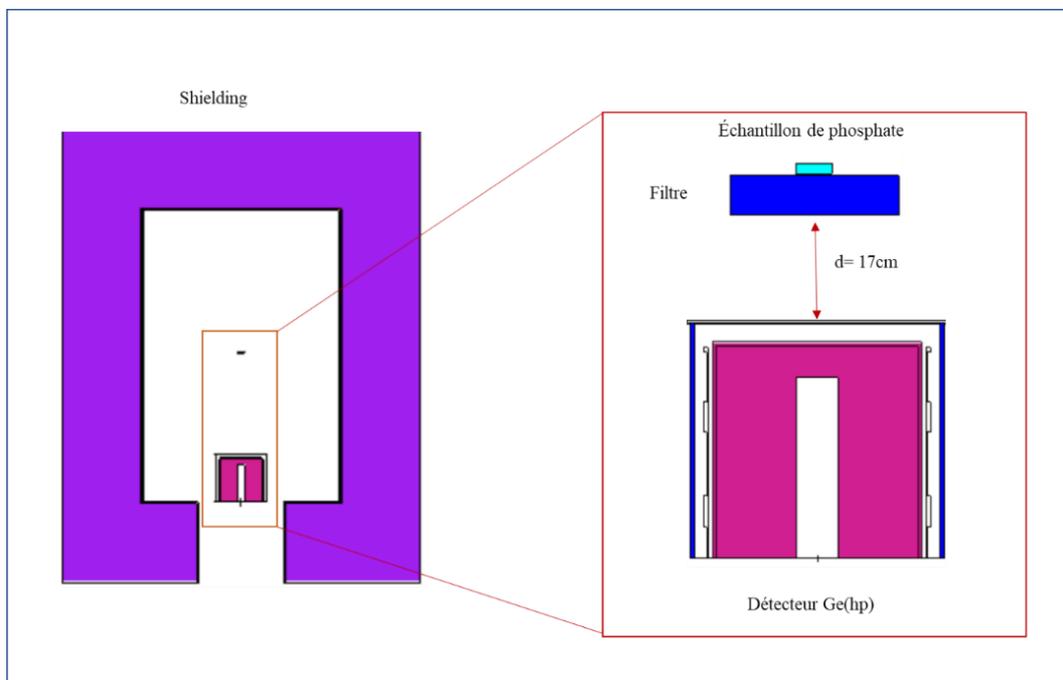


Figure 3. 15: Configuration de mesure échantillon de phosphate-filtre-détecteur simulée par MCNP5

La figure 3.16 présente l'effet général du filtre en aluminium sur le Bremsstrahlung. Cependant, la figure 3.17 donne plus de détails sur l'effet des différentes épaisseurs des filtres en aluminium sur le spectre de Bremsstrahlung simulés par le code MCNP5.

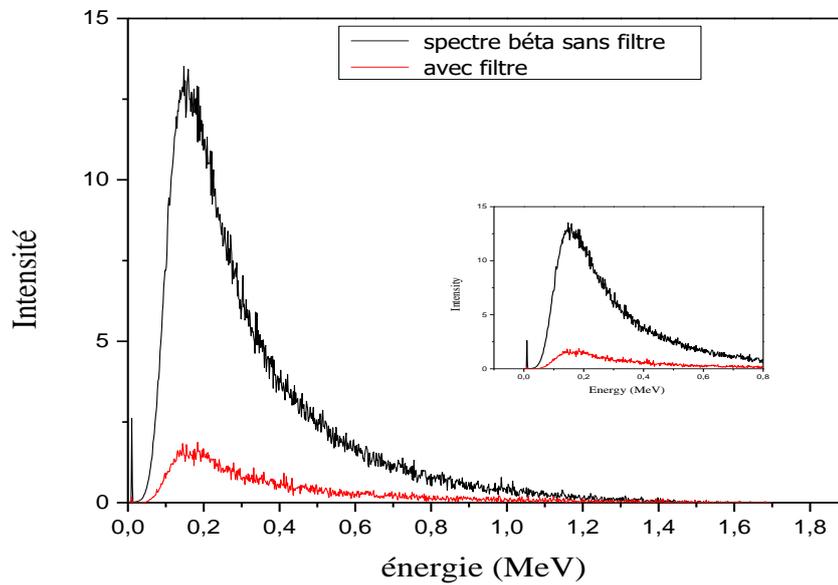


Figure 3. 16: Spectre beta sans et avec filtre de l'aluminium

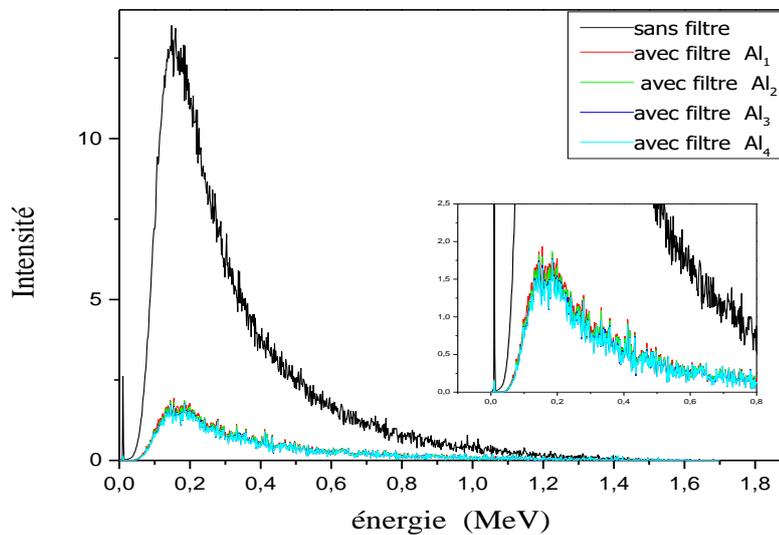


Figure 3. 17: Spectre beta du P-32 filtré par des filtres d'aluminium de différentes épaisseurs

Les filtres Al₁ et Al₂ réduisent le Bremsstrahlung d'une valeur de 90,74 % et 91,30 % respectivement. Les filtres en aluminium Al₃ et Al₄ diminuent le spectre bêta d'une valeur de 91,84 % et 91,98 %. Les résultats de la simulation montrent que le filtre Al₄ absorbe plus

de rayon bêta que les autres (Figure 3.17). Une autre simulation avec un filtre au plomb a été réalisé ($\rho x=2014 \text{ mg.cm}^{-2}$).

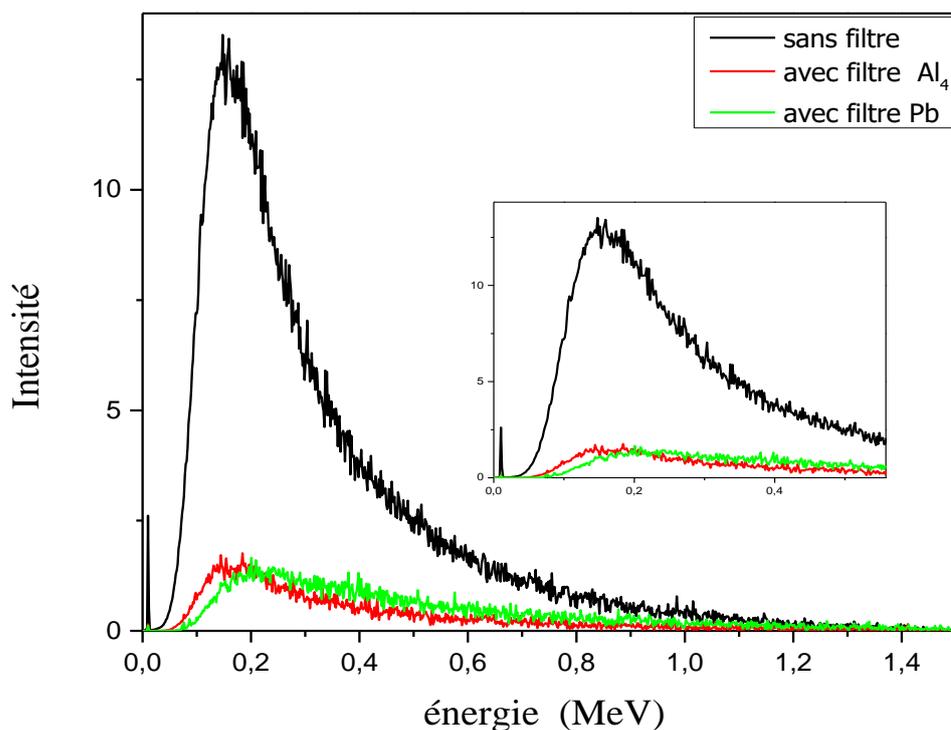


Figure 3. 18 : Spectre beta avec un filtre d'aluminium et un filtre de plomb

Les résultats obtenus sur la figure 3.18 montrent que dans la plage d'énergie [0 -200 keV], le filtre en plomb atténue plus de bêta qu'un filtre en aluminium. Cependant, la production de rayons X du plomb K_{α} : 74 keV et K_{β} : 85 keV, va interférer avec les rayons gamma de faible énergie émis par le ^{147}Nd et le ^{166}Ho .

La conclusion est que le meilleur filtre utilisé pour réduire le fond de Bremsstrahlung est le filtre en aluminium de $\rho x = 1596,3 \text{ mg cm}^{-2}$, qui a ensuite été appliqué dans l'expérience pour estimer les lanthanides avec une bonne précision.

Le filtre optimal optimisé par la simulation MCNP5 a été utilisé par la suite aux mesures expérimentales.

Le spectre gamma expérimental des lanthanides avec et sans filtre optimisé a été obtenu par spectrométrie gamma à l'aide d'un détecteur Ge (Hp) (figure 3.19).

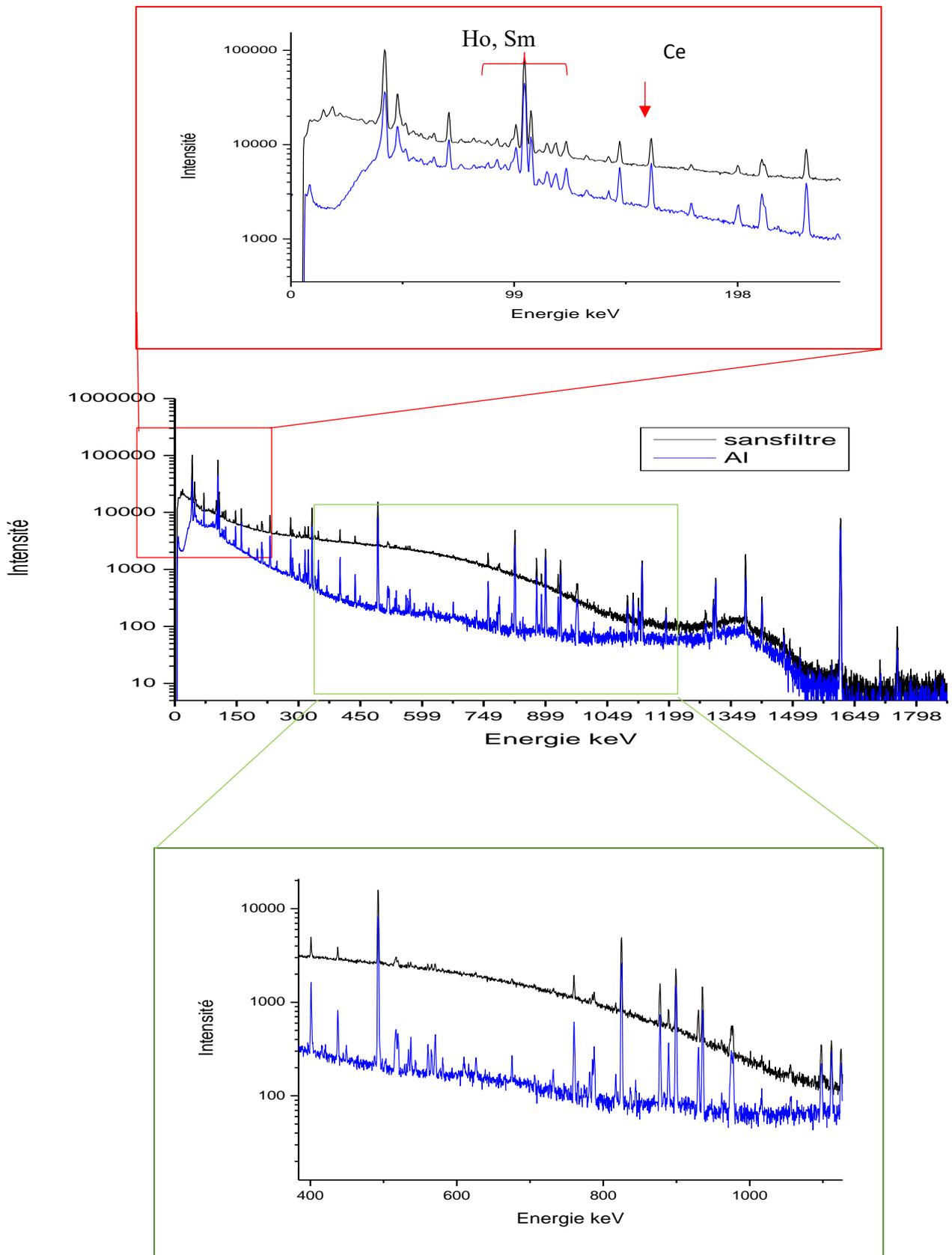


Figure 3. 19: Spectre expérimentale d'un échantillon de phosphate sans et avec filtre aluminium

La figure 3.19 représente un spectre gamma expérimental d'un échantillon de phosphate, mesuré pendant 3000s, avant et après l'utilisation de filtre optimal, est obtenu par spectrométrie gamma à l'aide d'un détecteur Ge (Hp). Le spectre montre un bruit de fond intense dû au spectre de Bremsstrahlung (spectre beta émis par le ^{32}P). Ce bruit affecte la mesure des éléments lanthanides, particulièrement les éléments qui se trouvent dans la région [200-600keV] qui ont été noyées sous ce bruit qui conduit à une mesure non fiable et non précise.

Après l'utilisation de filtre d'aluminium une diminution considérable de spectre beta a été remarquée. Cette réduction a permis aussi l'apparition des éléments d'énergies noyées sous le spectre du Bremsstrahlung, ce qui facilite l'identification des éléments lanthanides présentes dans la matrice du phosphate. Les intensités des raies gamma des REEs avant et après l'utilisation de filtre sont présentées dans le tableau ci-dessous

Tableau 3. 7: Intensités de pic d'absorption totale des REEs avant et après l'utilisation de filtre

Radioélément	N_p avant filtre	N_p après filtre
Sm-153	$3.70 \cdot 10^5$	$2.37 \cdot 10^5$
Yb-170	$1.07 \cdot 10^4$	$8.01 \cdot 10^3$
La-140	$6.37 \cdot 10^4$	$4.10 \cdot 10^4$
Ho-166	$3.69 \cdot 10^3$	$3.99 \cdot 10^3$
Nd-147	-----	$1.32 \cdot 10^3$
Hf-181	$1.28 \cdot 10^3$	$8.28 \cdot 10^2$
Eu-152	$7.09 \cdot 10^3$	$6.34 \cdot 10^3$
Tb-165	$6.68 \cdot 10^3$	$5.58 \cdot 10^3$
Ce-141	$5.56 \cdot 10^4$	$4.40 \cdot 10^4$

Le Néodim 147 (^{147}Nd) a été mesuré par la raie 91,11 et a été pas pu le mesurer par la raie 531,3 cela dû au bruit beta qui affecte ce pic.

La diminution des intensités des radioéléments est dû à la réduction de spectre beta par le filtre d'aluminium.

3.4.1.3.3. Limite de détection (DL)

Afin d'évaluer l'efficacité de protocole suivi dans cette étude qui sert à la réduction de spectre beta, la limite de détection a été calculée, avant et après l'utilisation du filtre en aluminium selon l'équation 26. Les résultats sont présentés dans le tableau 3.8 et la figure 3.20.

Tableau 3. 8: Limite de détection pour REE avant et après l'utilisation de filtre

Radioélément	Energie	DL sans filtre	DL avec filtre	Taux d'amélioration %
Ho-166	80,6	1590	1170	26.41
Nd-147	91.11	1530	1140	25.49
Sm-153	103.1	1450	1020	29.65
Eu-152	121	1390	907	34.74
Ce-145	145.4	1180	804	31.86
Yb-170	396.3	935	284	68.62
Hf-181	482.2	927	222	76.05
Tb-166	879.4	457	171	62.58
La-140	1596	90.7	60	33.84

La limite de détection des lanthanides obtenue avant et après utilisation du filtre optimisé est illustrée graphiquement dans la figure 3.20

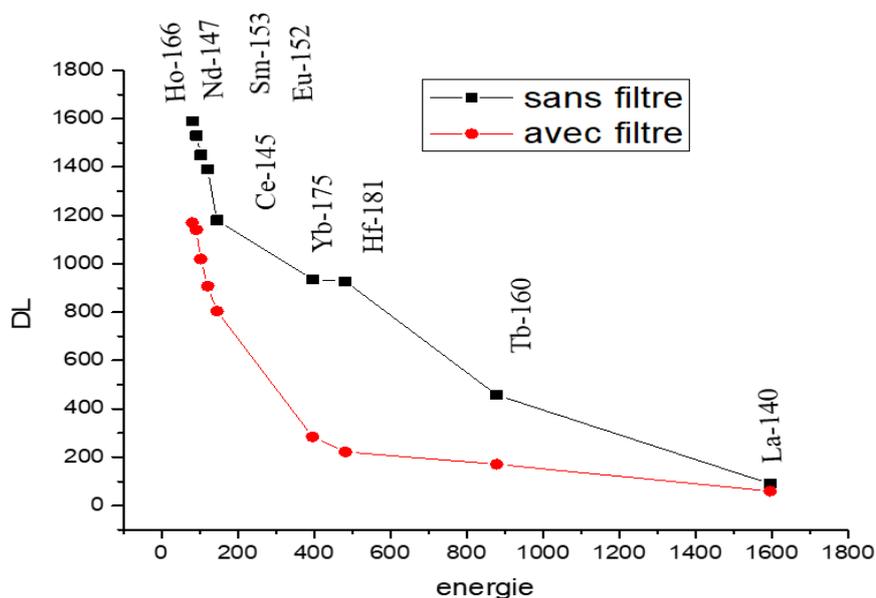


Figure 3. 20 : Amélioration de la limite de détection avec et sans filtre en aluminium

Selon la figure 3.20 et le tableau 3.8, la limite de détection a été considérablement améliorée après l'utilisation du filtre optimal en aluminium (Al_4) à une énergie gamma inférieure à 1 000 keV particulièrement pour les éléments dans l'intervalle [300-800] tel qu'Hafnium avec une réduction de 76.05%, Ytterbium avec une réduction de 68.62 %, où l'intensité de fond due à l'émission bêta du ^{32}P qui est très élevée dans cette région de [200keV-500keV], ce qui affecte les intensités du spectre gamma.

Cette amélioration a permis de déterminer la concentration des lanthanides dans des échantillons de phosphate avec une bonne précision.

3.4.1.3.4. Correction de l'atténuation des gammas

Le filtre d'aluminium est un bon absorbeur de bêta, cependant il absorbe aussi les gamma mais moindre que les betas. Cela demande une correction pour obtenir des résultats avec une bonne précision (tableau 3.9).

L'intensité de pic d'absorption totale a été corrigée en utilisant la loi d'atténuation de Beer-Lambert suivante :

$$I = I_0 e^{-\mu x}$$

Tableau 3.9: Intensité des pics d'absorption totale de REEs avant et après correction de l'atténuation de filtre

Radioélément	N _p sans correction	N _p avec correction
Sm-153	2.37 10 ⁵	3.07 10 ⁵
Yb-170	8.01 10 ³	9.55 10 ³
La-140	4.10 10 ⁴	4.29 10 ⁴
Ho-166	3.99 10 ³	5.40 10 ³
Nd-147	1.32 10 ³	1.51 10 ³
Hf-181	8.28 10 ²	9.56 10 ²
Eu-152	6.34 10 ³	6.65 10 ³
Tb-165	5.58 10 ³	6.18 10 ³
Ce-141	4.40 10 ⁴	5.77 10 ⁴

3.4.2. Optimisation des paramètres d'irradiation (Simulation de facteur d'auto-absorption des neutrons)

La présence des éléments de terres rares dans la matrice de phosphate conduit à une auto-absorption des neutrons thermiques et épithermiques par la matrice lors de l'irradiation dans un réacteur nucléaire (sous un flux neutronique), cela est dû à leur grande section efficace d'absorption. Donc il est nécessaire d'estimer la fraction neutronique absorbée par la matrice [59-60].

La simulation Monte Carlo a été utilisée pour calculer les facteurs correctifs de l'auto-absorption des neutrons thermiques et épithermiques afin d'estimer les concentrations de ces éléments avec bonne précision. Pour chaque facteur, deux simulations ont été réalisées, une sans matrice et la deuxième avec matrice en tenant compte tous les éléments à grande section efficace d'absorption. Pour cette simulation on a utilisé la fonction (tally F4), et le mode N (mode neutron). Le nombre de particules (NPS) simulés est fixé à 2*10⁸ particules.

Ce nombre de particules choisi afin d'obtenir une erreur de simulation inférieure à 1%. (Figure 3.21)

Les facteurs d'auto-absorption des neutrons thermiques et épithermiques (G_{th} , G_{epi}) ont été déduits du rapport entre le flux moyen de neutrons dans la cellule remplie d'éléments de la matrice du phosphate et la cellule. (Annexe 2)

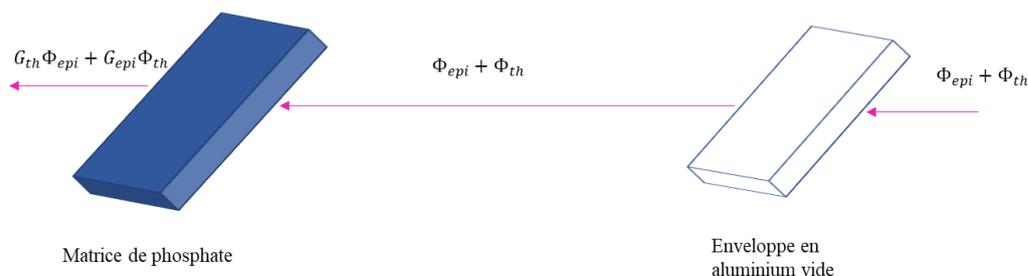


Figure 3. 21 : Mode de simulation de facteur d'auto absorption des neutrons thermique et épithermique

L'auto-absorption des neutrons se produit pendant l'irradiation lorsqu'un 'échantillon contient des isotopes qui ont des sections efficaces de capture de neutrons très élevées. La concentration de neutrons au sein de l'échantillon est ainsi réduite, ce qui entraîne des activités inférieures aux prévisions. Pratiquement tous les principaux éléments lanthanides ont des sections efficaces d'absorption des neutrons très importantes.

Pour savoir quand les erreurs d'auto-absorption neutronique peuvent être attendues. La dépression du flux neutronique a été calculée par simulation Monte Carlo. Les valeurs des facteurs d'auto-absorption des neutrons thermiques et épithermiques obtenues par simulation Monte Carlo sont présentées dans le tableau 3.10:

Tableau 3. 10: Facteur de self-Shielding des neutrons thermiques et épithermiques

Facteur thermique G_{th}	0.976
Facteur épithermique G_{epi}	0.999

Les valeurs des facteurs d'auto absorption thermique et épithermique sont inférieure a 1, dû à l'absorption des neutrons par la matrice.

La dépression du flux neutronique est importante dans la région thermique par rapport à la région épithermique, Cette différence est directement liée à la présence des lanthanides

(matériaux poisons) ayant une section efficace d'absorption importante dans la région thermique et faible dans la région épithermique (intégrale de résonance très faible) telque ^{175}Yb et ^{152}Eu . Les sections efficaces thermiques et épithermiques totales sont : $\sigma_{th} = 9611,65$ barns et $\sigma_{épi} = 7532,22$ barns .

Chapitre 4 : Application du modèle optimisé pour la détermination des lanthanides dans les échantillons de phosphate

Chapitre 4 : Application du modèle optimisé pour la détermination des lanthanides dans les échantillons de phosphate :

En tant que ressource stratégique, les éléments des terres rares (REEs) sont essentiels pour les applications de haute technologie et le développement dans diverses industries [61]. Avec la demande accrue de ressources en REEs sur les marchés internationaux, l'ampleur de l'exploitation minière des REEs s'est élargie et elle est devenue l'une des principales industries internationales. Les éléments de terres rares (REEs) constituent un groupe de dix-sept éléments chimiques du tableau périodique, notamment les quinze lanthanides ainsi que l'yttrium et le scandium. Ils sont divisés en deux groupes. Les éléments de terres rares légers (LREE) et sont les plus abondants, avec des numéros atomiques de 57 à 62, et les éléments de terres rares lourds (HREE) avec les numéros atomiques 63-71 (Eu à Lu) et sont les moins communs et les plus précieux [1-3,62-63].

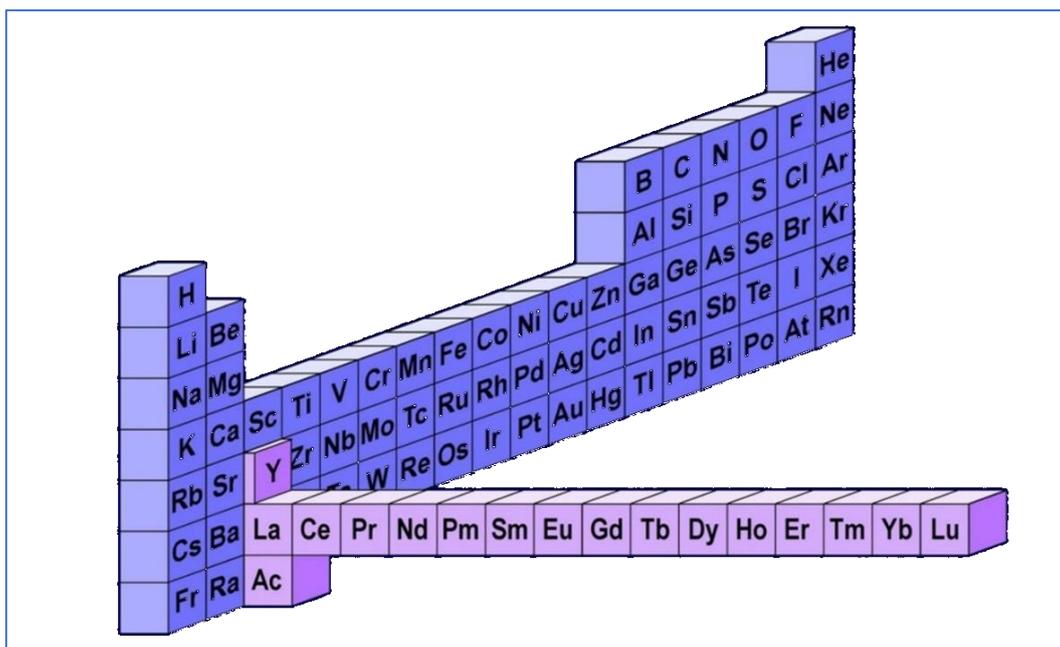


Figure 4. 1: Classification des lanthanides dans le tableau périodique

Dans la nature, les REEs (La, Ce, Nd, Sm, Eu, Tb, Ho et Yb) sont présents ensembles dans de nombreux minerais ; les silicates, les carbonates, les oxydes et les phosphates.

Actuellement, les réserves mondiales de REEs par les principaux pays tels que la Chine, le Brésil, le Vietnam, la Russie et l'Inde, se situent à environ 130 millions de tonnes. La Chine,

avec un tiers des réserves mondiales de phosphates, est toujours le leader mondial de l'exploration et de la production de REEs.

L'Algérie est l'un des principaux producteurs mondiaux de phosphate. Cette réserve était suffisamment importante pour augmenter la production nationale de phosphates de 1 à 10 millions de tonnes par an [64-65].

4.1. Zone d'étude

Tant en termes de réserves que d'accessibilité et de facilité d'exploitation, le gisement de Jebel el Onk est la plus grande réserve de phosphate d'Algérie. Située dans la Wilaya de Tébessa dans l'Atlas saharien oriental, elle se trouve au sud-est de l'Algérie, à 600 km de la capitale et à 20 km de la frontière entre l'Algérie et la Tunisie.

Le gisement Kef Essenoun, le gisement Djemi-Djema, le gisement Djebel Onk Nord et le gisement Bled Hadba sont les quatre gisements qui composent les gisements Djebel Onk.

Le gisement de Bled El Hadba qui fait l'objet de ce travail est situé dans la région de Tébessa en Algérie, près de la limite orientale de l'Atlas saharien. Il est composé de trois couches primaires, d'épaisseur moyenne suivante :

- Une couche inférieure (basale) de phosphate de 6 m de profondeur, pauvre en pentoxyde de phosphore (P_2O_5) et très dolomitique ;
- Une couche principale de phosphate de 16 m, riche en P_2O_5 et peu dolomitique ;
- Une couche supérieure (sommitale) de phosphate très dolomitique de 7 m d'épaisseur, pauvre en P_2O_5 [57-58].

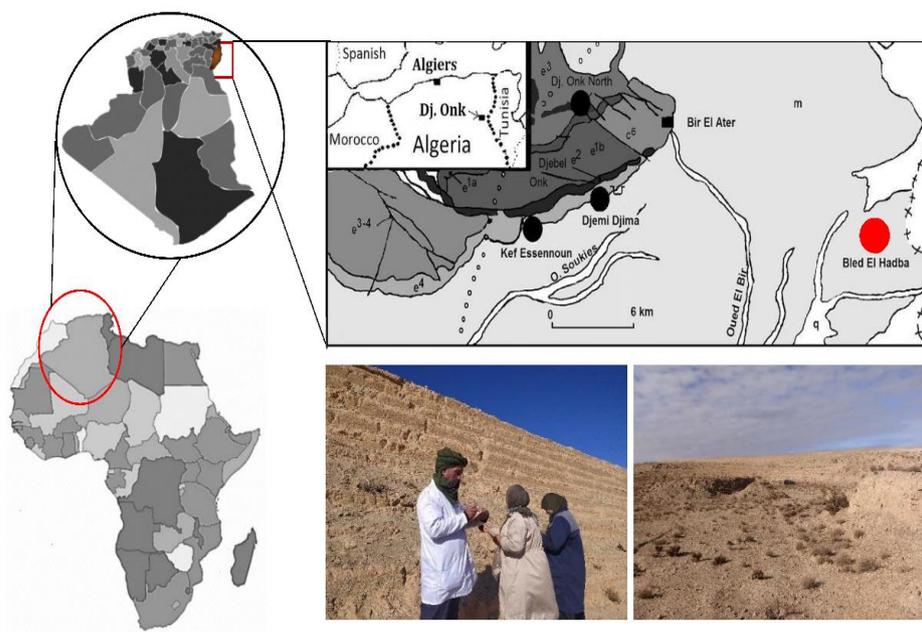


Figure 4. 2: Site de Djebel el Onk

4.2. Détermination de la concentration des lanthanides

Les résultats complets pour Sm, Yb, Ho, Hf, Eu, Tb, La, Nd et Ce analysés dans des échantillons des couches basale, principale et sommitale du gisement de Djebel el Onk à l'aide de la technique INAA calculée par la relation ci-dessous sont présentés dans le tableau 4.1.

$$m = \frac{M\lambda N_p}{\theta N_A \varepsilon \gamma (\Phi_{epi} I_0 + \Phi_{th} \sigma_{th}) (1 - e^{-\lambda t_i}) (e^{-\lambda t_d}) (1 - e^{-\lambda t_c})}$$

Tableau 4. 1: Concentration d'éléments lanthanides (ppm) dans des échantillons de phosphate de Jebel el Onk par analyse instrumentale par activation neutronique (INAA)

Élément	La couche basale	La couche principale	La couche sommitale
Sm	38.05 ± 2	25.09 ± 1	27.66 ± 1
La	162.59 ± 11	91.12 ± 6	114.35 ± 8
Yb	12.82 ± 0.8	6.56 ± 0.5	8.53 ± 0.5
Ho	9 ± 1	13.92 ± 1.60	10.90 ± 0.6
Nd	Inferieure a DL	61.62 ± 29	93.11 ± 45
Eu	4.45 ± 0.2	2.37 ± 0.1	3.01 ± 0.1
Hf	1.49 ± 0.7	Inferieure a DL	0.98 ± 0.43
Ce	267.37 ± 13	157.53 ± 8	185.62 ± 9
Tb	4.84 ± 0.2	2.56 ± 0.1	3.55 ± 0.2

Ces résultats ne donnent pas l'information exacte sur la teneur des lanthanides présents dans les échantillons de phosphate.

L'intensité du pic d'absorption totale est affectée par un bruit de fond dû à un rayonnement de freinage de ^{32}P ($N_p = N_p + N_{brem}$). L'auto-absorption du neutron peut aussi affecter la précision des résultats.

Afin d'assurer une analyse d'une grande précision, des corrections relatives aux paramètres de mesures et d'irradiation doivent être effectuées.

Il s'agit de développer une méthodologie d'analyse pour la détermination des concentrations des éléments de terres rares (lanthanides) par la technique d'Analyse par activation Neutronique Instrumentale (INAA).

4.3. Méthodologie optimisée pour le dosage des REEs

Les modèles développés précédemment pour l'optimisation des paramètres d'irradiation et de mesure de la technique d'Analyse par Activation Neutronique Instrumentale (INAA) seront appliqués pour le dosage des lanthanides dans un gisement de phosphate non exploité (Bled El Hadba). Le diagramme suivant résume la méthodologie suivie pour la détermination des concentrations des lanthanides avec précision dans le gisement de phosphate de Bled El Hadba et l'évaluation de la distribution des éléments de terres rares (REEs) dans des échantillons de phosphate.

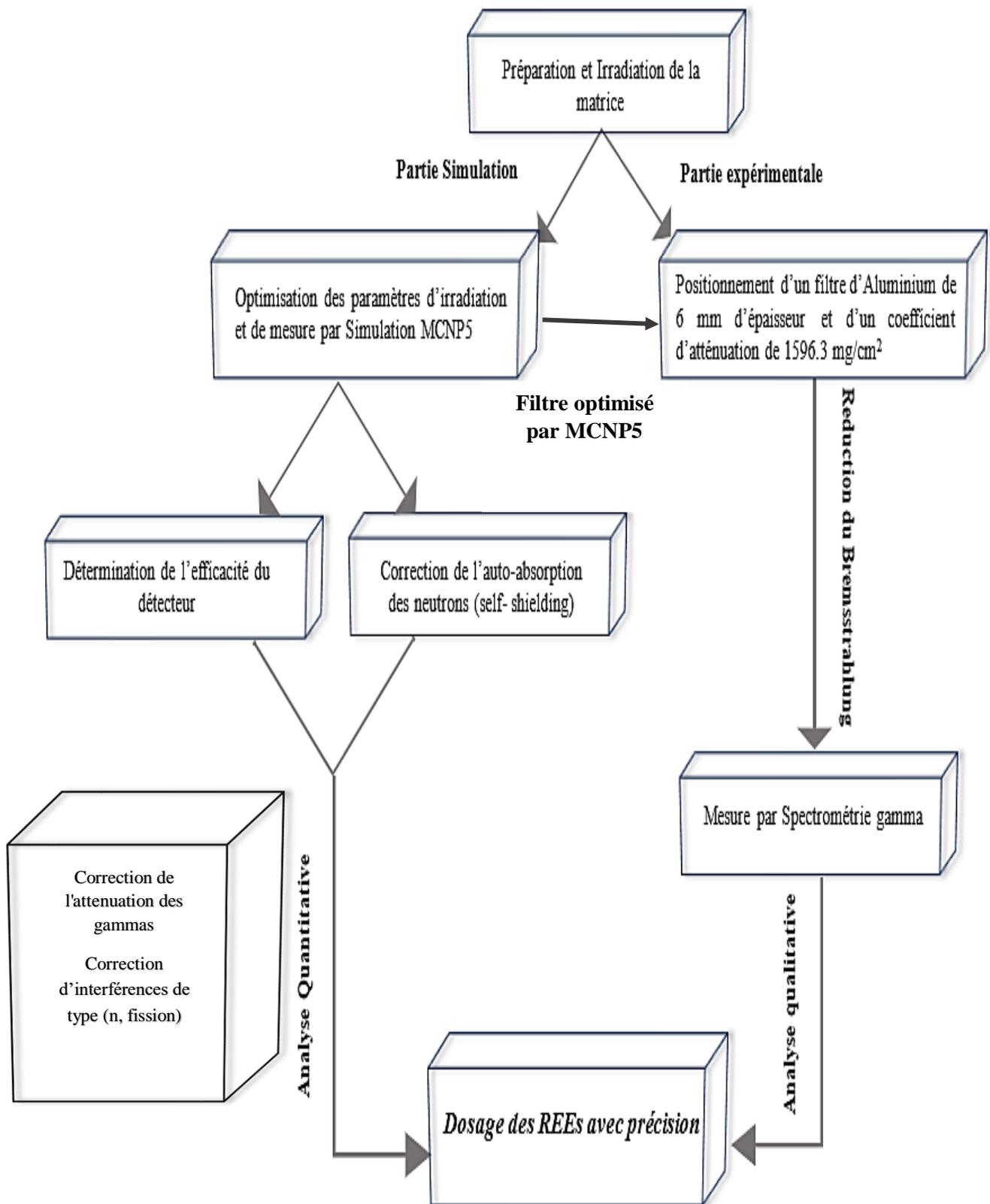


Figure 4. 3: Méthodologie suivie pour l'optimisation du dosage des REEs

4.4. Application des modèles de correction pour la détermination de la concentration des lanthanides

Les concentrations des éléments lanthanides ont été calculées par la relation suivante :

$$m = \frac{M\lambda(N_p - N_{brem})}{\theta N_A \varepsilon \gamma (\Phi_{epi} G_{epi} I_0 + \Phi_{th} G_{th} \sigma_{th}) (1 - e^{-\lambda t_i}) (e^{-\lambda t_d}) (1 - e^{-\lambda t_c})}$$

En tenant compte tous les paramètres de correction précédemment optimisés (l'efficacité des lanthanides, l'intensité de pic d'absorption totale de chaque radioélément ($N_p - N_{brem}$) avec N_{brem} est l'intensité de bruit de fond beta, le facteur d'auto-absorption des neutrons thermiques et épithermiques). Les concentrations sont présentées dans le tableau ci-dessous :

Tableau 4. 2: Concentration d'éléments lanthanides (ppm) dans des échantillons de phosphate de Jebel el Onk par analyse instrumentale par activation neutronique (INAA) après toutes les corrections

Elément	La couche basale	La couche principale	La couche sommitale
Sm	32.08 ± 2	23.30 ± 1	21.53 ± 1
La	59.45 ± 4	63.21 ± 4	82.02 ± 5
Yb	11.72 ± 0.6	5.95 ± 0.3	7.69 ± 0.4
Ho	13.40 ± 0.8	7.62 ± 1	1.82 ± 0.9
Nd	122.5 ± 8	93.47 ± 6	109.73 ± 7
Eu	3.17 ± 0.1	1.63 ± 0.09	2.80 ± 0.1
Hf	1.14 ± 0.1	1.05 ± 0.08	0.99 ± 0.08
Ce	284.04 ± 14	157.52 ± 8	186.21 ± 9
Tb	4.54 ± 0.2	2.36 ± 0.1	3.11 ± 0.1

Les résultats de concentration des lanthanides ont été déterminés en ppm avec une bonne précision. Une légère différence de concentration entre les trois couches a été observée. Les valeurs de concentration des lanthanides les plus élevées ont été enregistrées pour Ce, C'est l'élément le plus abondant dans tous les échantillons ; suivi par Nd par rapport aux autres éléments. L'Europium et l'Hafnium représentent les éléments les moins abondants. La couche basale contient une richesse en lanthanides par rapport aux autres couches de ce gisement.

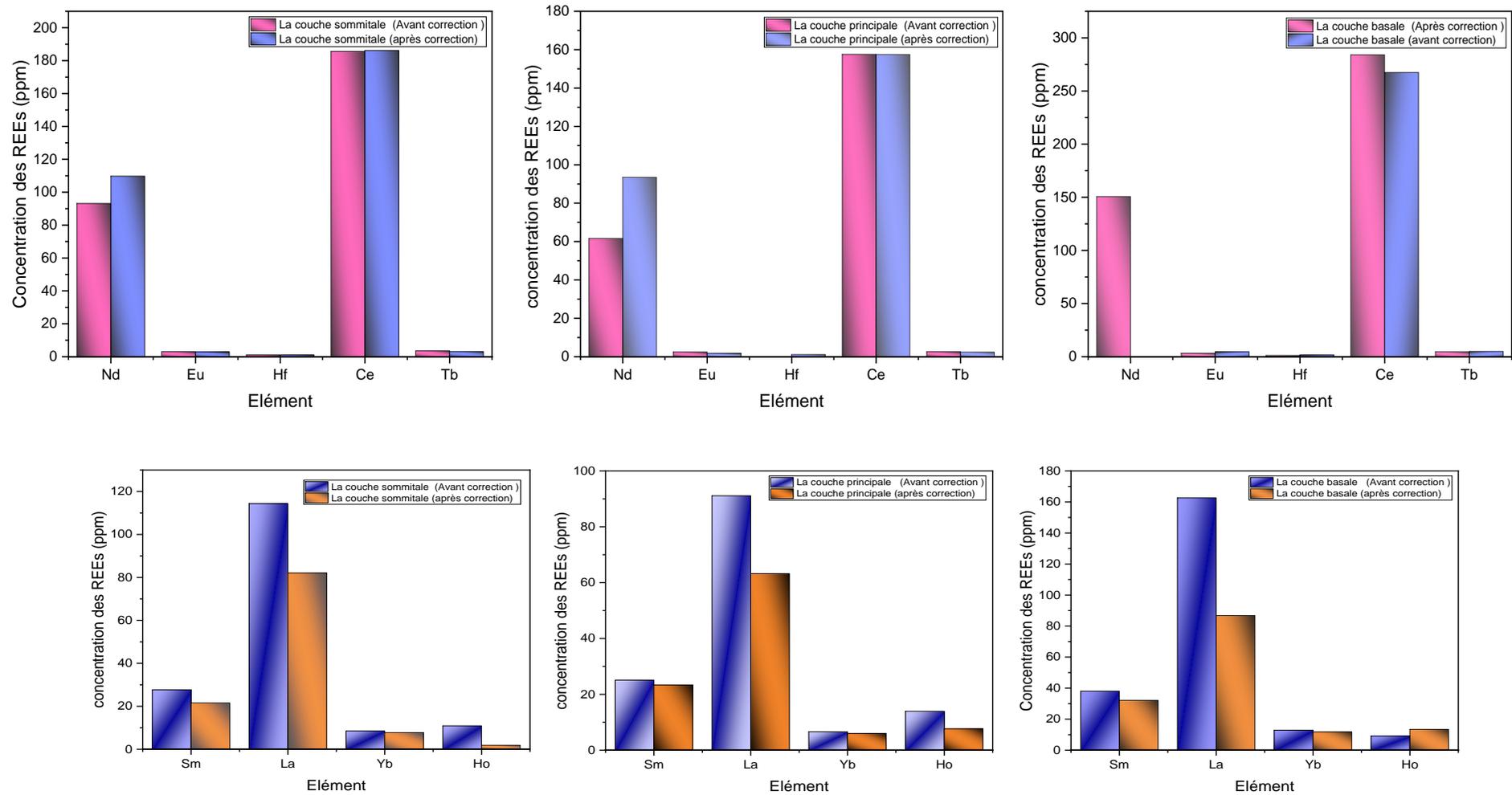


Figure 4. 4: Concentration des REEs avant et après l'utilisation de filtre

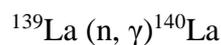
Cependant, certains éléments (^{147}Nd et ^{140}La) produits par la réaction de capture (n, γ), sont aussi produits par la réaction ($n, \text{fission}$) de l'uranium (interférence de second ordre), d'où la nécessité de plusieurs corrections pour éliminer cette interférence, et doser ces éléments avec une précision acceptable.

Le lanthane-140 et le néodyme-147 ont été déterminés par la réaction de capture de neutrons $^{139}\text{La} (n, \gamma)^{140}\text{La}$, $^{146}\text{Nd} (n, \gamma)^{147}\text{Nd}$ respectivement, et qui peuvent également être produits par la réaction de fission du $^{235}\text{U} (n, \text{fission})$. Par conséquent, la correction de la contribution de la réaction de fission a été effectuée pour éliminer la surestimation de la concentration de Lanthane et de Néodyme.

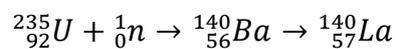
4.5. Correction des interférences de second ordre

4.5.1. Lanthane ^{140}La

Le lanthane ^{140}La est un radio-isotope qui peut être produit par la réaction de capture radiative selon la réaction suivante :



Aussi il peut être produit par une réaction de fission de l'uranium selon la réaction suivante :



Avec un rendement de 6.8% [17] ; La teneur de ^{140}La produit par la réaction de fission est donc calculée par l'expression suivante :

$$m = \frac{M(\lambda_{La} - \lambda_{Ba})N_p}{\theta \varepsilon \gamma \sigma_f \eta N_A (1 - e^{-\lambda t_i})(e^{-\lambda t_d})(1 - e^{-\lambda t_c})}$$

Avec η le rendement de fission de Barium

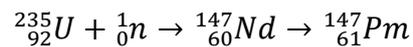
σ_f : La section efficace de fission d'uranium

λ_{La} : La constante radioactive de Lanthane

λ_{Ba} : La constante radioactive de Barium

4.5.2. Néodyme ^{147}Nd

Ce radioélément peut être produit soit par la réaction de capture radiative $^{146}\text{Nd} (n, \gamma) ^{147}\text{Nd}$, ou par la réaction de fission d'uranium, par la réaction suivante :



Cette réaction a un rendement de 2.3%. La concentration de Néodyme produit par la fission de ^{235}U est donnée par la relation suivante :

$$m = \frac{M\lambda N_p}{\theta \varepsilon \gamma \sigma_f \eta N_A (1 - e^{-\lambda t_i})(e^{-\lambda t_d})(1 - e^{-\lambda t_c})}$$

Avec : σ_f la section efficace de fission

Les concentrations de Lanthane et de Néodyme avant et après correction des interférences sont présente dans le tableau ci-dessous (tableau4.3) :

Tableau 4. 3: Concentration en ppm de ^{147}Nd et ^{140}La sans et après corrections d'interférence

Radioélément	Sans correction	Avec correction
Néodyme	150.63 ± 10	122.5 ± 8
Lanthane	86.75 ± 6	59.45 ± 4

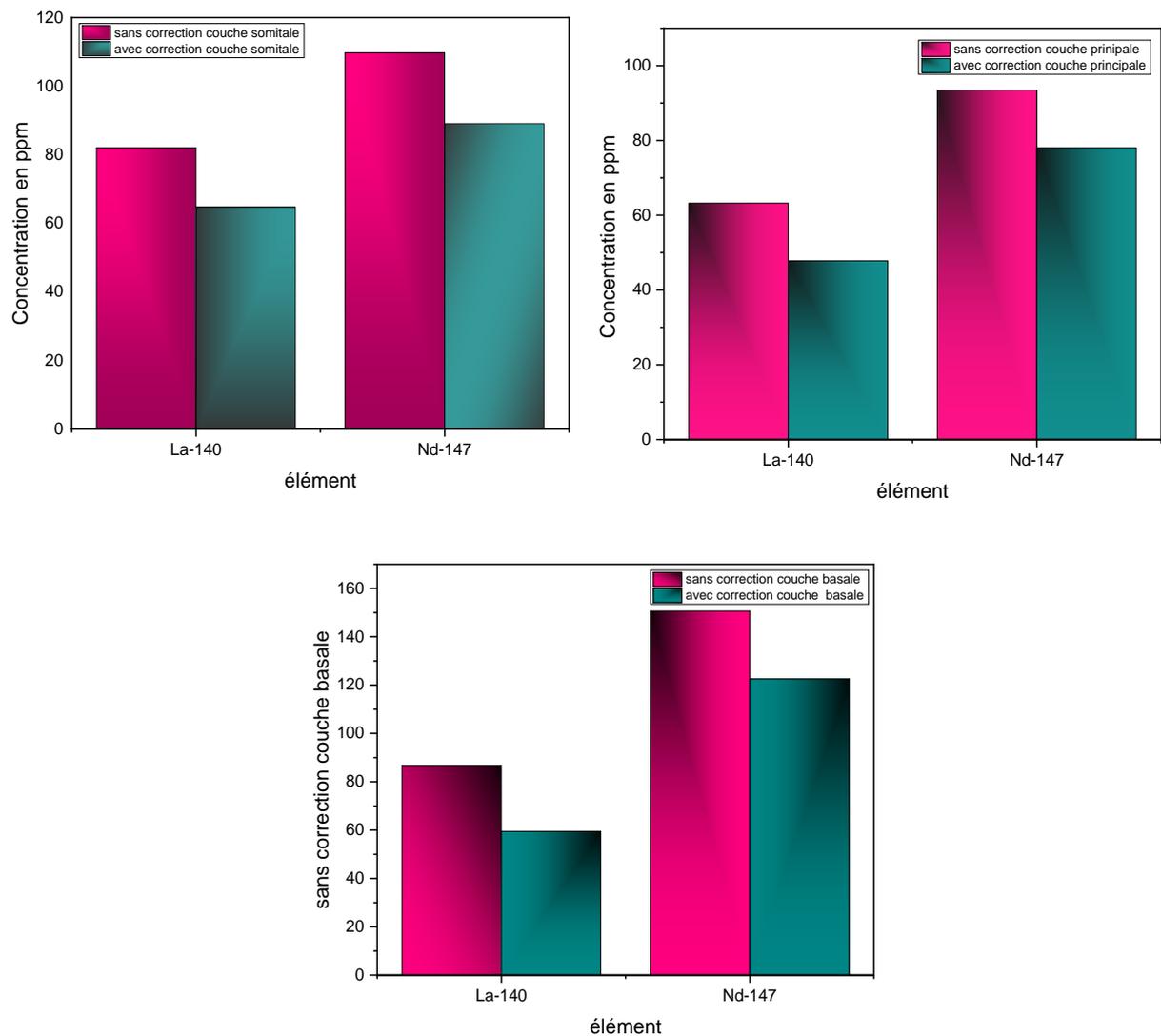


Figure 4.5 : Concentration de ^{147}Nd et ^{140}La avant et après la correction d'interférence de second ordre

Grâce à cette méthodologie, les éléments lanthanides ont été déterminés avec une bonne incertitude globale, inférieure à 10 %, en appliquant la méthode absolue et tenant en compte de tous les paramètres correctifs (auto-absorption neutronique, réduction bêta, efficacité du détecteur, interférence et atténuation des gammas par le filtre).

Conclusion générale

Conclusion générale

L'objectif de ce travail était de développer une méthodologie d'analyse par INAA pour l'évaluation précise des concentrations des lanthanides dans un gisement de phosphate de Djebel Onk. Cette méthodologie permettant d'améliorer les limites de détection de la technique INAA par la réduction des sources d'incertitudes liées à cette technique.

L'amélioration des limites de détection de la technique INAA nécessite plusieurs corrections. Une procédure complète basée sur une approche Monte Carlo utilisant le code MCNP5 pour développer des modèles de corrections en tenant compte tous les paramètres d'irradiation et de mesure.

Dans la première étape de ce travail, nous avons développé un modèle basé sur la simulation en utilisant le code Monte Carlo MCNP5, pour calculer l'efficacité du détecteur Ge(hp) pour une source ponctuelle d'europium en tenant compte les caractéristiques de détecteur fourni par le constructeur, et l'épaisseur de la couche morte déterminée et validée expérimentalement par un travail précédent au laboratoire. Le modèle simulé a été validé par des mesures expérimentales. Une bonne concordance entre les simulations et l'expérimentale a été trouvée avec un écart inférieur à 5%. Ce modèle a été appliqué par la suite pour calculer l'efficacité du détecteur pour une source radioactive d'une géométrie parallélépipède dans une matrice de phosphate.

En deuxième étape, nous avons développé un deuxième modèle pour l'optimisation de l'épaisseur de filtre afin de réduire le spectre bêta émis par le ^{32}P qui affecte le spectre gamma des lanthanides. Quatre filtres d'aluminium ont été utilisés avec des coefficients d'atténuation massique différents et un filtre de plomb.

Les résultats de simulation montrent que le filtre optimal pour réduire le spectre bêta est le filtre d'aluminium de coefficient d'atténuation massique de ($\rho x = 1596,3 \text{ mg cm}^{-2}$) qui réduit le spectre avec une valeur de 91,98 %.

Ce filtre a été utilisé par la suite aux mesures expérimentales pour les échantillons de phosphate.

L'utilisation du filtre a permis de déterminer l'intensité de pic d'absorption totale des éléments lanthanides avec précision en tenant compte de l'auto-atténuation des gammas par le filtre.

Les corrections ont également porté sur les facteurs d'auto-absorption des neutrons thermiques et épithermiques, l'auto-atténuation des gammas par le filtre et les interférences dues à la réaction de fission, du Lanthane-140 et du Néodyme-147. Ces corrections permettent de minimiser les sources d'incertitude dans la méthode absolue à moins de 10 %.

Le protocole développé au cours de ce travail a été bien adapté pour améliorer la limite de détection de la technique d'analyse par activation neutronique instrumentale et, donc, la détermination de la concentration des lanthanides dans les échantillons de phosphate était avec une bonne précision.

Références

Références

- [1] El-Taher, A. (2007). Rare-earth elements in Egyptian granite by instrumental neutron activation analysis. *Applied Radiation and Isotopes*, 65(4), 458-464. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2006.07.014>
- [2] Sebak, M. A., El-Taher, A., Gami, F., Abdallah, E. M., & Arabia, S. (2020). Rare earth elements in phosphate samples by instrumental neutron activation analysis. *Technol. Rep. Kansai University*, 9, 5657-6564.
- [3] El-Taher, A., & Abdelhalim, M. A. K. (2014). Elemental analysis of soils from Toshki by using instrumental neutron activation analysis techniques. *Journal of Radioanalytical and nuclear chemistry*, 300, 431-435.
- [4] Wee, B. S., & Ebihara, M. (2017). Neutron activation analysis and assessment of trace elements in fingernail from residents of Tokyo, Japan. *Sains Malaysiana*, 46(4), 605-613.
- [5] Nangeelil, K., Dimpfl, P., Mamtimin, M., Huang, S., & Sun, Z. (2023). Preliminary study on forgery identification of Hetian Jade with Instrumental Neutron Activation Analysis. *Applied Radiation and Isotopes*, 191, 110535.
- [6] Chai, H. P., Lee, N., Grinang, J., Ling, T. Y., & Sim, S. F. (2018). Assessment of heavy metals in water, fish and sediments of the Baleh River, Sarawak, Malaysia. *Borneo Journal of Resource Science and Technology*, 8(1), 30-40.
- [7] WEE, B. S., RAHMAN, S. A., ELIAS, M. S., & SALIM, N. A. A. (2019). k₀-Instrumental Neutron Activation Analysis Method Validation for Trace Element Determination using Environmental Reference Materials. *Borneo Journal of Resource Science and Technology*, 9(2), 107-114.
- [8] Asare, E. A., Klutse, C. K., & Acquaye, F. Y. (2022). Validation of k₀-Standardization Procedure of Instrumental Neutron Activation Analysis at Ghana Research Reactor-1 Facility for the Determination of Rare Earth Elements. *Arab Journal of Nuclear Sciences and Applications*, 55(2), 79-93. <https://doi.org/10.21608/ajnsa.2021.91014.1504>
- [9] Figueiredo, A. M. G., Avristcher, W., Masini, E. A., Diniz, S. C., & Abrão, A. (2002). Determination of lanthanides (La, Ce, Nd, Sm) and other elements in metallic gallium by

Références

instrumental neutron activation analysis. *Journal of Alloys and Compounds*, 344(1-2), 36-39.
[https://doi.org/10.1016/S0925-8388\(02\)00301-8](https://doi.org/10.1016/S0925-8388(02)00301-8)

[10] Waheed, S., Sabiha-Javied, Siddique, N., Shakoor, R., & Tufail, M. (2011). Rare earth elements in phosphorite and granulated single super-phosphate fertilizers of Pakistan, a study using instrumental neutron activation analysis. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 289(2), 521-528.<https://doi.org/10.1007/s10967-011-1112-0>

[11] Azbouche, A., Moulla, A. S., & Belgaid, M. (2022). Rare-earth elements distribution in Algerian soil samples using neutron activation analysis: Monte Carlo analytical method approach. *International Journal of Environmental Analytical Chemistry*, 102(12), 2792-2804.

[12] Greenberg, R. R., Bode, P., & Fernandes, E. A. D. N. (2011). Neutron activation analysis: A primary method of measurement. *Spectrochimica acta part B: atomic spectroscopy*, 66(3-4), 193-241.<https://doi.org/10.1016/j.sab.2010.12.011>

[13] Coste-Delclaux, M., Diop, C., Nicolas, A., & Bonin, B. (2013). *Neutronique*.

[14] G. F. Knoll, *Radiation Detection et Measurement*, John Wiley (1989) (Première édition 1979, dernière édition 2000).

[15] Alnour, I. A., Wagiran, H., Ibrahim, N., Hamzah, S., Wee, B. S., & Elias, M. S. (2015). Rare earth elements determination and distribution patterns in granite rock samples by using INAA absolute method. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 303, 1999-2009.

[16] Khelifi, R. (2007). *Optimisation de l'analyse par gamma prompts d'échantillons en masse au moyen d'une source de neutron ^{241}Am -Beet par simulation avec le code MCNP* (Doctoral dissertation, Alger).

[17] Azbouche, A. (2015). *Développement d'une méthodologie d'analyse par spectrométrie gamma et par activation neutronique pour l'étude de la distribution des radio-traceurs et des terres rares dans le sol* (Doctoral dissertation, USTHB).

[18] Benarous samiha. Improving gamma spectrometry performance for accurate environmental measurements. 2022. Thèse de doctorat. USDB1. <https://di.univ-blida.dz/jspui/handle/123456789/25582>.

[19] <https://di.univ-blida.dz/jspui/handle/123456789/6709>

Références

- [20] Saadi, E., Benrachi, F., & Azbouche, A. (2021). *Étude expérimentale de mesures de basses radioactivités dans les matériaux de construction utilisés en Algérie* (Doctoral dissertation, Université Frères Mentouri-Constantine 1).
- [21] Denden, O. (2018). *La radioactivité des eaux thermales de la willaya de Sétif* (Doctoral dissertation).
- [22] F. Salvat, J.M. Fernandez-Varea, J. Sempau, “Penelope a code system for Monte Carlo simulation of electron and photon transport” AEN, NEA, (2006).
- [23] Leconte, P. (2006). *Développement et optimisation de techniques de mesure par spectrométrie gamma. Maîtrise et réduction des incertitudes associées* (Doctoral dissertation, Université Blaise Pascal-Clermont-Ferrand II).
- [24] Boukeffoussa, K. (2010). *Caractérisation de la distribution énergétique du flux de neutrons au voisinage d'une source $^{241}\text{Am-Be}$ à l'aide de détecteurs à seuil* (Doctoral dissertation).
- [25] Schweizer, J. (2005, November). Que peut-on voir avec des neutrons ? Une introduction pour des non spécialistes. In *Journal de Physique IV (Proceedings)* (Vol. 130, pp. 3-35). EDP Sciences.
- [26] Schweizer, J. (2003, February). Neutrons et matériaux : introduction. In *Journal de Physique IV (Proceedings)* (Vol. 103, pp. 1-49). EDP sciences.
- [27] Mohammed, MESSAOUDI. Développement de la méthode de séparation radiochimique du sélénium basée sur l'activation neutronique RNAA et son application sur les grains de café et les feuilles de menthe.
- [28] Boffy, R., Kreuz, M., Beaucour, J., Köster, U., & Bermejo, F. J. (2015). Why neutron guides may end up breaking down? Some results on the macroscopic behaviour of alkali-borosilicate glass support plates under neutron irradiation. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 358, 179-187.
- [29] Greenberg, R. R., Bode, P., & Fernandes, E. A. D. N. (2011). Neutron activation analysis: A primary method of measurement. *Spectrochimica acta part B: atomic spectroscopy*, 66(3-4), 193-241.

Références

- [30] Mansouri, A. (2018). *Détermination du taux des oligoéléments sélénium et zinc dans le cheveu des patients atteints par le psoriasis au moyen de la spectrométrie par fluorescence X et de l'activation neutronique instrumentale* (Doctoral dissertation).
- [31] Copley, J. R. D. (1991). Scattering effects within an absorbing sphere immersed in a field of neutrons. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 307(2-3), 389-397.
- [32] C. LAKEHAL, Mesures qualitatives et quantitatives des éléments radioactifs naturels présents dans des échantillons de l'environnement par spectrométrie γ , Thèse magister Univ. Mentouri-Constantine, 2006.
- [33] F. Salvat, J.M. Fernandez-Varea, J. Sempau, "Penelope a code system for Monte Carlo simulation of electron and photon transport" AEN, NEA, (2006).
- [34] Ben Ali, A. (2020). *Etude comparative des caractéristiques dosimétriques de détecteurs luminescents par simulation Monte Carlo en vue d'application en radiothérapie* (Doctoral dissertation).
- [35] scientifique de MAASI, S. (2022). En préparation de sa 2eme édition de la semaine scientifique L'Association Marocaine pour les Sciences Appliquées & Innovation (MAASI) Organise La 1ere Edition des Journées Doctoriales Multidisciplinaires (JDM'22) 29-30 Janvier 2022 (Online). *Proceeding de La 1ere Edition des Journées Doctoriales Multidisciplinaires (JDM'22)*, 29, 30.
- [36] Addali, S., Azbouche, A., Benarous, S., & Khelifi, R. (2024). Improving instrumental neutron activation analysis detection limit using Monte Carlo simulation for lanthanides determination in Algerian phosphate. *International Journal of Environmental Analytical Chemistry*, 1-11
- [37] Hamidatou, L. A., Dekar, S., & Boukari, S. (2012). k₀-NAA quality assessment in an Algerian laboratory by analysis of SMELS and four IAEA reference materials using Es-Salam research reactor. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 682, 75-78.
- [38] Blaauw, M. (1996). The derivation and proper use of Stewart's formula for thermal neutron self-shielding in scattering media. *Nuclear science and engineering*, 124(3), 431-435.

Références

- [39] X-5 Monte Carlo Team, 2003. MCNP- A General Monte Carlo N-particle Transport Code, Version 5, Volume II: User's Guide. Los Alamos National Laboratory. LA-CP-03-0245, (revised 2005).
- [40] F. Salvat, J.M. Fernandez-Varea, J. Sempau, "Penelope a code system for Monte Carlo simulation of electron and photon transport" AEN, NEA, (2006).
- [41] Azbouche, A., Belamri, M., & Tchakoua, T. (2018). Study of the germanium dead layer influence on HP (Ge) detector efficiency by Monte Carlo simulation. *Radiation Detection Technology and Methods*, 2, 1-6. <http://dx.doi.org/10.1007/s41605-018-0074-y>
- [42] Canberra Industries, Solid-State Photon Detector, Operators Manual, GMX Series. (HPGe (High Purity Germanium) ²).
- [43] Battistoni G., Ferrari A., Montaruli T., Sala P. R., 2002. Comparison of the FLUKA calculations with CAPRICE94 data on muons in atmosphere, *Astroparticle Physics*, 17, 477-488 .
- [44] Benarous, S., Azbouche, A., Boumehdi, B., Chegrouche, S., Atamna, N., & Khelifi, R. (2022). Establishing a pre-mining baseline of natural radionuclides distribution and radiation hazard for the Bled El-Hadba sedimentary phosphate deposits (North-Eastern Algeria). *Nuclear Engineering and Technology*, 54(11), 4253-4264. <https://doi.org/10.1016/j.net.2022.06.006>
- [45] Porte, N., Mauerhofer, E., & Denschlag, H. (1997). Determination of phosphorus by instrumental neutron activation and bremsstrahlung measurement in bone samples. *Journal of radioanalytical and nuclear chemistry*, 220(1), 3-7., <https://doi.org/10.1007/bf02035338>
- [46] Canberra report data sheet, Detector lead shields, model 747 and 747E, Canberra Industries (2008) 2e4. <https://fr.scribd.com/document/49089077/747>. Canberra Industries, in Solid-State Photon Detector, Operators Manual, GMX Series, HPGe (High-Purity Germanium) 19. Canberra Industries, in Detector Lead Shields, Model 747 and 747E, C40114 – 04/13. www.canberra.com
- [47] Canberra Industries/Mirion Technologies, "Genie2000: Gamma Analysis Software," Mirion Technologies, [Online]. Available: <https://www.mirion.com/products/genie-2000-gamma-analysis-software>. [Accessed 12 01 2021].

Références

- [49] Balaram, V. (2023). Advances in Analytical Techniques and Applications in Exploration, Mining, Extraction, and Metallurgical Studies of Rare Earth Elements. *Minerals*, 13(8), 1031.
- [50] Canberra Industries, Solid-State Photon Detector, Operators Manual, GMX Series. (HPGe (High Purity Germanium) ²).
- [51] Jouini, D., Azbouche, A., ElMahroug, Y., Benarous, S., Tellili, B., Souga, C., & Labidi, S. (2023). HPGe efficiency calibration using GEANT4-GAMOS code for study environmental materials: radioactivity transfer study nearby the phosphate area in southern Tunisia. *International Journal of Environmental Analytical Chemistry*, 1-14. <https://doi.org/10.1080/03067319.2023.2252747>
- [52] Santo, A. S., Wasserman, F. G., & Conti, C. C. (2012). HPGe well detector calibration procedure by MCNP5 Monte Carlo computer code. *Annals of Nuclear Energy*, 46, 213-217. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2012.03.037>
- [53] F. Salvat, J.M. Fernandez-Varea, J. Sempau, “Penelope a code system for Monte Carlo simulation of electron and photon transport” AEN, NEA, (2006).
- [54] Bengroun, M., Azbouche, A., & Amrani, N. (2023). Study of the matrix composition effect on gamma spectrometry analysis using Monte Carlo simulation: application for soil to crop transfer factor determination. *Radiochimica Acta*, (0). <https://doi.org/10.1515/ract-2022-0089>
- [55] Mezerreg, N., Azbouche, A., & Haddad, M. (2021). Study of coincidence summing effect using Monte Carlo simulation to improve large sample measurement for environmental applications. *Journal of Environmental Radioactivity*, 232, 106573. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2021.106573>
- [56] Eade, T., Colling, B., Naish, J., Packer, L. W., & Valentine, A. (2020). Shutdown dose rate benchmarking using modern particle transport codes. *Nuclear Fusion*, 60(5), 056024., [DOI 10.1088/1741-4326/ab8181](https://doi.org/10.1088/1741-4326/ab8181)
- [57] Bezzi, N., Merabet, D., Benabdeslem, N., & Arkoub, H. (2001, November). Caracterisation physico-chimique du minerai de phosphate de Bled El Hadba—Tebessa. In *Annales de Chimie Science des Matériaux* (Vol. 26, No. 6, pp. 5-23). No longer published by Elsevier
- [58] Bodineau J.-C., Détection des rayonnements, Institut national des sciences et techniques nucléaires - Saclay (France).

Références

- [59] Imane, Z. S. (2023). Contribution à l'étude d'un enrichissement des déchets miniers: cas des stériles francs du gisement de phosphate de Djebel Onk-Tébessa (Doctoral dissertation, Université Badji Mokhtar–Annaba).
- [60] Mahmoud, K. A., Sayyed, M. I., & Tashlykov, O. L. (2019). Gamma-ray shielding characteristics and exposure buildup factor for some natural rocks using MCNP-5 code. *Nuclear Engineering and Technology*, 51(7), 1835-1841. <https://doi.org/10.1016/j.net.2019.05.013>
- [61] A, AZBOUCHE, M, BELGAID, et H, MAZROU. Monte Carlo calculations of the HPGe detector efficiency for radioactivity measurement of large volume environmental samples. *Journal of environmental radioactivity*, 2015, vol. 146, p. 119-124.
- [62] El-Taher, A. (2010). Elemental analysis of two Egyptian phosphate rock mines by instrumental neutron activation analysis and atomic absorption spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, 68(3), 511-515.
- [63] Henderson, P. A. U. L. (1984). General geochemical properties and abundances of the rare earth elements. In *Developments in geochemistry* (Vol. 2, pp. 1-32). Elsevier.
- [64] Balaram, V. (2019). Rare earth elements: A review of applications, occurrence, exploration, analysis, recycling, and environmental impact. *Geoscience Frontiers*, 10(4), 1285-1303.
- [65] Bonnot-Courtois, C., & Flicoteaux, R. (1989). Distribution of rare-earth and some trace elements in Tertiary phosphorites from the Senegal Basin and their weathering products. *Chemical Geology*, 75(4), 311-328.

Annexes

Annexe 1

fichier input de spectre beta

```

c      Created on: Tuesday, October 17, 2023 at 14:24
1      1      -5.32 ((2 :3 )1 -4 -5 )#2 #3 $dl
2      0      1 -2 -3 $vide
3      1      -5.32 (6 :8 )1 -7 -9 $zone active ge
4      0      (1 10 -11 -13 ):(13 -14 10 -12 ): $ ELCTRODE
      (14 -15 10 -11 ):(15 -16 10 -12 ):(16 -17 10 -11 ):(17 -18 10 -12 )
5      2      -2.7 (19 :22 )-22 -20 1 $aluminum
6      3      -1.6 21 -22 -20 #5 $ epoxy
7      0      (4 :5 )-21 1 -19 #4 $ vide
8      4      -0.941 (23 :25 )-24 -26 21 $cover
9      0      27
10     0      -27 #1 #2 #3 #4 #5 #6 #7 #8 #11 #12 #13 #14 #15 #16
11     5      -8.96 (31 32 -42 -28 ):(28 -1 32 -35 ):(34 -35 1 -29 ):
      (29 -30 -35 ):(-30 29 -35 )#12
12     6      -7.28 (31 42 -37 -36 ):(36 -28 42 -38 ):(35 -38 -39 28 ):
      (30 -39 -38 )
13     7      -11.35 (31 -36 37 -41 ):(36 38 -41 -39 ):(39 -40 -41 )
14     0      22 -20 25 -23
15     8      -1.58 -43
16     2      -2.7 44 -45 -46

1      pz 0
2      pz 5.1
3      cz 0.6
4      pz 6.1
5      cz 3.025
6      pz 5.2
7      pz 6.085
8      cz 0.7
9      cz 2.845
c electrode
10     cz 3.125
11     cz 3.165
12     cz 3.26
13     pz 0.89
14     pz 1.75
15     pz 3.56
16     pz 4.42
17     pz 5.82
18     pz 5.95
c Aluminum
19     cz 3.525
20     cz 3.672
c carbone epoxy
21     pz 6.6
22     pz 6.605
c cover
23     pz 6.68
24     pz 6.78
25     cz 3.7
26     cz 3.75
27     so 70
c copper sheilding
28     pz -0.16
29     pz 40.6
30     pz 40.76
31     pz -11.45
32     cz 6.05
c 33     cz 6.61
34     cz 13.95
35     cz 14.11
36     pz -0.26
37     cz 6.31

```

Annexes

```

38      cz 14.21
39      pz 40.86
40      pz 52.05
41      cz 25.4
42      cz 6.21
43      rpp -0.5 0.5 -0.5 0.5 24.03 24.13
44      pz 23.78
45      pz 24.02
46      cz 2.36

mode  p e
m1    32000.          1 $Ge
m2    13000.          1 $Al
m3    6000.           1 $C
m4    6000.           0.75 $POLY
      1000.           0.25
m5    29000.          1 $CU
m6    50000.          1 $TIN
m7    82000.          1 $Pb
m8    15000.          0.12951 $phosphate
      6000.           0.01731 20000.          0.35857 16000.          0.0118
      12000.          0.00546 13000.          0.002184 26000.          0.0026
      11000.          0.008 8000.           0.40146 14000.          0.0101
imp:p      1 7r      0      1 6r
imp:e      1 15r      $ 1, 16
sdef x=d1 y=d2 z=d3  axs=0 0 1  erg= 1.7  par=3
si1 -0.5 0.5
si2 -0.5 0.5
si3 24.03 24.13
sp1 0 1
sp2 0 1
sp3 0 1
f4:p 3
e4 0 1E-05 1024i 1.7
cut:p,e j 0.001
nps 100000000

```

Annexes

Annexe 2

Fichier input pour le calcul de facteur d'auto-absorption

```
c      Created on: Tuesday, September 05, 2023 at 11:26
  1      1      -1.58 -1
  2      0      -2 #1
  3      0      -3 #1 #2
  4      0      3

  1      rpp -0.5 0.5 -0.5 0.5 0 0.1
  2      so 10
  3      so 15

mode n
m1 15031.66c      0.12951 $matrix
    6000.66c      0.01731 20000.62c      0.35857 16000.62c      0.0118
    12000.62c      0.00546 13027.62c      0.002184 26000.55c      0.0026
    11023.62c      0.008 8016.62c      0.40146 14000.60c      0.0101
    48000.51c      0.002 30000.42c      0.015 24000.50c      0.0135
    47000.55c      0.0004 22000.62c      0.0225 23000.62c      0.00425
    1001.66c      0.01 51000.42c      0.00125

imp:n      1 1r      0 1r      $ 1, 4
sdef cell=2 rad= d1 erg= d2 par=1
sil 0 10
si2 L 5.0000E-07 6.0000E-07 7.0000E-07 8.0000E-07
      9.0000e-07 1.0100e-06 2.0100E-06 3.0100E-06
      4.0100e-06 5.0100E-06 6.0100E-06 7.0100E-06
      8.0100e-06 9.0100E-06 1.0100E-05 2.0100E-05
      3.0100e-05 4.0100E-05 5.0100E-05 6.0100E-05
      7.0100e-05 8.0100E-05 9.0100E-05 1.0100E-04
      2.0100e-04 3.0100E-04 4.0100E-04 5.0100E-04
      6.0100e-04 7.0100E-04 8.0100E-04 9.0100E-04
      1.0100e-03
sp2 4.93831E-07 4.43999E-07 3.82108E-07 2.88908E-07
      2.73552e-07 2.79996e-07 1.38364E-06 8.59142E-07
      6.07205e-07 4.93653E-07 4.17269E-07 4.10334E-07
      3.10581e-07 2.86359E-07 2.81215E-07 1.34543E-06
      7.56769e-07 6.33650E-07 4.80306E-07 4.21380E-07
      3.03121e-07 3.16639E-07 2.46608E-07 2.81626E-07
      1.20984e-06 8.57067E-07 6.03799E-07 4.41479E-07
      4.13264e-07 3.11056E-07 2.66785E-07 2.81774E-07
      2.41338e-07

f4:n 1
nps 2000000000
```