



**list**  
cea tech

## MESURE DES RENDEMENTS DE FLUORESCENCE DU NIOBIUM ET DU RHODIUM

Journées utilisateurs LNHB | 16 & 17 mars 2017



- Dosimétrie en réacteur :

- Échantillons métalliques activés par les neutrons
- Activité des dosimètres mesurée par spectrométrie X et  $\gamma$ 
  - ➔ Fluence neutronique
- Informations sur le spectre des neutrons
- Suivi du vieillissement des cuves des réacteurs nucléaires

Dosimètres	Energies des photons émis (keV)	Région d'énergie des neutrons	Période
$^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$	834,85 ( $\gamma$ )	Rapide (> 3 MeV)	312,13 j
$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$	810,76 ( $\gamma$ )	Rapide (> 2,7 MeV)	70,86 j
$^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$	441,8 ( $\gamma$ )	Thermique + épithermique	2,69 j
$^{93}\text{Nb}(n,n')^{93\text{m}}\text{Nb}$	16,59 ( $XK\alpha$ ) et 18,67 ( $XK\beta$ )	Rapide (> 1,2 MeV)	16,12 a
$^{103}\text{Rh}(n,n')^{103\text{m}}\text{Rh}$	20,17 ( $XK\alpha$ ) et 22,84 ( $XK\beta$ )	Rapide (> 0,7 MeV)	56,115 min

- Mesure d'activité à partir de l'émission X

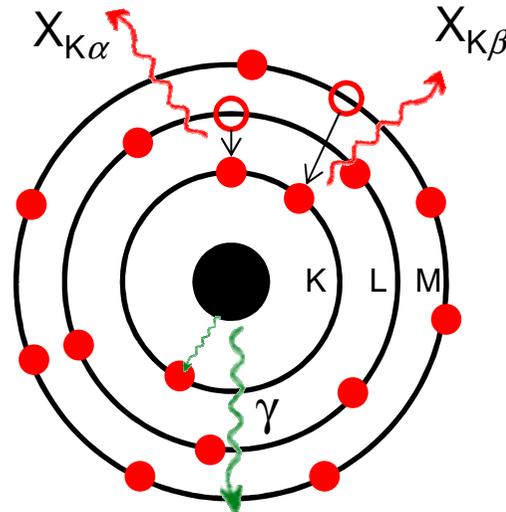
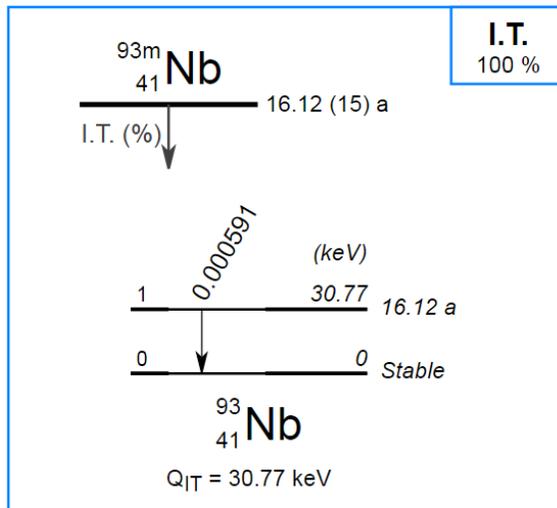
# INTRODUCTION

- Désexcitation du  $^{93m}\text{Nb}$  et  $^{103m}\text{Rh}$  :

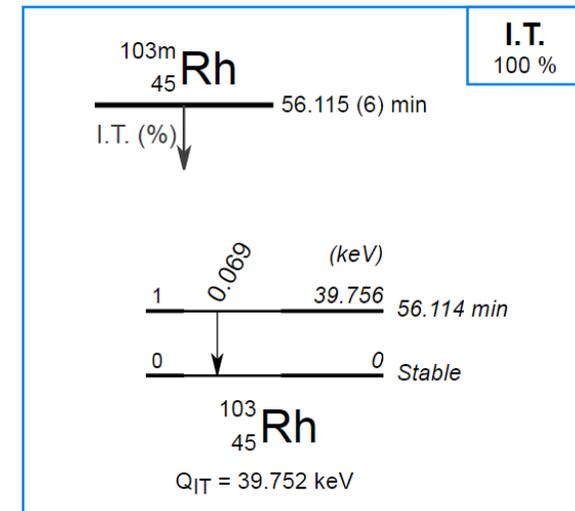
- Transition  $\gamma$  unique et fortement convertie (raie  $\gamma$  très peu intense)
- Principales émissions :  $e^-$  et rayons X
- Intensités d'émission des rayons X K calculées à partir du rendement de fluorescence K :  $\omega_K$ 
  - Probabilité d'émission radiative suite à une vacance dans la couche K

$$I_{XK} \propto \omega_K$$

Énergie de liaison K :  
18,99 keV



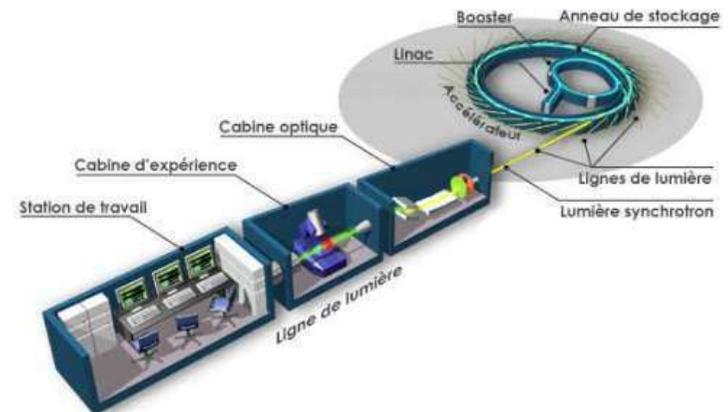
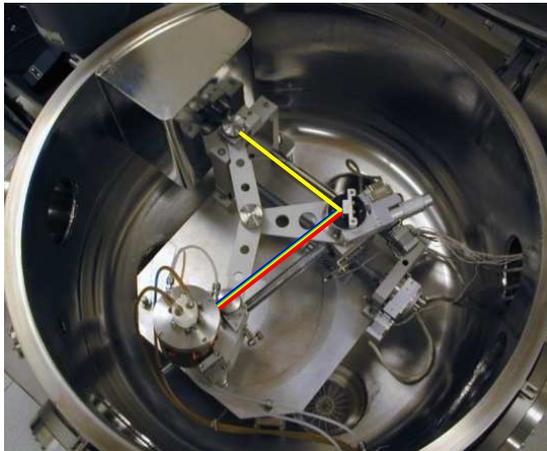
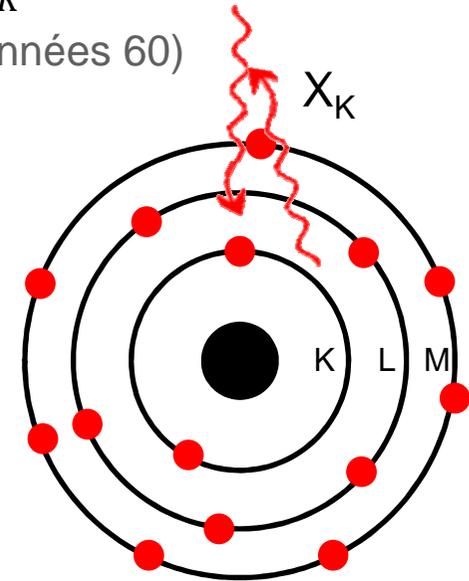
Énergie de liaison K :  
23,23 keV



## PROCÉDURE EXPÉRIMENTALE

● Mesure du rendement de fluorescence :  $I_{XK} \propto \omega_K$

- Rendements de fluorescence mal connus (mesurés dans les années 60)
- Nouvelles possibilités expérimentales :
  - Sources X monochromatiques
  - Meilleure résolution des détecteurs
- Création de vacances dans la couche K :
  - Capture électronique ou conversion interne
  - **Photoionisation** ou ionisation par particules chargées
- Sources X monochromatique disponibles :
  - SOLEX
  - SOLEIL : Ligne « métrologie » , branche X-Dur



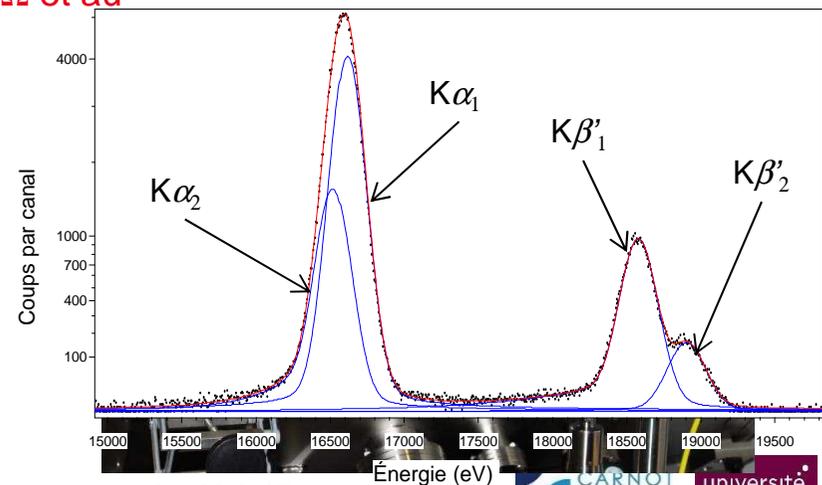
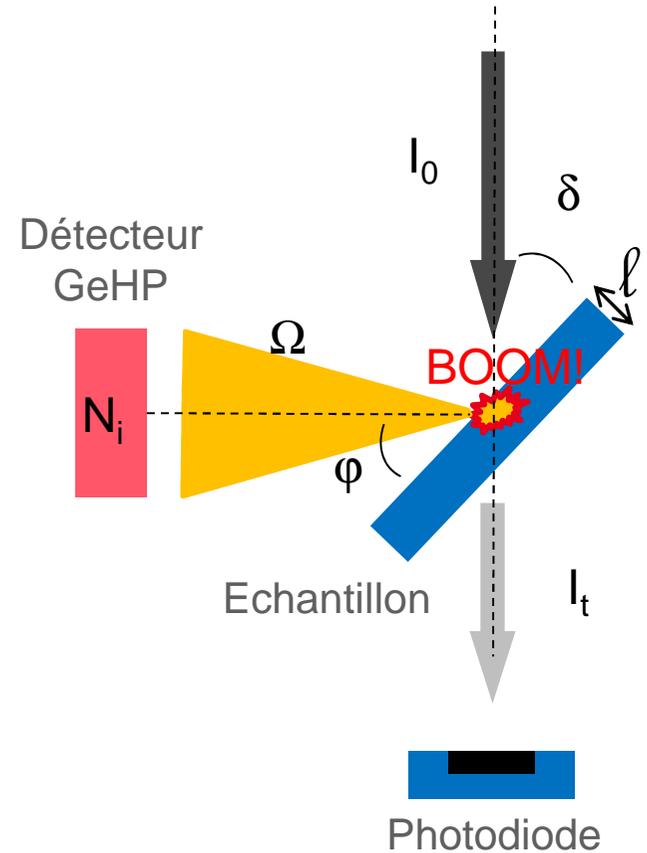
## Mesure en réflexion

- Faisceau de photons monochromatiques incident avec une énergie  $E_0$ , une intensité  $I_0$  et un angle  $\delta$
- Atténuation linéique  $\mu(E_0)$  dans l'échantillon d'épaisseur  $l$  et interaction par effet photoélectrique avec une probabilité  $\tau_K$
- Relaxation atomique  $\omega_{Ki}$
- Mesure des photons émergents avec un GeHP étalonné (après atténuation dans l'échantillon selon  $\mu(E_i)$ )
- Intensité du faisceau incident  $I_0$  mesurée en transmission avec une photodiode étalonnée (dont atténuation sur  $\frac{l}{\sin \delta}$  dans l'échantillon)
- Nombre d'événements  $N_i$  dans le pic d'absorption totale à l'énergie  $E_i$ , proportionnel à l'angle solide de détection  $\Omega$  et au rendement du détecteur  $\varepsilon_i$  :

$$dN_i = I_0 e^{-\frac{\mu_0 x}{\sin \delta}} \frac{dx}{\sin \delta} \tau_K \omega_{Ki} e^{-\frac{\mu_i x}{\sin \varphi}} \frac{\Omega}{4\pi} \varepsilon_i$$

- En se plaçant tel que  $\delta = \varphi = 45^\circ$  :

$$\omega_{Ki} = \frac{4\pi N_i}{\Omega \varepsilon_i} \frac{1}{I_0 \tau_K} \frac{\mu_0 + \mu_i}{1 - e^{-\frac{\mu_0 + \mu_i}{\sin \frac{\pi}{4}} l}}$$



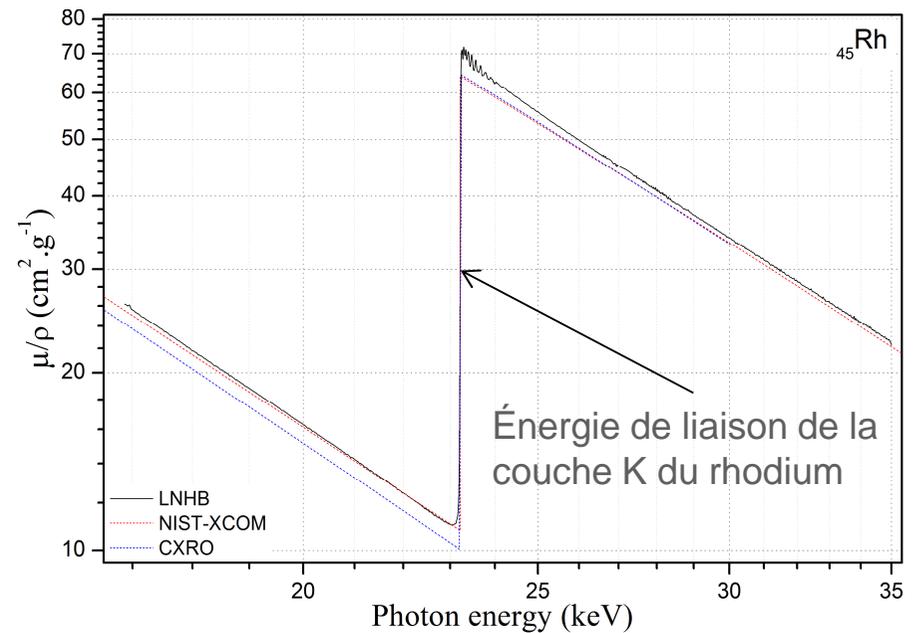
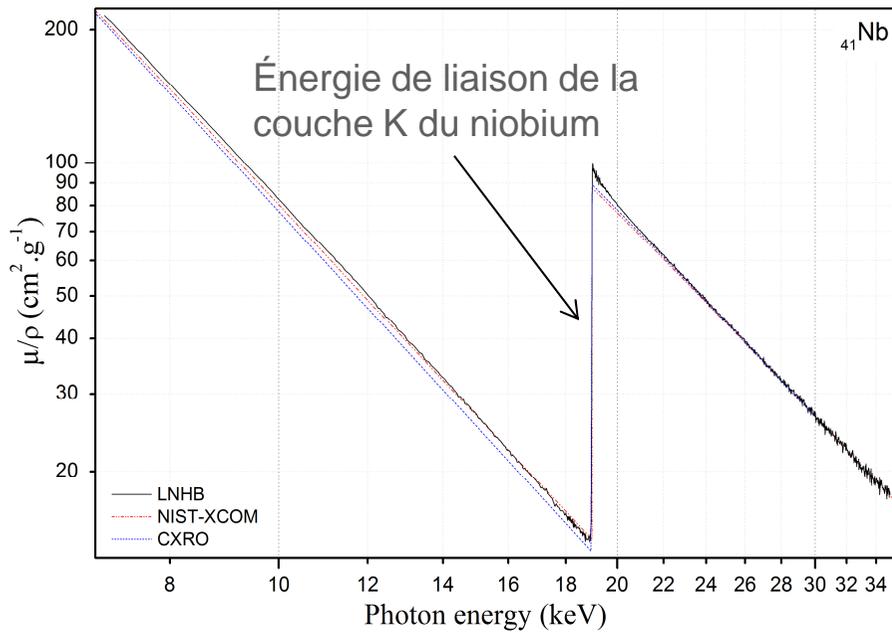
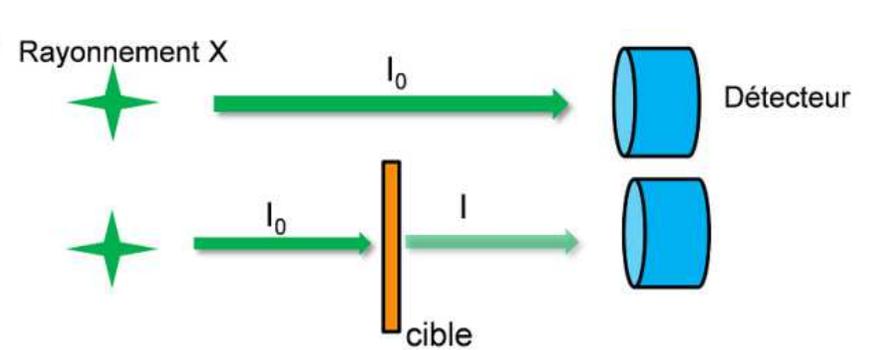
# RÉSULTATS ET ÉVALUATIONS

## ● Coefficient d'atténuation massique $\left(\frac{\mu}{\rho}\right)$

- Mesure en transmission
- Atténuation suit la loi de Beer-Lambert :

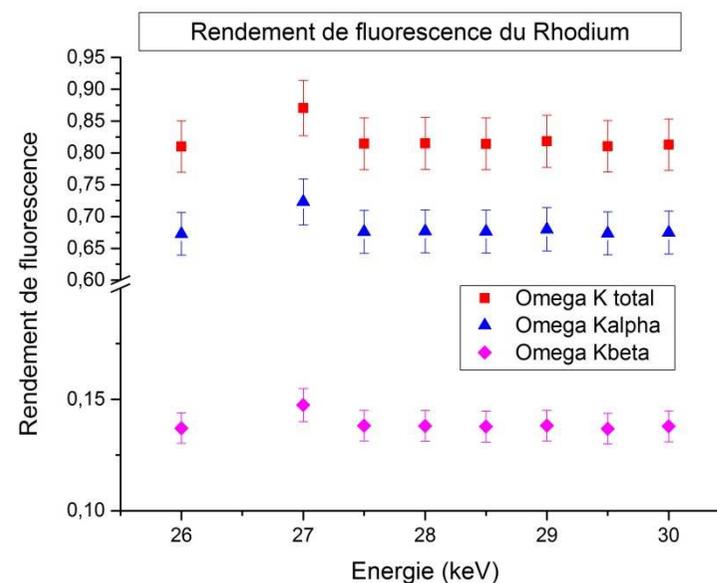
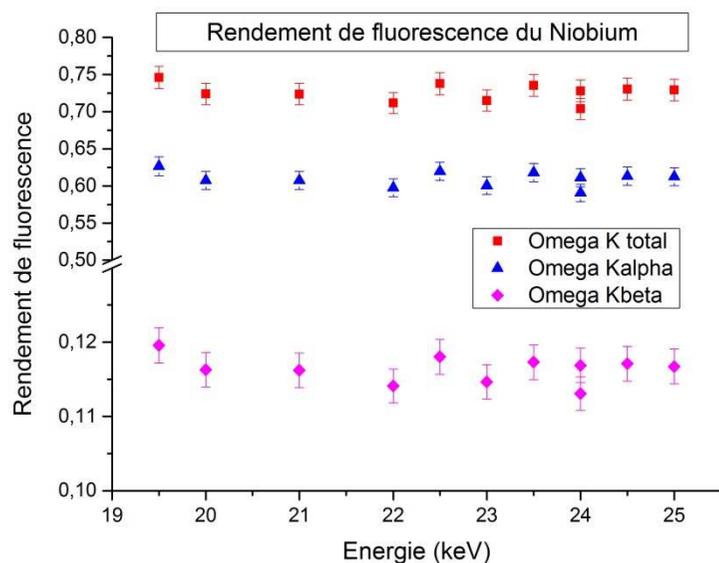
$$I = I_0 e^{-\frac{\mu}{\rho}(E)\rho x} = I_0 e^{-\frac{\mu}{\rho}(E)\frac{M}{A}}$$

- Incertitude type relative : 2 %



## ● Résultats

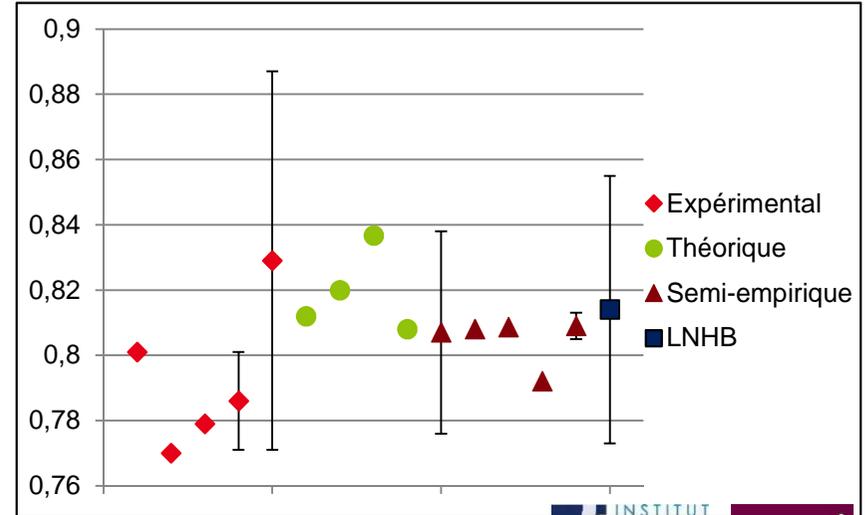
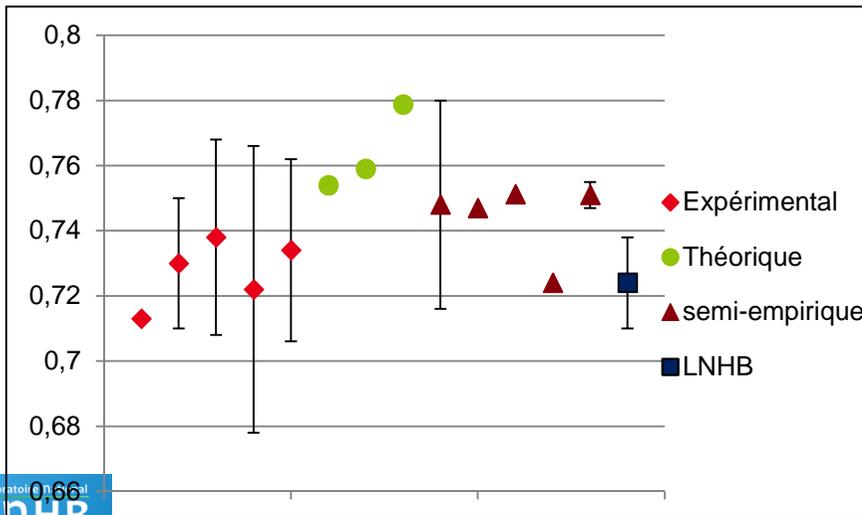
- Épaisseur des échantillons : 20  $\mu\text{m}$  (Nb) et 50  $\mu\text{m}$  (Rh)
- Résultats finaux : moyenne des résultats obtenus pour différentes énergies
  - Nb :  $\omega_K = 0,724$  (14)      incertitude type relative : 2 %
  - Rh :  $\omega_K = 0,814$  (41)      incertitude type relative : 5 %



# RÉSULTATS ET ÉVALUATIONS

Niobium				
Auteur	Année	Rendement de fluorescence K	Méthode	
C.E. ROOS	1954	0,713	Expérimental	
	1957	0,730 (20)		
	S.K. ARORA	1981		0,738 (30)
	S. SINGH	1990		0,722 (44)
	R. DURAK	2001		0,734 (28)
E.J. CALLAN	1962	0,754	Théorie	
V.O. KOSTROUN	1971	0,759		
D.L. WALTERS	1971	0,7788		
W. BAMBYNEK	1972	0,748 (32)	Semi-empirique	
M.O. KRAUSE	1979	0,747		
J.H. HUBBELL	1989	0,7512		
	1994	0,724		
E. SCHÖNFELD	1996	0,751 (4)		
<b>LNHB (2016)</b>		<b><math>\omega_K = 0,724 (14)</math></b>		

Rhodium			
Auteur	Année	Rendement de fluorescence K	Méthode
I. BACKHURST	1936	0,801	Expérimental
R.J. STEPHENSON	1937	0,77	
C.E. ROOS	1954	0,779	
	1957	0,786 (15)	
S. SINGH	1990	0,829 (58)	
E.J. CALLAN	1962	0,812	Théorique
V.O. KOSTROUN	1971	0,820	
D.L. WALTERS	1971	0,8367	
M.H. CHEN	1980	0,808	Semi-empirique
W. BAMBYNEK	1972	0,807(31)	
M.O. KRAUSE	1979	0,808	
J.H. HUBBELL	1989	0,8086	
	1994	0,792	
E. SCHÖNFELD	1996	0,809 (4)	
<b>LNHB (2016)</b>		<b><math>\omega_K = 0,814 (41)</math></b>	



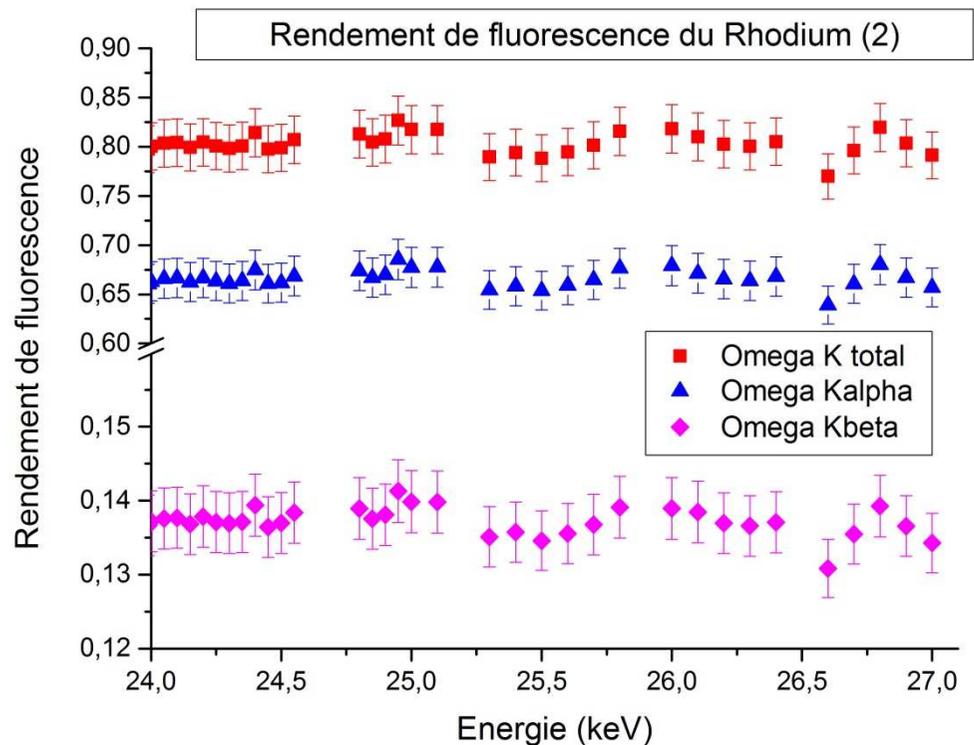
# RÉSULTATS ET ÉVALUATIONS

## Rhodium

- Forte incertitude sur la valeur du rendement de fluorescence due à la faible intensité du courant en transmission dans la photodiode
- Épaisseur de l'échantillon de rhodium trop importante :  $50 \mu\text{m} \rightarrow T = 2 \%$  (25keV)



Nouvelles mesures réalisées avec un échantillon de rhodium plus mince :  $12 \mu\text{m} \rightarrow T = 35 \%$  (25 keV)



Résultats provisoires

## CONCLUSION

- **Cadre: Mesures d'activité de dosimètres Nb et Rh par spectrométrie X**
  - Nouvelles mesures de  $\omega_K$
  - Approche expérimentale optimisée pour minimiser les incertitudes

	Mesures	Incertitudes
Nb	0,724 (14)	2 %
Rh	0,814 (41)	5 %

Nouvelles mesures toujours en cours d'exploitation

- **Comparaison avec les tables existantes**
- **Analyse bibliographique difficile : peu de mesures disponibles, écarts mesure-théorie, références douteuses ?**
- **En 2017 le sujet des rendements de fluorescence (K et encore pire L et M...) est toujours d'actualité**

**MERCI POUR VOTRE ATTENTION**

---

Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives  
Institut List | CEA SACLAY NANO-INNOV | BAT. 861 – PC142  
91191 Gif-sur-Yvette Cedex - FRANCE  
[www-list.cea.fr](http://www-list.cea.fr)

Établissement public à caractère industriel et commercial | RCS Paris B 775 685 019