

10/15

C.E.A. - C.E.N.-G.
SERVICE DES PILES
Groupe Dosimétrie

Le 30 juillet 1975
PI/DOS 321-165/75

10/15

APPLICATION DE LA REACTION $^{93}\text{Nb} (n, n') ^{93\text{m}}\text{Nb}$
A LA DOSIMETRIE DES IRRADIATIONS DE MATERIAUX

R. LLORET

1. International symposium on reactor dosimetry :
developments and standardization.
Petten (Netherlands),
22-25 September 1975

CFA-CONF--3324

FR7601150

APPLICATION DE LA REACTION $^{93}\text{Nb} (n, n') ^{93m}\text{Nb}$
A LA DOSIMÉTRIE DES IRRADIATIONS DE MATERIAUX

R. LLORET (C.E.N./GRENOBLE)

RESUME :

La dosimétrie des irradiations de matériaux de structure fait largement appel à la technique des détecteurs par activation. Parmi ceux-ci, la réaction $^{93}\text{Nb} (n, n') ^{93m}\text{Nb}$ est la mieux adaptée à cet usage.

Dans ce rapport, on rassemble les éléments de ce choix : haut point de fusion et bonne compatibilité du métal avec les milieux usuels, longue période et surtout section efficace à bas seuil comparable aux sections de création de défauts.

On décrit également les solutions qui ont été retenues pour son utilisation pratique et courante. Le matériau est du niobium métallique laminé, de haute pureté, irradié nu ou sous diverses gaines. Le comptage de l'activité de la raie $X K_{\alpha}$ Nb est effectué au moyen d'une diode Si-Li à préamplificateur refroidi, suivi de l'analyse du spectre X complexe. Les corrections sont faibles.

— — — — —

APPLICATION OF THE ^{93}Nb (n,n') $^{93\text{m}}\text{Nb}$ REACTION TO THE DOSIMETRY
OF THE TESTING MATERIALS IRRADIATIONS

R. LLORET (C.E.N./GRENOBLE)

ABSTRACT :

Activation detectors technique is very widely used in dosimetry of testing materials irradiations. In this scope, one of them, the ^{93}Nb (n,n') $^{93\text{m}}\text{Nb}$ reaction is the most suitable.

In this paper, the motives of this choice are summarized : high melting point and good compatibility of the metal with usual environments, long half-life and mainly low threshold cross-section, which is comparable with radiation damage cross-sections.

In order to use it in a common and practical way, the selected solutions are : the material is rolled metallic high purity niobium, which can be irradiated bare or under various jackets ; the X ray K_{α} Nb activity is measured with a Si-Li detector (cooled preamp.) by the analyse of the complex X rays spectrum. Corrections are weak.

- - - - -

- 1 -

APPLICATION DE LA REACTION $^{93}\text{Nb} (n,n') ^{93m}\text{Nb}$

A LA DOSIMETRIE DES IRRADIATIONS DE MATERIAUX

R. LLORET

I - INTRODUCTION

Dans toute irradiation d'essai de matériau, on s'attache à caractériser l'irradiation par la mesure de la fluence la plus adaptée. Pour ce faire, la technique des détecteurs par activation est utilisée depuis longtemps. Le choix des réactions est assez varié et a été largement exploré. Nous nous occupons dans cette communication de la réaction $^{93}\text{Nb} (n,n') ^{93m}\text{Nb}$, qui a été utilisée au C.E.N. de GRENOBLE depuis plusieurs années. On rappelle les motifs de ce choix et on donne l'essentiel de la technique employée, en soulignant les points marquants que l'expérience de plusieurs centaines de mesures effectuées à ce jour nous a fournis.

II - QUALITES DE LA REACTION $^{93}\text{Nb} (n,n') ^{93m}\text{Nb}$

Elles ont été signalées par plusieurs auteurs [1] [2] [3]. Ce qui est essentiel ici est la combinaison de deux caractéristiques intéressantes : la longue période du produit formé et le bas seuil de la section efficace.

PERIODE : La valeurs publiées sont dispersées. Pour ne retenir que les plus récentes, on trouve 13,6 a. [4] et 11,4 a. [2]. Les écarts proviennent de la difficulté de corriger correctement les activités parasites. Nous avons fait une première évaluation [5] sur un échantillon assez pur (Activité initiale en ^{182}Ta de période 115 j. : 0,5%) qui a fourni, avant correction 16,8 a., après correction 19,1 a.

.../...

Mais la correction a été surévaluée. Des mesures sont en cours. Quoiqu'il en soit, cette période est parmi les plus longues des réactions à seuil. Elle permet de lancer des mesures de surveillance de longue durée (jusqu'à 15 a.) sur des réacteurs prototypes par exemple.

SECTION EFFICACE : Une évaluation expérimentale de la section efficace a été réalisée par HEGEDUS [2]. Sa forme n'est pas significativement différente de celle de $^{103}\text{Rh}(n,n')^{103m}\text{Rh}$. C'est là que l'avantage du niobium apparaît clairement. En effet, quelle que soit l'excellence des moyens de calcul mis en oeuvre pour interpréter une irradiation, il paraît préférable d'utiliser une section efficace dont la forme s'éloigne le moins de celle du phénomène qu'on étudie. A cet égard, les Figures 1 et 2 sont probantes.

La valeur intégrale de la section sous un spectre de coeur de pile à eau légère a été évaluée par rapport à celle de $^{58}\text{Ni}(n,p)$. Avec $0,122 \pm 0,026$ rayonnement X_K produit par désintégration, on a trouvé :

$$\bar{\sigma}_{\text{Nb}} = 102 \pm 30 \text{ mb à partir de } \bar{\sigma}_{\text{Ni}} = 101 \pm 5 \text{ mb.}$$

Cette valeur est en très bon accord avec [2] :

$$\bar{\sigma}_{\text{Nb}} = 97 \pm 35 \text{ mb à partir de } \bar{\sigma}_{\text{Rh}} = 595 \pm 150 \text{ mb.}$$

La majeure partie de l'erreur attribuée à cette section provient de la connaissance du coefficient relatif de conversion. Ce fait n'a aucune conséquence dans les applications pratiques, car la longue période permet de conserver des étalons de fluence.

L'usage a confirmé d'autres avantages attendus, notamment l'excellente tenue mécanique et chimique du métal mincé employé, dans les conditions de manipulation de routine et d'irradiation courantes (milieu eau, NaK, gaz neutres), sans boîtier ni filtre.

.../...

Comme 2 mg (12 mm²) suffisent pour mesurer quelque 10¹⁸ n/cm², on voit que l'on dispose d'un détecteur vraiment commode et ponctuel.

Enfin, le haut point de fusion du métal (2468°C) permet d'envisager des mesures à haute température, à condition d'éviter l'oxygène.

III - MISE EN OEUVRE DE LA REACTION ⁹³Nb (n,n')

Le Tableau I regroupe les caractéristiques des réactions rencontrées lors de l'irradiation de niobium. Le rayonnement X émergent est mesuré. Pour limiter les corrections d'autoprotection, de l'ordre de 0,7% par micron, on utilise du métal laminé de 20 microns d'épaisseur, et on mesure sous incidence normale.

Le matériau de départ est très pur, avec moins de 5 ppm de Ta. Les spectres γ obtenus à différents temps de refroidissement sont représentés Fig. 3. Corrélativement, les spectres X présentent, Fig. 4, jusqu'à un temps de désactivation de l'ordre de 3 mois, les raies du Zr, tandis qu'après l'intégration d'une forte fluence de neutrons thermiques, les raies du Mo sont observées, décroissant avec la période du ⁹³Nb (35 j.)

Le comptage est fait au moyen d'une diode Si (Li) de 50 mm², à préampli refroidi, de résolution typique 260 eV. Le multiplet est analysé par le programme DASPEGA [6], ce qui permet de fournir le résultat moins d'un mois après la fin d'une irradiation de 10²⁰ n/cm².

Pour ce faire, la surface de la raie K _{α} est comparée, après corrections, à celle d'étalons de fluence obtenus à partir de ⁵⁸Ni(n,p) dans $\sim 10^{19}$ n/cm².

D'excellents recoupements à 10²¹ n/cm² ont été opérés, en utilisant ⁶³Cu (n, α) comme moniteur.

En outre, on a exploré quelques spectres typiques du coeur et du réflecteur du réacteur piscine SILOE : avec une bonne approximation, l'activité K_Q est trouvée proportionnelle au flux mesuré par $^{115}\text{In} (n, n')$.

Les corrections à apporter à la surface de la raie K_Q peuvent provenir - on le voit à l'examen du Tableau I - de plusieurs facteurs. Si la consommation de la population 93 m par le flux thermique existe, nous n'en possédons pas de données. Deux évaluations de cet effet sont en cours à GRENOBLE, dans $2.10^{14} \text{ n/cm}^2\text{s}$. (SILOE) et $1,2.10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}$. (R.H.F. - I.L.L.)

Par contre, les corrections de fluorescence dans la source, dues à ^{95}Nb , ^{94}Nb et ^{182}Ta sont souvent nécessaires. Elles dépendent de la géométrie du matériau et sont évaluées de manière semi-empirique à partir de leurs activités absolues au moment de la mesure en X. La principale est due à ^{95}Nb , et une valeur supérieure à 10% n'a été qu'exceptionnellement rencontrée.

Enfin, la correction due à ^{182}Ta s'atténue lorsqu'on s'élève dans l'ordre de grandeur des flux thermiques, grâce à la très forte section efficace de ce noyau (27000 b). Ainsi, à $10^{14} \text{ n/cm}^2\text{s}$. par exemple, sa période apparente en cours d'irradiation passe de 115 j. à 4,5 j. Cette remarque doit permettre d'envisager l'emploi de niobium moins pur (jusqu'à 100 ppm de Ta), donc moins rare.

IV - CONCLUSION

La réaction $^{95}\text{Nb} (n, n')$ paraît bien adaptée à la dosimétrie des fluences rapides et a une place de choix dans les problèmes évoqués ici. S'il subsiste encore des difficultés, matérielles sur l'approvisionnement du matériau, et théoriques sur les données, nous pensons qu'elles seront résolues bientôt. Enfin, l'expérience acquise à la solution des problèmes posés par cette mise en oeuvre a renforcé notre confiance.

- R E F E R E N C E S -

- [1] - MAURIN G. - Intégration des flux de neutrons rapides -
Thèse - Université de GRENOBLE (Sept. 1964)
- [2] - HEGEDUS F. - Détecteur de fluence de neutrons rapides utilisant
la réaction $^{93}\text{Nb} (n,n') ^{93\text{m}}\text{Nb}$ - Thèse - Université
L. PASTEUR de STRASBOURG (Janv. 1972).
- [3] - FABRY A., RIHON N. - Niobium as a monitor for radiation damage
experiments in high flux reactor.
- [4] - FLYNN K.F., GLENDENIN L.E., STEINBERG E.P. - Nucl. Science
and Eng. 22 (1965) 416.
- [5] - LLORET R. - Mesure de la période de désintégration du $^{93\text{m}}\text{Nb}$ -
Communication présentée à la réunion des groupes
de travail de Dosimétrie d'EURATOM - PETTEN -
Mars 1971
- [6] - JUNOD E. - Traitement par ordinateur de spectres gamma - Nucl.
Inst. and Meth. 105 (1972) 13.
- [7] - C.Z. SERPAN, Jr. - Engineering Damage cross-section for neutron
embrittlement of A 302-B pressure vessel steel.
- IAEA Specialist's Meeting on Radiation
Damage Units - SEATTLE, oct. 1972.
- [8] - DEVILLERS C., PERDREAU R. - Dosimétrie relative à des irradia-
tions d'acier dans le réacteur
MELUSINE - Communication présentée
à ce Symposium.

- T A B L E A U I -

Réactions simplifiées ayant lieu dans un échantillon de Niobium

Réaction	Section efficace	Période du corps formé	Type de désintégration	Rayonnement caractéristique observé	Sens de l'effet sur l'activité X
1 $Nb^{93}(n,n')Nb^{93m}$	$\sigma_f = 97 \pm 35 \text{ mb}^{[2]}$ $= 102 \pm 30$	$11,4 \pm 0,9 \text{ a}^{[2]}$	Transition à 29,2 keV totalement convertie	X Nb $K_{\alpha} = 16,58 \text{ KeV}$ $K_{\beta} = 18,65 \text{ keV}$ Electrons de conversion	
2 $Nb^{93}(n,p)Zr^{93}$	$\sigma_f \sim 1,8 \text{ mb}$	$\sim 10^6 \text{ a}$	Transition β à 25% vers niveau Nb^{93m}	- id -	Accroissement
3 $Nb^{93}(n,2n)Nb^{92}$	$\sigma_f \sim 1,4 \text{ mb}$	10,2 j.	Capture électronique puis γ vers niveau Zr^{92}	γ 900 et 930 keV X Zr $K_{\alpha} = 15,75 \text{ KeV}$ $K_{\beta} = 17,69 \text{ keV}$	
4 $Nb^{93}(n,\gamma)Nb^{94}$	$\sigma_0 = 1,16 \text{ b}$ $I_{\text{eff}} = 14 \text{ b}$	$\sim 2 \cdot 10^5 \text{ a}$	$\beta - \gamma$ vers Mo^{94}	γ 700 et 870 keV non convertis	Consommation de diminution
5 $Nb^{93m}(n,\gamma)$?				- id -
6 $Nb^{92}(n,\gamma)Nb^{93m}$?				accroissement
7 $Nb^{94}(n,\gamma)Nb^{95}$	$\sigma_0 = 15 \text{ b}$	95 m ↓ 84 h.	Transition γ en partie convertie	X Nb	accroissement mais courte période
		95 ↓ 35 j.	$\beta - \gamma$ vers Mo^{95} convertie $\alpha_K \sim 2 \cdot 10^{-3}$	γ 768 keV X Mo $K_{\alpha} = 17,45$ $K_{\beta} = 19,65$	
8 $Ta^{181}(n,\gamma)Ta^{182}$	$\sigma_0 = 19 \text{ b}$ $I \sim 1200 \text{ b}$	115 j.	β - nombreux γ fortement convertie	X W γ Ta^{182}	accroissement mais négligeable si le flux thermique est fort.

FIG. 1

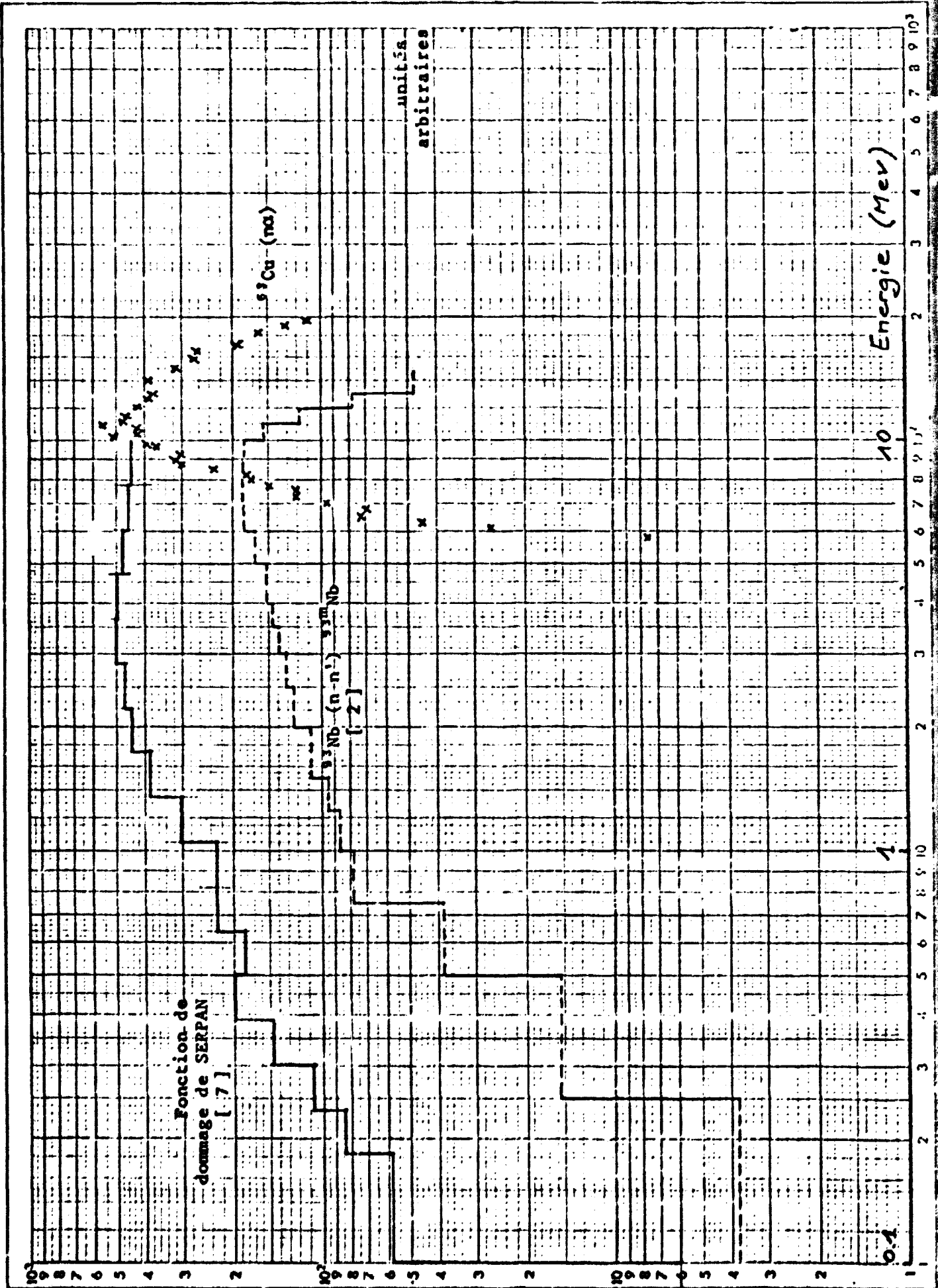
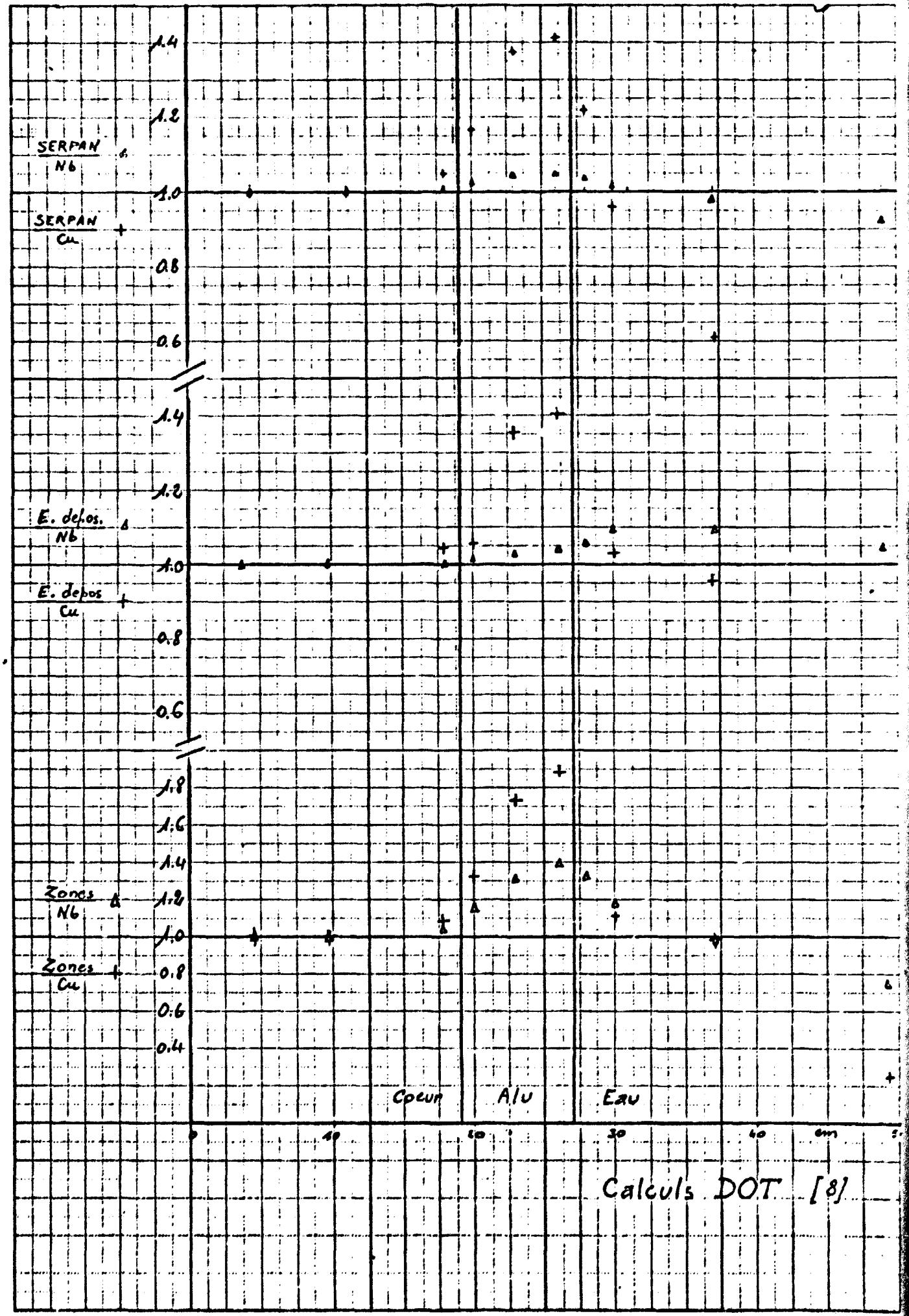


FIG. 2

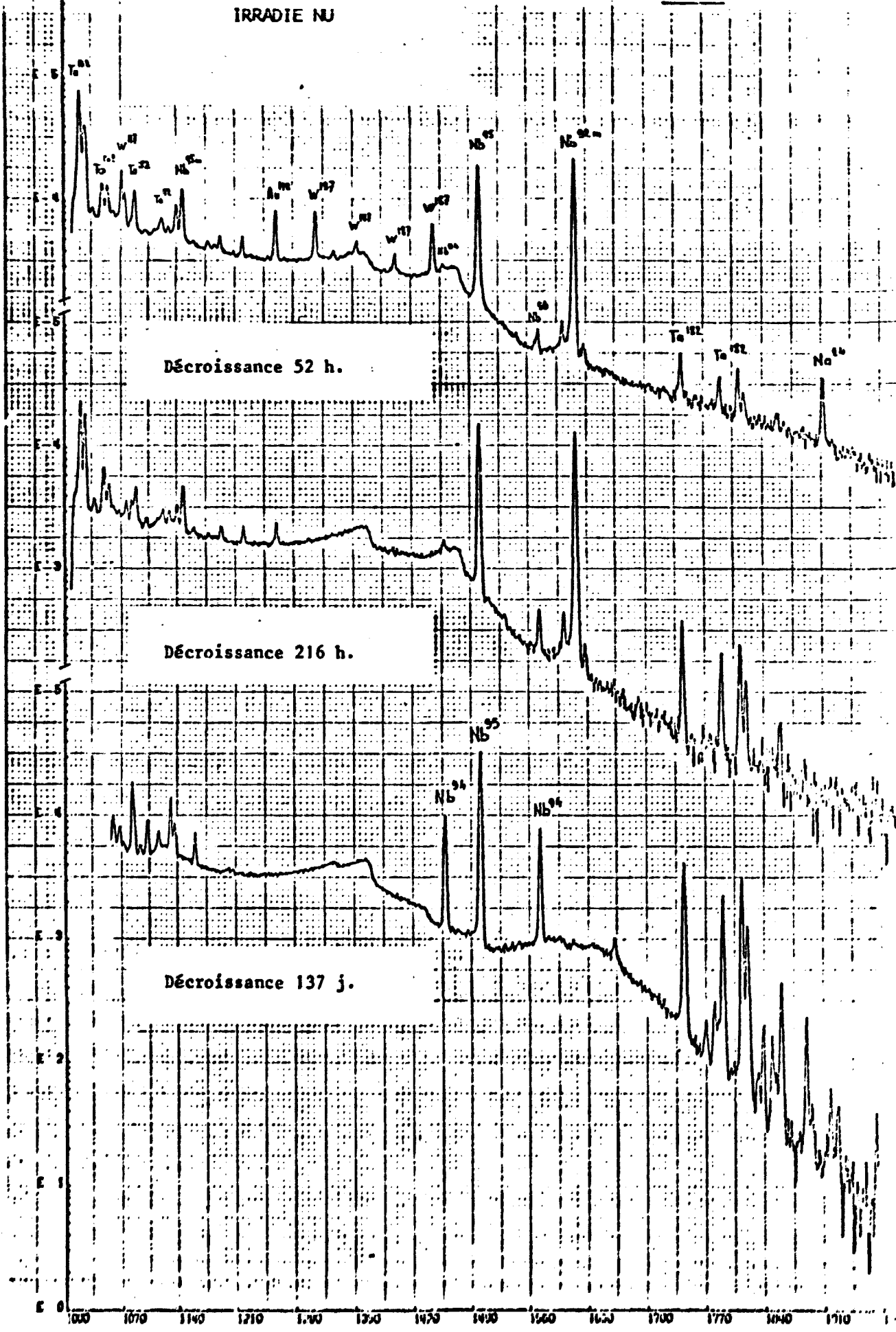


Calculs DOT [8]

SPECTRES GAMMA D'UN Nb

FIG. 3

IRRADIE NU



Décroissance 52 h.

Décroissance 216 h.

Décroissance 137 j.

6
5
4
3
2
1
0
1000 1070 1140 1210 1300 1370 1470 1560 1650 1700 1770 1840 1910

FIG. 4

SPECTRE X D'UN NIOBIUM - IRRADIE NU

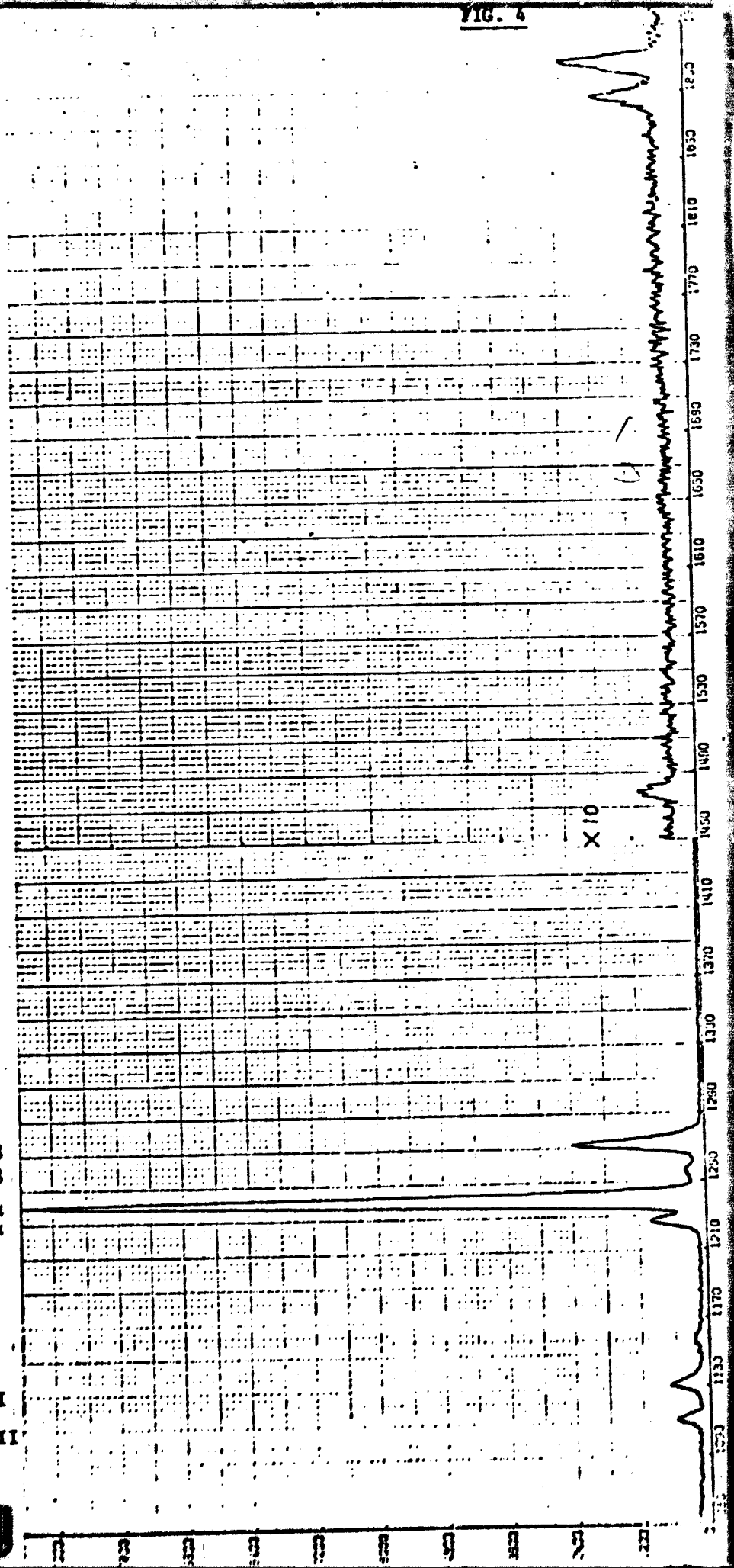
Décroissance 69 jours

W K α ₁
W K α ₂

Ta¹⁸²

Nb K β
Zr K β
Nb K α
Zr K α

W.L_I
W.L_{II}
W.L_{III}



1150 1170 1190 1210 1230 1250 1270 1290 1310 1330 1350 1370 1390 1410 1430 1450 1470 1490 1510 1530 1550 1570 1590 1610 1630 1650 1670 1690 1710 1730 1750 1770 1790 1810 1830 1850