České vysoké učení technické v Praze Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská

Katedra jaderných reaktorů Specializace: Jaderné reaktory



Spektrometrie neutronového pole zdroj
ové reakce p(22) + Be na neutronovém zdroji NG-2

Neutron Field Spectrometry of the p(22) + BeSource Reaction at the NG-2 Neutron Source

DIPLOMOVÁ PRÁCE

Vypracovala: Bc. Kateřina Orságová Vedoucí práce: doc. Ing. Milan Štefánik, Ph.D. Rok: 2023





Břehová 7 115 19 Praha 1

Katedra jaderných reaktorů

Akademický rok: 2022/2023

ZADÁNÍ DIPLOMOVÉ PRÁCE

Student:	Bc. Kateřina Orságová
Studijní program:	Jaderné inženýrství
Specializace:	Jaderné reaktory
Název práce česky:	Spektrometrie neutronového pole zdrojové reakce p(22) + Be na neutronovém zdroji NG-2
Název práce anglicky:	Neutron field spectrometry of the $p(22)$ +Be source reaction at the NG-2 neutron source
Jazyk práce:	čeština

Pokyny pro vypracování:

- 1. Navažte na svoji bakalářskou práci a výzkumný úkol a proveď te shrnutí a prohloubení doposud získaných znalostí v oblasti spektrometrie neutronových polí aktivační technikou.
- 2. Charakterizujte problematiku neutronových polí urychlovačem řízených zdrojů založených zejména na zdrojové reakci p + Be a jejich praktické využití např. pro validaci jaderných dat, radioanalytické aplikace, apod.
- 3. Dokončete rozbor a zpracovávaní dat z předchozího experimentu realizovaného v době bakalářské práce s využitím neutronového zdroje NG-2 na ÚJF AV ČR s beryliovým terčem a svazkem protonů o energii 22 MeV. Stanovte reakční rychlosti zbylých aktivačních reakcí.
- 4. Na základě sady dat získané z aktivačního experimentu zrekonstruujte spektra rychlých neutronů zdroje NG-2 pro zdrojovou reakci p(22) + Be. Obdržené neutronové spektra blíže charakterizujte. Vaše výsledky konfrontujte s výsledky jiných autorů pro obdobná měření ve světě. Diskutujte praktické využití získaného neutronového pole reakce p(22) + Be.

Doporučená literatura:

- [1] CIERJACKS, S. Neutron Sources for Basic Physics and Applications. Oxford: Pergamon Press Ltd., 1983. ISBN 978-0080293516
- [2] NOLTE, R. et al. High-energy Neutron Reference Fields for the Calibration of Detectors Used in Neutron Spectrometry. *Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res. Sec. A.* 2002. Vol. 476, pp 369–373. doi: 10.1016/S0168-9002(01)01472-3
- [3] KUČERA, J., ŠTEFÁNIK, M., VESELKA P. Fluorine determination in biological and environmental samples with INAA using fast neutrons from a p(19 MeV)+Be neutron generator. J. Radioanal. Nucl. Chem. 2019. Vol. 322, pp. 1517–1523. doi: 10.1007/s10967-019-06735-y
- [4] IBARRA, A. et al. The IFMIF-DONES project: preliminary engineering design. Nuclear Fusion. 2018. Vol. 58. doi: 10.1088/1741-4326/aad91f

Jméno a pracoviště vedoucího práce:

Ing. Milan Štefánik, Ph.D. KJR FJFI ČVUT v Praze

Datum zadání diplomové práce:	14. 10. 2022
Datum odevzdání diplomové práce:	3. 5. 2023
Doba platnosti zadání je dva roky od data zadání.	

V Praze dne 14. 10. 2022

prof. Ing. Tomáš Trojek, Ph.D.

Garant studijního programu

Ing. Jan Rataj, Ph.D.

Vedoucí katedry



doc. Ing. Václav Čuba, Ph.D.

Děkan

Prohlášení

Prohlašuji, že jsem předloženou práci vypracovala samostatně a že jsem uvedla veškeré použité informační zdroje v souladu s Metodickým pokynem o dodržování etických principů při přípravě vysokoškolských závěrečných prací.

V Praze dne 2.5.2023

Bc. Kalerina arsagena

Poděkování

Chtěla bych vyjádřit své upřímné poděkování panu doc. Ing. Milanu Štefánikovi, Ph.D., jehož vedení mi bylo nedocenitelnou odbornou i morální oporou nejen při tvorbě této diplomové práce, nýbrž i při řešení výzkumného úkolu a práce bakalářské.

Děkuji rovněž kolektivu Oddělení urychlovačů a jeho vedoucímu Ing. Janu Štursovi, konzultantu bakalářské práce, za zajištění technické podpory při realizaci původního ozařovacího experimentu na neutronovém generátoru NG-2. Za pomoc při proměřování aktivovaných vzorků bych ráda poděkovala týmu Oddělení jaderných reakcí. Poslední, ale nikoli nejmenší poděkování patří Ústavu jaderné fyziky Akademie věd České republiky jako celku za to, že mi navzdory krajně nepříznivé pandemické situaci umožnil se na experimentu podílet osobně přímo na pracovišti.

Veškeré experimentální činnosti, realizované v souvislosti se spektrometrií neutronového pole zdrojové reakce p(22) + Be na generátoru neutronů NG-2, byly podpořeny v rámci projektů CANAM-OP (reg. č. CZ.02.1.01/0.0/0.0/16-003/0001812) a ADAR (reg. č. LTAUSA18198).

Název práce:

Spektrometrie neutronového pole zdroj
ové reakce $\mathbf{p}(22) + \mathbf{Be}$ na neutronovém zdroji NG-2

Autor:	Bc. Kateřina Orságová
Studijní program: Specializace: Druh práce:	Jaderné inženýrství Jaderné reaktory Diplomová práce
Vedoucí práce:	doc. Ing. Milan Štefánik, Ph.D. KJR FJFI ČVUT v Praze

Abstrakt:

Na Ústavu jaderné fyziky Akademie věd České republiky je v provozu cyklotronem řízený generátor rychlých neutronů NG-2. Předkládaná diplomová práce podrobně charakterizuje a úspěšně završuje výzkumný projekt zaměřený na aktivační spektrometrii pole neutronů ze zdrojové reakce 22MeV protonového svazku na tlustém beryliovém terči. Klíčový aktivační experiment spočíval v ozáření sady dozimetrických fólií z 11 aktivačních materiálů (Ni, Co, Au, In, Ti, Al, Y, Lu, Fe, Nb, Cu) ve vzdálenostech 14 mm a 154 mm od zdroje a v cyklickém proměřování jejich gama spekter na HPGe detekčním systému Canberra. Analýzou experimentálních dat byly stanoveny reakční rychlosti na jedno terčové jádro pro identifikované aktivační a prahové interakce. V závěrečném procesu dekonvoluce pomocí kódu SAND-II se obdržené reakční rychlosti spolu s excitačními funkcemi z knihovny EAF-2010 využily k rekonstrukci neutronových spekter v obou studovaných pozicích. Korektnost výsledků dekonvoluce byla ověřena několika nezávislými testy. Nově rekonstruovaná spektra poskytnou pracovišti dobře definovaný nástroj pro širokou škálu experimentů z oblasti validace jaderných dat, neutronové aktivační analýzy rychlými neutrony a testování radiační odolnosti mikroelektroniky.

Klíčová slova: urychlovačem řízený zdroj rychlých neutronů, aktivační technika dozimetrickými fóliemi, protonový svazek, beryliový terč, spektrometrie neutronů, *unfolding* pomocí kódu SAND-II

Title:

Neutron Field Spectrometry of the p(22) + Be Source Reaction at the NG-2 Neutron Source

Author:	Bc. Kateřina Orságová
Study Programme: Speciality: Type of Thesis:	Nuclear Engineering Nuclear Reactors Diploma Thesis
Supervisor:	doc. Ing. Milan Štefánik, Ph.D. Department of Nuclear Reactors FNSPE CTU in Prague

Abstract:

At the Nuclear Physics Institute of the Czech Academy of Sciences, cyclotron-driven fast neutron generator NG-2 is operated. Proposed diploma thesis provides detailed characterization and successful completion to a research project aimed at activation spectrometry of the neutron field produced by source reaction of 22 MeV proton beam on thick beryllium target. Key activation experiment consisted of irradiating dosimetry foil sets comprising 11 activation materials (Ni, Co, Au, In, Ti, Al, Y, Lu, Fe, Nb, Cu) at the distance of 14 mm and 154 mm from source, and obtaining foils' gamma spectra by cyclical measurements on HPGe Canberra detection system. By analyzing the experimental data, reaction rates per one target nucleus were received for identified activation and threshold reactions. Within the final deconvolution process utilizing SAND-II code, obtained reaction rates along with excitation functions from EAF-2010 library were used to reconstruct neutron spectra in both investigated positions. Several independent tests were performed in order to increase confidence in deconvolution results. At the facility, newly reconstructed spectra will serve as a well-defined tool for a broad range of experiments, covering nuclear data validation, fast neutron activation analysis, and radiation hardness testing of microelectronics.

Key Words: accelerator-driven fast neutron source, multi-foil activation technique, proton beam, beryllium target, neutron spectrometry, SAND-II unfolding

Obsah

Se	znan	n veliči	a						xi
\mathbf{Se}	znan	n zkrat	ek						xv
\mathbf{Se}	znan	1 obráz	ků					x	viii
\mathbf{Se}	znan	n tabul	ek						xix
Ú٧	vod								1
Ι	Te	orie							3
1	Akt	ivační	technika dozimetrickými fóliemi						5
	1.1	Fyzikál	ní základ aktivačních měření						6
	1.2	Určová	ní reakční rychlosti						7
	1.3	Knihov	ny jaderných dat					 •	9
	1.4	Rekons	trukce spektra neutron ů $\ . \ . \ . \ . \ . \ . \ . \ . \ . \ .$	•				 •	11
		1.4.1	Lineární metoda nejmenších čtverců $\ .\ .\ .\ .\ .$	•					12
		1.4.2	GRAVEL (SAND-II) algoritmus	•					13
		1.4.3	Unfolding přístupem Monte Carlo				•	 •	14
2	Kor	npaktn	í neutronové zdroje řízené urychlovačem						15
	2.1	Histori	ký vývoj CANS					 •	16
	2.2	Jadern	é reakce iniciované nízko energetickými nabitými částicemi	•					17
	2.3	Fotojac	lerné reakce	• •			•	 •	18
	2.4	Fúzní r	eakce		•••	• •	•	 ·	19
3	Mo	žnosti a	plikace CANS						21
	3.1	Validad	e jaderných dat					 •	21
	3.2	Neutro	nová aktivační analýza	•				 •	24
	3.3	Testová	ní radiační odolnosti mikroelektroniky	•				 •	26
	3.4	Materia	ilový výzkum	• •				 •	28
	3.5	Kalibra	ce detekčních systémů $\ .\ .\ .\ .\ .\ .$	•				 •	29
	3.6	Další z	působy využití				•	 •	31
II	E	xperi	ment						33

4	Dos	avadní experimentální pokrok	35
	4.1	Pracoviště generátoru neutronů NG-2	35
	4.2	Aktivační experiment	37
	4.3	Gama spektrometrie aktivačních detektorů	38

		4.3.1 Účinnostní kalibrace HPGe spektrometru	39
		4.3.2 Reakční rychlosti	40
		4.3.3 Prostorový vývoj neutronového pole	42
5	Ana	lýza reakcí proběhlých na Lu, Cu, Fe a Ti	43
	5.1	Lutecium	44
	5.2	Měď	46
	5.3	Železo	48
	5.4	Titan	49
	5.5	Výsledné reakční rychlosti	51
6	Dek	onvoluce neutronového spektra	53
	6.1	Příprava vstupních dat	53
	6.2	Proces dekonvoluce	55
	6.3	Testy věrohodnosti získaného spektra	57
	6.4	Diskuze	61
		6.4.1 Fyzikální interpretace výsledků	61
		6.4.2 Uplatnění dekonvoluovaných spekter	62
Zá	věr		65

Bibliografie

67

Seznam veličin

$A_{\rm sat}$	Saturovaná aktivita (Bq)
a	Atomový zlomek (–)
a_k	Koeficienty kalibrační funkce gama spektrometrického systému (–)
$E_{\rm max}$	Maximální energie (MeV)
$E_{\rm n}$	Energie neutronů (MeV)
$\overline{E_{\mathrm{n}}}$	Střední enerie neutronů ve spektru (MeV)
$E_{\rm p}$	Energie protonů (MeV)
$E_{\rm prah}$	Prahová energie (MeV)
E_{γ}	Energie gama záření (keV)
$E_{\rm p}^{\rm start}$	Energie protonů v okamžiku zahájení ozařovacího experimentu (MeV)
$E_{\rm p}^{\rm stop}$	Energie protonů v okamžiku ukončení ozařovacího experimentu (MeV)
$f_{ m g}$	Korekční faktor na nebodovost geometrie měření $(-)$
$f_{\rm irr}$	Korekční faktor na nerovnoměrnost ozařování (–)
$f_{\rm s}$	Korekční faktor na samo absorpci gama záření ve vzorku $\left(-\right)$
Ι	Proud protonů na beryliovém terči (μA)
$I_{\gamma}(E_{\gamma})$	Intenzita gama linky o energi i $E_\gamma~(\%)$
$J_1(x)$	Besselova funkce proměnné x (–)
$M_{\rm int}$	Počet ozařovacích intervalů (–)
N(E)	Počet produkovaných neutronů v závislosti na jejich energii (MeV $^{-1})$
N_0	Počet terčových jader v použitém aktivačním detektoru (–)
P	Produkční rychlost (s^{-1})
$P({oldsymbol{\phi}})$	Hustota pravděpodobnosti pro vektor grupové hustoty toku neutronů $(-)$
p	Vektor upravených parametrů odezvové matice $(-)$
p_0	Vektor iniciačních parametrů od ezvové matice $(-)$
Q	Q-hodnota neboli energie reakce (keV)
$Q_i^{\mathbf{p}}$	Počet protonů zasahujících terč v $i\text{-tém}$ ozařovacím intervalu $(-)$
$Q_{\rm total}^{\rm p}$	Počet protonů zasahujících terč za celou dobu ozařování $(-)$
$R_{\rm R}$	Reakční rychlost na jedno terčové jádro (s ⁻¹)
$R_{\mathrm{R},i}$	Reakční rychlost na jedno terčové jádro pro $i\text{-tou interakci}~(\mathrm{s}^{-1})$

$R_{ m R,0}$	$m\text{-}\mathrm{prvkový}$ vektor změřených reakčních rychlostí na jedno terčové jádro $(-)$
$R_{ m R}$	$m\mbox{-}\mathrm{prvkov}$ ý vektor vypočtených reakčních rychlostí na jedno terčové jádro (–)
S	Entropie definovaná pro účely dekonvolučních numerických kódů $(\rm cm^{-2} s^{-1} MeV^{-1})$
$S(E_{\gamma})$	Plocha píku příslušného energi i E_γ (imp)
$T_{1/2}$	Poločas rozpadu (h)
t	$\operatorname{\check{C}as}(s)$
$t_{\rm a}$	Doba ozařování (aktivace) vzorku (s)
t_i	Délka i -tého ozařovacího intervalu (s)
t_i^{e}	Čas zbývající od konce $i\text{-tého}$ ozařovacího intervalu do konce ozařování (s)
$t_{\rm live}$	Čistá doba měření na detektoru po odečtení mrtvé doby (s)
$t_{\rm real}$	Doba měření na detektoru (s)
$t_{\rm v}$	Doba vymírání (s)
X	Tloušťka dozimetrické fólie (cm)
Y	Spektrální výtěžek neutronů (MeV $^{-1}\mathrm{C}^{-1}\mathrm{sr}^{-1})$
$\varepsilon_{\rm FEP}^{\gamma}(E_{\gamma})$	Absolutní píková detekční účinnost v závislosti na energi i E_γ (–)
${\cal E}_{p_0}$	Matice nejistot vektoru iniciačních parametrů odezvové matice $(-)$
${\cal E}_{R_{\rm R,0}}$	Matice nejisto t m prvků vektoru změřených reakčních rychlostí (–)
$\boldsymbol{\mathcal{E}}_{\phi_0}$	Matice nejistot l prvků vektoru iniciačního guess spektra (–)
λ	Rozpadová konstanta (s ^{-1})
μ	Lineární zeslabovací koeficient (cm^{-1})
$\mu_{ ho}$	Hmotnostní zeslabovací ko eficient $(\rm cm^2g^{-1})$
$\sigma(E)$	Mikroskopický účinný průřez v závislosti na energii $(1\mathrm{b}=10^{-24}\mathrm{cm}^2)$
$\sigma_{i,j}$	Mikroskopický účinný průřez i -té reakce v j -tém energetickém intervalu (1 b $=10^{-24}{\rm cm}^2)$
σ	Matice mikroskopických účinných průřezů pro m reakcí v l energetických intervalech $(-)$
$\sigma_{I_{\gamma}}$	Nejistota intenzity gama přechodu (–)
$\sigma_{R_{ m R}}$	Nejistota reakční rychlosti (–)
σ_S	Nejistota plochy píku (–)
$\sigma_{T_{1/2}}$	Nejistota poločasu rozpadu (–)
$\phi(E)$	Spektrální hustota neutronového toku $({\rm cm^{-2}s^{-1}MeV^{-1}})$
ϕ_j	j -tý prvek diskretizované spektrální hustoty neutronového toku $({\rm cm^{-2}s^{-1}MeV^{-1}})$
${oldsymbol{\phi}}$	$l\mbox{-}\mathrm{prvkov}ý$ vektor spektrální hustoty toku neutronů (–)
$\langle \phi angle$	Průměrovaný l -prvkový vektor spektrální hustoty toku neutronů (–)

- $\phi_0 \qquad l\mbox{-} prvkový vektor iniciačního <math display="inline">guess$ spektra (–)
- χ^2 Chí-kvadrát (–)
- $\Omega \hspace{1.5cm} \text{Efektivní prostorový úhel (sr)} \\$

Seznam zkratek

ADTT	Urychlovačem řízené transmutační technologie – Accelerator-Driven Transmutation Technologies
AME2020	Evaluace atomových hmotností 2020 – Atomic Mass Evaluation 2020
AV ČR	Akademie věd České republiky – The Czech Academy of Sciences
bcc	Kubická prostorově centrovaná krystalová mřížka – Body-Centered Cubic Crystal Lattice
BM@N	Studium baryonové hmoty na nuklotronu – Studies of Baryonic Matter at the Nuclotron
BNCT	Borová neutronová záchytová terapie – Boron Neutron Capture Therapy
BP	Bakalářská práce – Bachelor's Thesis
BSA	Sestava pro tvarování svazku – Beam Shaping Assembly
CANS	Kompaktní urychlovačem řízené neutronové zdroje – Compact Accelerator-Driven Neutron Sources
CBM@FAIR	Experiment se stlačenou baryonovou hmotou na Zařízení pro výzkum antiprotonů a iontů – Experiment on Compressed Baryonic Matter at the Facility for Antiproton and Ion Research
CERN	Evropská organizace pro jaderný výzkum – Conseil Européen Pour la Recherche Nucléaire
ČMI	Český metrologický institut – Czech Metrology Institute
DNA	Deoxyribonukleová kyselina – Deoxyribonucleic Acid
DONES	Neutronový zdroj orientovaný na DEMOnstrační elektrárnu – DEMOnstration Power Plant Oriented Neutron Source
EAF	Evropský aktivační soubor – European Activation File
ENDF/B	Evaluovaný soubor jaderných dat – Evaluated Nuclear Data File
ENSDF	Datový soubor evaluované jaderné stuktury – Evaluated Nuclear Structure Data File
FAIR	Zařízení pro výzkum antiprotonů a i ontů – Facility for Antiproton and Ion Research
FNAA	Neutronová aktivační analýza rychlými neutrony – Fast Neutron Activation Analysis
HPGe	Germanium s vysokou čistotou – High-Purity Germanium

ICE	Ozařování čipů a elektroniky – Irradiation of Chips and Electronics
IFMIF	Mezinárodní laboratoř pro ozařování fúzních materiálů – International Fusion Materials Irradiation Facility
INAA	Instrumentální neutronová aktivační analýza – Instrumental Neutron Activation Analysis
IRDFF	Mezinárodní soubor pro reaktorovou dozimetrii a fúzi – International Reactor Dosimetry and Fusion File
ISO	Mezinárodní systém norem – International Standards Organisation
JANIS	Informační systém jaderných dat založený na programovacím jazyce Java – Java-Based Nuclear Data Information System
JEFF	Spojená evaluovaná knihovna jaderných dat pro štěpení a fúzi – Joint Evaluated Fission and Fusion Nuclear Data Library
JENDL	Japonská evaluovaná knihovna jaderných dat – Japanese Evaluated Nuclear Data Library
KJR	Katedra jaderných reaktorů – Department of Nuclear Reactors
LANSCE	Centrum neutronových věd v Los Alamos – Los Alamos Neutron Science Center
LBNL	Lawrencova národní laboratoř v Berkeley – Lawrence Berkeley National Laboratory
LEPRICON	Kód využívající metodu nejmenších čtverců, konsolidace Výzkumného institutu pro elektrickou energii – Least-Squares Electric Power Research Institute Consolidation
LVR	Lehkovodní reaktor – Light Water Reactor
MCNPX	Rozšířený Monte Carlo N-částicový transportní kód – Monte Carlo N-Particle Extended Transport Code
NA61@CERN	Experiment s těžkými ionty a neutriny na protonovém supersynchrotronu v rámci Evropské organizace pro jaderný výzkum – Super Proton Synchrotron Heavy Ion and Neutrino Experiment within Conseil Européen Pour la Recherche Nucléaire
NAA	Neutronová aktivační analýza – Neutron Activation Analysis
NG-1	Neutronový generátor 1 – Neutron Generator 1
NG-2	Neutronový generátor 2 – Neutron Generator 2
OJR	Oddělení jaderných reakcí – Department of Nuclear Reactions
OUAL	Urychlovačová laboratoř Ohijské univerzity – Ohio University Accelerator Laboratory
PKA	Primární vyražený atom – Primary Knock-on Atom
PPPT	Fyzika a technologie elektráren – Power Plant Physics and Technology
РТВ	Německý institut metrologie – Physikalisch-Technische Bundesanstalt
RNAA	Radiochemická neutronová aktivační analýza – Radiochemical Neutron Activation Analysis

SAND-II	Spektrální analýza neutronovými detektory II – Spectral Analysis by Neutron Detectors II
SER	Četnost vratných chyb – Soft Error Rate
SEU	Narušení jedinou událostí – Single-Event Upset
SÚJV	Spojený ústav pro jaderný výzkum – Joint Institute for Nuclear Research
TENDL	Kódem TALYS generovaná evalu ovaná knihovna jaderných dat – TALYS-generated Evaluated Nuclear Data Library
TOF	$Doba \ letu - Time-of-Flight$
UCL	Katolická univerzita Louvain – Université Catholique de Louvain
ÚJF	Ústav jaderné fyziky – Nuclear Physics Institute
VÚ	Výzkumný úkol – Research Project
ZING-P	Prototyp intenzivního neutronového generátoru založený na synchrotronu s nulovým gradientem – Zero Gradient Synchrotron Intense Neutron Generator Prototype
ZGS	Synchrotron s nulovým gradientem – Zero Gradient Synchrotron

Seznam obrázků

$1.1 \\ 1.2$	Spektra reakcí typu p + Be studovaných W. B. Howardem v OUAL . Srovnání excitačních funkcí z různých knihoven pro $^{197}{\rm Au}({\rm n},{\rm 2n})^{196}{\rm Au}$	6 11
2.1 2.2 2.3	Energetická spektra neutronů ze zdrojových reakcí typu d + C \dots Nízkoenergetická část spektra fotoneutronových zdrojů \dots Fúzní neutronový generátor provozovaný ČMI \dots	18 19 20
3.1 3.2 3.3 3.4 3.5 3.6	Experimentální uspořádání IFMIF-DONES	23 25 27 29 30 31
$\begin{array}{c} 4.1 \\ 4.2 \\ 4.3 \\ 4.4 \\ 4.5 \\ 4.6 \end{array}$	Pozice neutronových generátorů NG-1 a NG-2 Beryliová terčová stanice NG-2	36 37 38 39 40 42
5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6 5.7	Excitační funkce pro interakci ^{nat} Lu $(n,x)^{175}$ Yb Experimentální ověření poločasu rozpadu ¹⁷⁵ Yb Součet excitační funkce pro produkci ^{60g} Co a ^{60m} Co	45 46 47 48 49 50 51
$6.1 \\ 6.2 \\ 6.3$	Totální excitační funkce diskretizované do 351 energetických grup Model ozařovací geometrie pro MCNPX	54 54
6.4	p(22) + Be na neutronovem generatoru NG-2	ээ 57
$\begin{array}{c} 6.5 \\ 6.6 \end{array}$	Spektra neutronů z p + Be reakcí měřených M. A. Lonem v Chalk River Poměry simulovaných a dekonvoluovaných spekter včetně experimen- tálních reakčních rychlostí v pozici P0 oproti poloze P14	60 60
		- •

Seznam tabulek

4.1	Reakční rychlosti interakcí identifikovaných při řešení BP a VÚ \ldots .	41
5.2	Mechanismy produkce radionuklidů na Lu	44
5.3	Gama spektrometrické vlastnosti radionuklidů $^{173}Lu,^{176m}Lu$ a ^{175}Yb .	44
5.4	Hodnoty Q a E_{prah} produkčních mechanismů ⁶⁴ Cu, ⁶⁰ Co a ⁶⁵ Ni	46
5.5	$T_{1/2}, E_{\gamma} \text{ a } I_{\gamma}(E_{\gamma})$ pro sledované radionuklidy ⁶⁴ Cu, ⁶⁰ Co a ⁶⁵ Ni	47
5.6	Důležité vlastnosti radionuklidů $^{51}\mathrm{Cr},^{54}\mathrm{Mn}$ a $^{56}\mathrm{Mn}$	48
5.7	Vlastnosti produkčních reakcí $^{51}\mathrm{Cu},~^{54}\mathrm{Mn}$ a $^{56}\mathrm{Mn}$	49
5.8	Produkční mechanismy radionuklidů ⁴⁶ Sc, ⁴⁷ Sc, ⁴⁸ Sc a ⁴⁷ Ca pro titan	50
5.9	Specifikace γ linek pro radionuklidy produkované na titanu	51
5.10	Konečné hodnoty reakčních rychlostí včetně procentuálních nejistot	
	pro všechny interakce pozorované v γ spektrech fólií Lu-69, Lu-70,	
	Cu-61, Cu-62, Fe-113, Fe-114, Ti-80 a Ti-81	52
6.1	Poměry napočtených a experimentálních reakčních rychlostí	56
6.2	Srovnání střední energie neutronů s Bredeho předpověďmi	59
6.3	Charakteristiky reakčních mechanismů zdrojové interakce $\mathbf{p}+\mathbf{B}\mathbf{e}$	62

Úvod

Simulace prostředí budoucího fúzního reaktoru, studium prvkového složení vzácných artefaktů kulturního dědictví či ověřování vlivu kosmického záření na mikroelektroniku používanou v letectví; uvedené příklady reprezentují jen zlomek možností, které se moderní vědě otevírají díky intenzivním polím rychlých neutronů, jaká lze produkovat pomocí urychlovačem řízených zdrojů. Ústav jaderné fyziky Akademie věd České republiky provozuje neutronový generátor NG-2, který je řízen izochronním cyklotronem U-120M a jenž v závislosti na zvolené zdrojové reakci dokáže vytvořit širokou škálu píkových i spojitých spekter energií rychlých neutronů. Právě podrobná znalost tvaru energetického spektra je přitom určujícím faktorem pro využití konkrétního neutronového pole.

Předkládaná diplomová práce završuje sérii tří akademických prací [1, 2], které se soustředí na spektrometrii pole neutronů generovaných interakcemi protonového svazku o energii 22 MeV na tlustém beryliovém terči. S ohledem na přesnost, ekonomičnost a zejména na možnost zkoumat spektrum v těsné blízkosti zdroje byla pro tento účel zvolena aktivační technika. V rámci bakalářské práce [1] se podařilo realizovat veškeré potřebné experimentální činnosti, tj. zkalibrovat detekční aparaturu, ozářit ve studovaném poli neutronů soubor dozimetrických fólií celkem z 11 aktivačních materiálů a cyklicky proměřit jejich gama spektra. Analýza naměřených dat spočívala v identifikaci produktů aktivačních a prahových reakcí, jež ve fóliích probíhaly při fázi aktivace, a v určení jim příslušných reakčních rychlostí na jedno terčové jádro. Vyhodnocování gama spekter pokračovalo přes výzkumný úkol [2] až do diplomové práce, v rámci níž se reakční rychlosti navíc spárovaly s odpovídajícími excitačními funkcemi z knihovny jaderných dat EAF-2010, aby mohla být pomocí numerického kódu SAND-II rekonstruována hledaná spektrální hustota toku neutronů ve vzdálenostech 14 mm a 154 mm od terče.

Aby bylo možné považovat diplomovou práci za samostatné ucelené dílo, její rešeršní část je uvedena shrnutím dosavadních znalostí o aktivační technice dozimetrickými fóliemi, nabytých při řešení předchozích dvou akademických prací. Součástí první kapitoly je i rozšíření těchto poznatků zejména v oblasti rekonstrukce spektra. Kapitola s číslem 2 uvádí zkoumanou zdrojovou reakci p(22) + Be do kontextu vůči alternativním mechanismům produkce rychlých neutronů, využívaným na kompaktních urychlovačem řízených neutronových zdrojích. Třetí kapitola extenzivně charakterizuje jednotlivé disciplíny, v nichž mohou být popsané generátory neutronů využívány, a to se speciálním důrazem na výzkum probíhající na domovském pracovišti s reakcemi typu p + Be.

V experimentální části diplomové práce je nejprve provedeno shrnutí dosavadního praktického pokroku. Obsahem čtvrté kapitoly je přitom nejen komentář samotného ozařovacího experimentu, ale rovněž popis účinnostní kalibrace HPGe gama spektrometrického systému Canberra a vyhodnocení naměřených dat pro 20 dozimetrických fólií ve smyslu stanovení reakčních rychlostí. Prostor je věnován rovněž závěrům studia prostorového vývoje pole neutronů. V rámci páté kapitoly je pak dokončena analýza gama spekter zbývajících osmi aktivačních detektorů z lutecia, mědi, železa a titanu. Práce vrcholí poslední šestou kapitolou, která dokumentuje proces rekonstrukce spektrální hustoty toku neutronů v obou zkoumaných ozařovacích pozicích; její součástí je také trojice testů věrohodnosti výsledků dekonvoluce a podrobná fyzikální diskuze. Význam nových spekter podtrhuje závěrečné vytipování možností jejich aplikace s největším potenciálem.

Dokument završuje shrnutí dosažených výsledků, které prokazují splnění cílů nejen diplomové práce, nýbrž i obou prací předcházejících.

Část I

Teorie

Kapitola 1

Aktivační technika dozimetrickými fóliemi

Schopnost přímo přetvářet atomová jádra coby základní složky všech látek ve vesmíru činí z urychlovačem řízených zdrojů neutronů jedna z nejvšestrannějších experimentálních zařízení vůbec. Aplikace neutronových generátorů mají potenciál přinášet ekonomická, mírová a bezpečná vylepšení ovlivňující všechny aspekty lidského života. [3] Neutrony jsou díky své částicové i vlnové povaze, elektrické neutralitě a citlivosti na izotopické složení, atomovou strukturu, pohyb i magnetismus ideálními sondami pro zkoumání celé řady vzorků [4]; lze je využít pro monitorování korozního stavu inženýrských staveb, vyšetřování vrtů i detekci výbušnin. Pro intenzivní neutronová pole jsou ovšem typické aplikace v materiálovém výzkumu, zkoumání artefaktů kulturního dědictví, testování radiační odolnosti mikroelektroniky či při tvorbě knihoven jaderných dat. Specifickou kategorii tvoří medicínské aplikace, kde dominuje využití generátorů neutronů pro výrobu radiofarmak a pro neutronovou záchytovou terapii. [3] Drtivá většina vyjmenovaných způsobů využití je ovšem podmíněna podrobnou znalostí energetického spektra neutronů produkovaných konkrétním zdrojem.

Jako spektrometrie neutronových polí se označuje rozsáhlá vědecká disciplína, jejímž cílem je stanovit funkci $\phi(E)$, tedy hustotu toku neutronů v závislosti na energii neboli spektrální hustotu neutronového toku v jednotkách cm⁻² s⁻¹ MeV⁻¹; veličina se často přepočítává na tzv. spektrální výtěžek neutronů Y vyjadřovaný v MeV⁻¹ C⁻¹ sr⁻¹. K jejich zkoumání lze využít celou řadu experimentálních technik, mezi nimiž patří k nejběžnějším metoda doby letu čili *time-of-flight* (TOF), spektrometrie odražených protonů neboli *proton recoil spectrometry* a rovněž technika Bonnerových sfér. Aktivační metoda ovšem ve srovnání s nimi vyniká vysokou přesností, nízkými náklady a především schopností charakterizovat neznámé pole neutronů ve velmi malých vzdálenostech od zdroje, které se kvůli neplatnosti bodového přiblížení nacházejí mimo rozsah použitelnosti jiných technik. Benefity aktivačního přístupu jsou ovšem do jisté míry vykoupeny značnou pracností; proto nebylo možné ani neutronové pole zdrojové reakce p(22) + Be kompletně spektrometricky prozkoumat v rámci jediné akademické práce, nýbrž se činnosti rozložily do bakalářské práce [1], výzkumného úkolu [2] a nyní předkládané práce diplomové. V zájmu ucelení jejího textu bude tedy do první části kapitoly zařazeno shrnutí hlavních principů a postupů využívaných v rámci aktivační spektrometrie neutronů.



Obr. 1.1: Energetická spektra neutronů produkovaných interakcemi typu p + Be, měřená týmem W. B. Howarda v Urychlovačové laboratoři Ohijské univerzity (OUAL) technikou doby letu [5]

1.1 Fyzikální základ aktivačních měření

Podstatou aktivační techniky spektrometrie neutronů je skutečnost, že při interakci neutronu ze zkoumaného pole s materiálem tzv. aktivačního detektoru vzniká zpravidla nestabilní radionuklid, jenž se následně rozpadá za emise doprovodného γ záření. Toto záření je možné analyzovat prostřednictvím metod jaderné gama spektrometrie, a jsou-li charakteristiky reakce v aktivačním detektoru dobře prozkoumány, lze ze získaných dat usuzovat na energii iniciačního neutronu.

Ústřední rovnicí metody je vztah

$$R_{\rm R} = \int_0^{+\infty} \phi(E)\sigma(E) \mathrm{d}E\,,\qquad(1.1)$$

který dává do souvislosti hledanou spektrální hustotu toku neutronů $\phi(E)$ s veličinami reakční rychlost na jedno terčové jádro $R_{\rm R}$ a diferenciální mikroskopický účinný průřez neboli excitační funkce $\sigma(E)$. Obě kvantity jsou přitom vztaženy k jediné konkrétní reakci, ve které byl v průběhu ozařování aktivačního detektoru ve studovaném poli neutronů produkován radionuklid, jímž emitované γ záření je právě vyšetřováno.

Reakční rychlost $R_{\rm R}$ se odvozuje od produkční rychlosti P, která představuje počet jader sledovaného radionuklidu, vznikajících za jednotku času při ozařování daného detektoru. V případě dosažení saturované aktivity $A_{\rm sat}$ platí mezi veličinami $A_{\rm sat}$ a P rovnost. Dovětek "na jedno terčové jádro" indikuje, že reakční rychlost se z produkční rychlosti získá podělením celkovým počtem jader obsažených v detektoru. S kvantitou $R_{\rm R}$ se pracuje v jednotkách s⁻¹ a stanovuje se experimentálně.

Excitační funkce vyjadřuje míru pravděpodobnosti interakce produkující vyšetřovaný radionuklid v závislosti na energii iniciačního neutronu. Protože však reakce obvykle neprobíhají v neomezeném rozsahu neutronových energií, může veličina $\sigma(E)$ například pro interakce s rychlými neutrony posunout dolní mez integrálu (1.1) na hodnotu určité prahové energie E_{prah} . Jelikož se navíc excitační funkce přebírají z knihoven jaderných dat, horní mez integrálu je často ztotožněna s maximální energií E_{max} , pro niž byly dosud hodnoty účinného průřezu v rámci dané knihovny tabelovány. Veličina má rozměr 1 b = 10^{-24} cm².

Podaří-li se při vhodném experimentu získat hodnoty $R_{\rm R}$ pro dostatečný počet reakcí s co možná nejodlišnějšími funkcemi účinných průřezů $\sigma(E)$, lze pomocí speciálních dekonvolučních neboli *unfoldingových* kódů rekonstruovat spektrum zkoumaného pole, jak si klade za cíl i předkládaná diplomová práce.

1.2 Určování reakční rychlosti

Experimentální stanovení souboru hodnot $R_{\rm R}$ obecně sestává ze tří fází. Nejprve se v souladu s teorií uvedenou v podkapitole 1.1 připraví vhodná sada tzv. aktivačních detektorů, jež mají obvykle podobu tenkých kruhových plíšků z různých kovových materiálů a mohou být rovněž označovány jako dozimetrické fólie. Následně se provádí aktivační experiment, v rámci kterého se fólie po dobu $t_{\rm a}$ ozáří ve studovaném poli neutronů, poté se během časového úseku $t_{\rm v}$ přepraví na gama spektrometrický systém a od okamžiku zahájení měření se počítá interval $t_{\rm real}$. Odečtením mrtvé doby detekční trasy se měřicí čas koriguje na hodnotu $t_{\rm live}$ a proměřování se zpravidla cyklicky opakuje. V posledním kroce se pak získaná gama spektra aktivačních detektorů analyzují za účelem identifikace naprodukovaných radionuklidů a stanovení jim příslušných reakčních rychlostí na jedno terčové jádro.

Klíčem k určování $R_{\rm R}$ je vztah

$$R_{\rm R} = \frac{S(E_{\gamma})\lambda_{t_{\rm live}}^{t_{\rm real}}}{N_0 \varepsilon_{\rm FEP}^{\gamma}(E_{\gamma}) I_{\gamma}(E_{\gamma}) (1 - e^{-\lambda t_{\rm a}}) e^{-\lambda t_{\rm v}} (1 - e^{-\lambda t_{\rm real}})} \cdot \frac{f_{\rm irr}}{f_{\rm s} f_{\rm g}}.$$
 (1.2)

Veličina $S(E_{\gamma})$ představuje čistou plochu píku lokalizovaného v naměřeném spektru na energii E_{γ} , tj. počet γ fotonů s danou energií zaznamenaných detektorem za dobu t_{real} , resp. t_{live} po odečtení pozadí. Příslušný údaj stejně jako délku obou časových úseků poskytuje po provedení základní energetické kalibrace přímo spektrometrická trasa. Podmínkou pro získání parametru $\varepsilon_{\text{FEP}}^{\gamma}(E_{\gamma})$, tedy absolutní píkové detekční účinnosti gama spektrometru, je poté provedení kalibrace účinnostní. Po správném přiřazení gama linky E_{γ} ke konkrétnímu radionuklidu lze pak z vhodné databáze jaderných dat odečíst její intenzitu $I_{\gamma}(E_{\gamma})$ stejně jako příslušnou rozpadovou konstantu λ . Poslední zatím nekomentovaný člen prvního součinitele, počet terčových jader N_0 , se získává vynásobením hmotnosti dozimetrické fólie Avogadrovou konstantou a následným podělením molární hmotností odpovídajícího prvku.

Druhý součinitel ve vztahu (1.2) reprezentuje tzv. spektrometrické korekce. Opravný faktor na nerovnoměrnost ozařování f_{irr} se určuje podle rovnice

$$f_{\rm irr} = \frac{1 - e^{-\lambda t_{\rm a}}}{t_{\rm a} \sum_{i=1}^{M_{\rm int}} \frac{Q_i^{\rm p}}{Q_{\rm tot}^{\rm p}} \frac{e^{-\lambda t_i^{\rm e}}}{t_i} \left(1 - e^{-\lambda t_i}\right)},$$
(1.3)

kde dosud nedefinovaný symbol $M_{\rm int}$ udává počet dílčích časových intervalů délky t_i , do nichž se rozdělí celková doba aktivace t_a , přičemž čas zbývající od konce *i*-tého intervalu do konce ozařování je označen $t_i^{\rm e}$. Pomocí veličiny $Q_i^{\rm p}$ se označí množství protonů zasahujících terč v *i*-tém intervalu, tj. součin proudu v *i*-tém intervalu s jeho délkou t_i , vydělený elementárním nábojem. Celkový součet hodnot $Q_i^{\rm p}$ má symbol $Q_{\rm total}^{\rm p}$ a interpretuje se jako počet protonů dopadnuvších na terč za celou dobu aktivace. Vzhledem k závislosti na λ se korekce určuje pro každý radionuklid zvlášť. [6]

Spektrometrický korekční faktor na samo
absorpci γ záření $f_{\rm s}$ v analyzované fóli
i lze stanovit ze vztahu

$$f_{\rm s} = \frac{1}{\mu X} \left(1 - {\rm e}^{-\mu X} \right) ,$$
 (1.4)

ve kterém parametr X představuje její tloušťku a μ označuje lineární zeslabovací koeficient materiálu, z nějž je zhotovena. Zvykem je ovšem tabelovat hodnoty nikoli lineárního, ale hmotnostního zeslabovacího koeficientu μ_{ρ} ; kýžený koeficient μ se z něj následně získá přenásobením hustotou. Protože μ_{ρ} i μ jsou funkcemi energie zeslabovaného svazku gama fotonů, stanovuje se zvláštní opravný faktor pro každou vyšetřovanou γ linku. [6]

Opravný faktor f_g umožňuje zohlednit míru odchylky geometrie měření ozářených aktivačních detektorů od experimentu, v rámci nějž se provedla účinnostní kalibrace gama spektrometru. Je definován předpisem

$$f_{\rm g} = \frac{\Omega}{\Omega_{\rm ref}} \,, \tag{1.5}$$

kde Ω a $\Omega_{\rm ref}$ představují popořadě efektivní prostorový úhel středovaný přes plochu aktivovaného vzorku, tedy dozimetrické fólie, a přes plochu kalibračního zářiče [7]. Na rozdíl od předchozích korekcí není ovlivněn energií konkrétní gama linky ani rozpadovou konstantou příslušného radionuklidu. Efektivní prostorový úhel se pak obecně stanovuje pomocí numerického řešení integrálu

$$\Omega = \frac{4\pi R_1}{R_2} \int_0^\infty \frac{\mathrm{e}^{-dk} J_1(R_2 k) J_1(R_1 k)}{k} \mathrm{d}k \,, \tag{1.6}$$

kde R_1 reprezentuje poloměr detektoru γ spektrometru, R_2 je poloměr zdroje záření ve formě kalibračního standardu či aktivačního detektoru a zápis $J_1(x)$ reprezentuje Besselovu funkci proměnné x. Řešení závisí rovněž na vzorek-detektorové vzdálenosti d. [8]

Nejistota reakční rychlosti stanovené dle rovnice (1.2) se označí jako $\sigma_{R_{\rm R}}$ a určí se pomocí zákona šíření chyb, empiricky optimalizovaného do výsledné podoby

$$\sigma_{R_{\mathrm{R}}} = \sqrt{\left(0,03\left(\frac{t_{\mathrm{real}}}{t_{\mathrm{live}}}-1\right)\right)^2 + \left(t_{\mathrm{v}}\lambda\sigma_{T_{1/2}}\right)^2 + \sigma_S^2 + \sigma_{I_{\gamma}}^2},\qquad(1.7)$$

kde $\sigma_{T_{1/2}}$, σ_S a $\sigma_{I_{\gamma}}$ postupně udávají bezrozměrné neurčitosti poločasu rozpadu příslušného radionuklidu, plochy píku a intenzity konkrétního gama přechodu. [9] Hodnoty $R_{\rm R}$ i $\sigma_{R_{\rm R}}$ poté společně vstupují do procesu váženého průměrování, kdy se využívají všeobecně známé a široce uplatňované vztahy

$$x_{\rm v} = \frac{\sum_{i=1}^{n} x_i / \sigma_{x_i}^2}{\sum_{i=1}^{n} 1 / \sigma_{x_i}^2}; \ \sigma_{x_{\rm v}} = \frac{1}{\sqrt{\sum_{i=1}^{n} 1 / \sigma_{x_i}^2}}, \tag{1.8}$$

v nichž symboly x_i označují *i*-tou hodnotu veličiny x a σ_{x_i} její nejistotu. Nejprve se stanovuje vážená reakční rychlost s neurčitostí pro konkrétní právě vyšetřovanou gama linku. Produkuje-li přitom radionuklid, jemuž linka přísluší, γ fotony o více dobře měřitelných energiích, aplikuje se vážené průměrování pro určení výsledných hodnot $R_{\rm R}$ a $\sigma_{R_{\rm R}}$ ještě jednou.

1.3 Knihovny jaderných dat

Výše popsaným způsobem připravené hodnoty reakčních rychlostí je pro rekonstrukci neutronového spektra nutné spárovat s excitačními funkcemi pro příslušné interakce. Účinné průřezy se přebírají z knihoven jaderných dat; pro aplikace spojené s neutronovou aktivací materiálů se přitom používají tzv. *activation files* neboli aktivační soubory. V současné době se ve vědecké komunitě zejména kvůli požadavkům na energetický rozsah široce využívají dvě knihovny tohoto typu, přičemž první z nich se nazývá Mezinárodní soubor pro reaktorovou dozimetrii a fúzi a má označení IRDFF [10], zatímco druhá nese název Evropský aktivační soubor a je známa pod zkratkou EAF-2010 [11]. [12]

Jako nejnovější aktualizace prvně jmenované knihovny byla v roce 2020 vydána verze IRDFF-II. Pokrývá energetický rozsah neutronů takřka od 0 do 60 MeV a obsahuje excitační funkce pro celkem 119 metrologických reakcí [10]. Nový evaluovaný soubor, vytvořený kombinováním experimentálních dat a výpočetních simulací, prošel v nedávné době procesy verifikace z pohledu správnosti formátování a validace ve smyslu ověřovacích výpočtů benchmarkových experimentů [13] a je nyní uvolňován pro využívání metrologickou komunitou. Vzhledem k relativně úzkému okruhu dostupných účinných průřezů, mezi nimiž často chybí především excitační funkce interakcí produkujících radionuklidy v metastabilních stavech, se ovšem IRDFF-II musí obvykle kombinovat s jiným zdrojem dat. Příkladem doplňkových databází mohou být knihovny typu TENDL čili *TALYS-generated Evaluated Nuclear Data Library*, které se namísto experimentů zakládají primárně na výpočtech pomocí software TALYS. [14]

Alternativní volba EAF-2010 v počtu popisovaných interakcí IRDFF-II mnohonásobně překonává, neboť obsahuje dokonce 66 256 excitačních funkcí pro 816 terčových materiálů s rozsahem od ¹H po ²⁵⁷Fm, a to pro neutronové energie 10⁻⁵ eV až 60 MeV. Data prezentovaná v knihovně mají podobný původ jako u předchozího souboru. Krom starších verzí EAF byly excitační funkce čerpány především z tehdy nejnovějších verzí standardních experimentálně založených knihoven typu ENDF/B-VIIa, JEFF-3.1.1, JENDL-4 a z řady samostatných výzkumných projektů, ale údaje se často doplňovaly pomocí výše zmíněných knihoven typu TENDL získaných výpočtem. [11] Právě úplnost ovšem často představuje hlavní argument pro upřednostnění EAF-2010 před poměrně úzce specializovaným IRDFF-II.

Protože však oblast energií neutronů od 20 MeV výše trpí nedostatkem experimentálních dat, jsou vysokoenergetické části knihoven obvykle zatíženy značnou nejistotou, která může dosahovat až desítek procent. Kupříkladu nejistota účinného průřezu pro interakci ¹⁹⁷Au(n,2n)¹⁹⁶Au, převzatého z EAF-2010, má pro neutronovou energii 20 MeV relativní hodnotu 20 % [11]. Vliv volby knihovny jaderných dat na *unfolding* neutronového spektra při použití aktivační techniky studoval mimo jiné kolektiv P. Raje. Vyhodnocení ozařovacích experimentů, z nichž jeden byl realizován přímo na pracovišti NG-2 ÚJF AV ČR s bílým spektrem neutronů do maximální energie 33 MeV, prokázalo ovlivnění rekonstruovaných neutronových toků až do výše 5 %; obzvláště citlivé oblasti spektra se však při dekonvoluci rozcházely až o 30 %. V rámci *unfoldingu* by se proto mělo usilovat především o konzistenci využitých dat, což do značné míry diskvalifikuje IRDFF-II kvůli omezené dostupnosti reakcí, a naopak ospravedlňuje aplikaci i primárně napočtených knihoven typu TENDL. Z pohledu současné spektrometrické praxe se však osvědčilo zejména použití EAF-2010. [14]

Odlišnosti v publikovaných jaderných datech pro uvedené různé knihovny prezentuje graf 1.2; EAF-2010 jako jediný soubor nabízí nejen totální účinný průřez pro interakci typu (n,2n), ale rovněž jednotlivé excitační funkce pro produkci základního a dvou metastabilních stavů ¹⁹⁶Au [11].



Obr. 1.2: Srovnání excitačních funkcí pro ¹⁹⁷Au(n,2n)¹⁹⁶Au převzatých z knihoven jaderných dat IRDFF-II [10], TENDL-2019 [15] a EAF-2010 [11]

1.4 Rekonstrukce spektra neutronů

V závěrečné fázi spektrometrie neutronového pole aktivační metodou se reakční rychlosti pro m pozorovaných interakcí, indexovaných symbolem i, kombinují s příslušnými excitačními funkcemi. Podle vztahu (1.1) se tak vytvoří soustava Fredholmových integrálních rovnic prvního druhu

$$R_{\mathrm{R},i} = \int_0^{+\infty} \phi(E)\sigma_i(E)\mathrm{d}E\,,\qquad(1.9)$$

avšak protože žádný konečný počet $R_{\rm R}$ nedokáže definovat spojitou funkci $\phi(E)$, nemá vzniklý systém řešení. [16] Přistupuje se proto k diskretizaci spektrální hustoty toku neutronů do l intervalů energií, značených indexy j, a po odpovídajícím zdiskretizování účinných průřezů lze soustavu (1.9) přepsat do podoby m algebraických rovnic [17]

$$R_{\mathrm{R},i} = \sum_{j=1}^{l} \sigma_{i,j} \phi_j \,. \tag{1.10}$$

Sestaví-li se navíc z hodnot $R_{\mathrm{R},i}$ a ϕ_j vektory $\mathbf{R}_{\mathbf{R}}$ a ϕ a z výrazů $\sigma_{i,j}$ takzvaná odezvová matice $\boldsymbol{\sigma}$ o *m* řádcích a *l* sloupcích, lze upravenou soustavu chápat jako zápis jediné maticové rovnice

$$\boldsymbol{R}_{\mathbf{R}} = \boldsymbol{\sigma}\boldsymbol{\phi} \,. \tag{1.11}$$

Aby se zdůraznilo, že na levé straně rovnice stojí originálně naměřené hodnoty reakčních rychlostí z experimentu, může se vektor indexovat nulou. Je-li přitom počet prvků ϕ vyšší než množství elementů $\mathbf{R}_{\mathbf{R},\mathbf{0}}$, totiž platí-li l > m, nedourčený problém (1.11) nemá jednoznačné řešení. Hledání vektoru spektrální hustoty toku neutronů dále komplikují neurčitosti změřených reakčních rychlostí, obsažené v samostatně stojící matici nejistot $\mathcal{E}_{\mathbf{R}_{\mathbf{R},\mathbf{0}}}$. [16]

S popsanými matematickými obtížemi se různými způsoby vyrovnávají numerické kódy. Nepříznivou nerovnost l > m lze do jisté míry kompenzovat specifikováním *a priori* informací; na fundamentální úrovni lze kupříkladu vhodnou výpočetní procedurou zajistit nezápornost hodnot ϕ_j . K dispozici může být také určitá vyhlazovací podmínka pro spektrální hustotu toku neutronů. Nejčastěji se ovšem kódu poskytuje předpočítaný vektor ϕ_0 s maticí nejistot \mathcal{E}_{ϕ_0} jakožto prvotní odhad hledaného neutronového spektra; běžně se označuje anglickým termínem guess spektrum. [16]

Obecných numerických metod pro řešení problému (1.11) existuje celá řada. Typicky se využívá lineární metoda nejmenších čtverců, tzv. GRAVEL (SAND-II) algoritmus a *unfolding* přístupem Monte Carlo [16], které budou stručně charakterizovány níže. K alternativním postupům patří maticová inverze, regularizační metody, technika odhadu parametrů, princip maximální entropie či stochastické metody genetických algoritmů a neuronových sítí. [17] Volba nejvhodnějšího přístupu, resp. kódu daný přístup praktikujícího, závisí na konkrétním problému, míře dostupnosti *a priori* informací a rovněž na zkušenosti experimentátora.

1.4.1 Lineární metoda nejmenších čtverců

Matematický základ jednoho z nejčastěji implementovaných dekonvolučních postupů spočívá v hledání minima výrazu χ^2 . Uvažuje-li se kromě výše popsaných nejistot změřeného vektoru $\mathbf{R}_{\mathbf{R},\mathbf{0}}$ a guess spektra $\phi_{\mathbf{0}}$ rovněž nejistota odezvové matice $\boldsymbol{\sigma}$, jejíž zadané iniciační parametry $p_{\mathbf{0}}$ jsou známy s neurčitostní maticí $\mathcal{E}_{p_{\mathbf{0}}}$, lze χ^2 vyjádřit pomocí součtu

$$\chi^{2} = (\boldsymbol{R}_{\mathbf{R},\mathbf{0}} - \boldsymbol{R}_{\mathbf{R}})^{\mathrm{T}} \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}}_{\boldsymbol{R}_{\mathbf{R},\mathbf{0}}}^{-1} \cdot (\boldsymbol{R}_{\mathbf{R},\mathbf{0}} - \boldsymbol{R}_{\mathbf{R}}) + + (\boldsymbol{\phi}_{\mathbf{0}} - \boldsymbol{\phi})^{\mathrm{T}} \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}}_{\boldsymbol{\phi}_{\mathbf{0}}}^{-1} \cdot (\boldsymbol{\phi}_{\mathbf{0}} - \boldsymbol{\phi}) + (\boldsymbol{p}_{\mathbf{0}} - \boldsymbol{p})^{\mathrm{T}} \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}}_{\boldsymbol{p}_{\mathbf{0}}}^{-1} \cdot (\boldsymbol{p}_{\mathbf{0}} - \boldsymbol{p}), \quad (1.12)$$

kde vektory bez dolního indexu 0, tedy ϕ , p a $R_{\mathbf{R}}$, reprezentují popořadě hledanou spektrální hustotu toku neutronů, odpovídající vhodně upravené parametry odezvové matice a na základě nich spočtené reakční rychlosti. Linearizaci minimalizovaného výrazu pak většina numerických kódů provádí za předpokladu, že hledaná řešení se budou jen málo odlišovat od iniciačních *a priori* informací, a je proto možné provést Taylorův rozvoj vektoru $R_{\mathbf{R}}$ v blízkém okolí $R_{\mathbf{R},\mathbf{0}}$, $p_{\mathbf{0}}$ a $\phi_{\mathbf{0}}$. [16, 17]

Výhody popsaného přístupu tkví zejména v jeho variabilitě; díky velkému množství možných *a priori* vstupů dokáží kódy při řešení zadaného problému zohlednit celou řadu žádaných skutečností. [17] Zároveň je však kvalita výsledků dekonvoluce velmi silně závislá na kvalitě poskytnutého *guess* spektra včetně neurčitostí. Samotný matematický postup rovněž nedokáže zajistit nezápornost nalezených komponent ϕ_j . [16]

Lineární metoda nejmenších čtverců je implementována kupříkladu v kódech STAY'SL [18] nebo LEPRICON [19].

1.4.2 GRAVEL (SAND-II) algoritmus

Iterativní unfoldingový algoritmus implementovaný v kódu SAND-II [20], resp. na něj navazujícím programu GRAVEL [21], se vyznačuje fundamentálním matematickým vyloučením řešení nesplňujících podmínku $\phi_j \geq 0$ pro každé $j \in \{1, ..., l\}$. Jmenované numerické kódy se soustředí na minimalizaci podobného výrazu, jaký vystupuje coby první sčítanec v definici χ^2 pro obecnou metodu nejmenších čtverců, avšak namísto samotných hodnot grupové hustoty toku neutronů se ve zmíněném analogu chí-kvadrátu objevují jejich logaritmy $\ln(\phi_j)$. [21] Prvky vektoru ϕ v iteraci (k+1)jsou pak funkcí neutronového spektra v předchozím k-tém kroku procesu, měřeného vektoru reakčních rychlostí, jeho nejistot a původně zadané odezvové matice. [17]

K rekonstrukci grupové hustoty toku neutronů je proto zapotřebí mít k dispozici iniciační odhad spektra podobně jako při použití metody 1.4.1. Oproti ní však nelze do procedury zahrnout jiné neurčitosti než nejistotu originálních měření. Řešení pro SAND-II (GRAVEL) algoritmus vždy existuje, avšak jeho odezva na vstupní guess spektrum není zcela transparentní; v závislosti na vektoru $\mathbf{R}_{\mathbf{R},\mathbf{0}}$ přitom může mít úloha více řešení, a volba $\phi_{\mathbf{0}}$ tak v krajním případě ovlivňuje i konkrétní nalezený výsledek. Odhad neurčitosti řešení se proto stává velice netriviálním problémem. Vysoký počet iterací navíc spektrum znehodnocuje tvorbou nefyzikálních píků. Z popsaných důvodů se tedy použití algoritmů typu SAND-II a GRAVEL doporučuje pouze zkušeným experimentátorům. [16]

1.4.3 Unfolding přístupem Monte Carlo

Základní ideou Monte Carlo metod je najíť řešení problému průměrováním přes velké množství relevantních odhadů spektra [17]. Jejich hledání probíhá jako náhodná procházka v *l*-dimenzionálním prostoru, v němž každá z os odpovídá jednomu energetickému binu grupové hustoty toku neutronů, přičemž výchozím bodem je zadané iniciační guess spektrum. Nový krok se učiní náhodnou volbou indexu *j* z množiny přirozených čísel od 1 po *l*, příslušný prvek ϕ_j se nahodile pozmění a hodnoty zbylých kompoment vektoru ϕ_0 se zachovají. Pro takto vygenerované spektrum ϕ se sleduje odpovídající hodnota χ^2 , nezápornost všech prvků a hustota pravděpodobnosti $P(\phi)$, určená podle vhodně zvoleného předpisu. Jako další článek tzv. Markovova řetězce se nové spektrum přijímá automaticky, jestliže je jeho hustota pravděpodobnosti vyšší než pro spektrum předchozí, v opačném případě o jeho přijetí znovu rozhoduje náhoda. Není-li spektrum akceptováno, stává se novým článkem opět původní krok a procedura se opakuje. [21] Po dosažení požadovaného počtu iterací *K* se výsledek $\langle \phi \rangle$ získá dle vztahu

$$\langle \boldsymbol{\phi} \rangle = \sum_{k=0}^{K} P(\boldsymbol{\phi}^{(k)}) \boldsymbol{\phi}^{(k)} , \qquad (1.13)$$

kde k indexuje jednotlivé kroky náhodné procházky. [17]

Uvedený postup lze volbou předpisu hustoty pravděpodobnosti spojit s principem maximální entropie. Pak bude platit $P(\phi) = 0$, jestliže ϕ obsahuje byť jediný záporný prvek, kdežto hustota pravděpodobnosti pro nezáporné grupové hustoty toku neutronů bude exponenciálně záviset na příslušné hodnotě $\chi^2(\phi)$. Na chí-kvadrát se navíc položí požadavek rovnosti s počtem stupňů volnosti dané úlohy. Kombinovaný přístup Monte Carlo a maximální entropie je implementován kupříkladu v kódu MIEKE [21]. Řešení popsané procedury vždy existuje, je nezáporné a neobsahuje podezřelé píky jako v případě algoritmů 1.4.2 [16].

Princip maximalizace entropie, označené S a definované jako

$$S = -\sum_{j} \left[\phi_j \ln \left(\frac{\phi_j}{\phi_{0,j}} \right) + \phi_{0,j} - \phi_j \right] , \qquad (1.14)$$

samostatně využívá v jiném numerickém přístupu například kód MAXED [17, 22].

Kapitola 2

Kompaktní neutronové zdroje řízené urychlovačem

Neutronový generátor NG-2 provozovaný na pracovišti ÚJF AV ČR spadá do kategorie tzv. kompaktních urychlovačem řízených neutronových zdrojů, známých rovněž pod zkratkou CANS a jejím anglickým ekvivalentem *compact acceleratordriven neutron sources*. Do skupiny CANS se obvykle zařazují neutronové zdroje využívající urychlovače s výkonem nepřesahujícím 100 kW, které poskytují svazky částic s maximální energií do 100 MeV [3]. Neutronový generátor NG-2 přitom nejvyšších parametrů dosahoval v období bezprostředně po modernizaci cyklotronu U-120M roku 1996 [23] v režimu urychlování záporných iontů H⁻, kdy bylo možné ze zařízení vyvádět svazky protonů o energii až 37 MeV při výkonu řádově několika stovek wattů [24].

Dominantním mechanismem pro produkci neutronů jsou na zdroji NG-2 reakce typu (p,xn) iniciované přivedením protonového svazku na terčový materiál, jímž může být těžká voda, lithium anebo berylium [25], přičemž právě zdrojová reakce p(22) + Beje těžištěm této diplomové práce. Alternativu ve smyslu primárních nabitých částic pro terče z berylia či lithia představují deuterony urychlované až na úroveň energií 20 MeV, které produkují neutrony v reakčních mechanismech typu (d,xn) [26].

Obecně však interakce p + Be a d + Be, podrobně popsané ve výzkumném úkolu [2], spolu s procesy p + Li, d + Li a $p + D_2O$ využívanými zdrojem NG-2 tvoří pouze úzký okruh možností, jež jsou relevantní pro produkci neutronů pomocí kompaktních urychlovačem řízených neutronových zdrojů. Cílem následující kapitoly bude proto přinést přehled o všech typech reakcí produkujících neutrony a využívaných v rámci CANS; speciální důraz se přitom položí na problematiku energetických spekter jimi produkovaných neutronů. Právě spektrální výtěžky jednotlivých mechanismů jsou totiž zásadní pro uplatnění konkrétních zdrojů v některém ze široké škály odvětví spoléhajících na urychlovači řízené neutronové generátory.

2.1 Historický vývoj CANS

Sestavení principiálně prvního neutronového zdroje je spjato se samotným objevem existence neutronu. Již roku 1930 němečtí vědci Walther Bothe a Herbert Becker při bombardování lehkých jader berylia α částicemi emitovanými poloniem pozorovali produkci vysoce pronikavého radioaktivního záření [27]; spojovali jej ovšem pouze s dosud známými paprsky γ . Rozpor s jejich teorií odhalili o rok později Irène a Frédéric Joliot-Curieovi, když při studiu tohoto takzvaného "beryliového záření" zjistili, že při jeho průchodu vrstvou hmoty obsahující vodík dochází k emisi protonů. Teprve James Chadwick roku 1932 ovšem interpretoval výsledky experimentů správně, a to když namísto předpokládaného reakčního mechanismu ⁹Be + $\alpha \rightarrow {}^{13}C + \gamma$ navrhl hypotézu probíhajícího procesu ${}^{9}\text{Be} + \alpha \rightarrow {}^{12}\text{C} + n$, díky kterému se již podařilo naplnit zákony zachování energie i hybnosti. V principu se přitom jednalo o experiment na prvním radionuklidovém neutronovém zdroji typu Po-Be. [27, 28]

S rostoucí potřebou produkce neutronů byly původní radionuklidové zdroje, k jejichž nevýhodám dodnes patří nízká emisivita, neproměnné spektrum a často rovněž intenzivní doprovodné γ záření, nahrazeny neutronovými generátory řízenými urychlovači. Zprvu se jednalo zejména o cyklotronové zdroje poskytující nabité částice o vyšších energiích s potenciálem pro vytváření intenzivnějších neutronových polí [3]. Historicky první cyklotrony sestavili Ernest Lawrence a Stanley Livingston v roce 1930 v berkeleyských laboratořích [29]; jakožto neutronový generátor se zdrojovou reakcí deuteronů s beryliem byl přitom zdejší cyklotron využit již ve druhé polovině třicátých let Edwinem McMillanem a Philipem Abelsonem při objevu neptunia a dalších transuranů [30].

Spuštění prvního štěpného jaderného reaktoru Enrica Fermiho roku 1942 poté učinilo zejména intenzivní nízkoenergetické svazky neutronů ještě dostupnějšími [3]; dále skupinu neutronových zdrojů v 60. letech 20. století [31] rozšířily generátory využívající lineární urychlovače elektronů. Jejich základní princip spočívá v produkci neutronů ve fotojaderných reakcích, které iniciují gama fotony uvolňované při brzdění elektronů ve vhodném terči. Výrazněji se fotoneutronové generátory ovšem kvůli dominanci reaktorových zdrojů a hadronových urychlovačů neprosadily [3].

Poslední výrazný zlom ve způsobu produkce neutronů pak přinesl teprve v 70. letech minulého století vývoj spalačních zdrojů. Spalace je proces indukovaný vysokoenergetickými urychlenými částicemi s energiemi v řádku stovek MeV až jednotek GeV, jež zasahují těžká atomová jádra terčového materiálu, která okamžitě emitují neutrony spolu s jinými druhy radioaktivního záření za účelem snížení své vlastní energie [3]. Jedním z prvních zařízení pracujících na popsaném principu byl pulzní spalační zdroj označovaný jako ZING-P, tj. prototyp intenzivního neutronového gene-
rátoru založený na synchrotronu s nulovým gradientem (*Zero Gradient Synchrotron*, ZGS). Na sestavě ZING-P se prováděly experimenty s protonovým svazkem o energii několika stovek MeV a zejména s těžkými uranovými terči. [32]

Vysoká intenzita spalačních zdrojů neutronů je však neoddělitelně spjata s mohutností projektu, a proto je jejich zásadní výhoda zároveň výraznou nevýhodou, nebot nemohou zastat úlohu husté sítě dnes dosluhujících malých výzkumných reaktorů. Řada experimentálních činností se tak přenáší právě na pracoviště kompaktních urychlovačem řízených zdrojů neutronů. [3]

2.2 Jaderné reakce iniciované nízkoenergetickými nabitými částicemi

Jak napověděl již historický úvod, produkce neutronů bombardováním terče z lehkých jader nabitými částicemi urychlovanými na nízké energie tvoří jeden ze základních kamenů neutronového výzkumu, a svůj význam neztratila dodnes.

Jako terčové materiály se využívají zejména prvky s nízkými protonovými čísly, jimiž mohou být například vodík v podobě deuteria či tritia, dále typicky lithium a berylium, ovšem vhodnou volbu může představovat i bor, uhlík, dusík či kyslík. Principiálně je ovšem možné využít kupříkladu také chlor, argon, nebo dokonce kobalt [3]. Typickými projektily jsou pak proton a deuteron, méně často se využívají tritony a α částice. Jak vyplývá také z přehledu vytvořeného v rámci výzkumného úkolu [2], v závislosti na volbě konkrétní dvojice projektil–terč, energie urychlovaných částic a rovněž tloušťky vrstvy terčového materiálu je pomocí tohoto typu zdrojů možné produkovat velmi rozmanitá neutronová pole co do rozsahu energií, tvaru spektra i výtěžku neutronů. Daní za vysokou variabilitu generátorů využívajících nízkoenergetické nabité částice je ovšem například intenzivní zahřívání terče v důsledku velmi krátkého doletu částic v pevných látkách. [3]

Lze krátce shrnout, že zdrojová reakce p(22) + Be na tlustém terči coby hlavní předmět zkoumání diplomové práce produkuje bílé spektrum neutronů, jejž tvoří zejména neutrony vzniklé primárním endoergickým mechanismem ⁹Be(p,n)⁹B. Ke "zploštění" spektra ovšem kromě zpomalování iniciačních protonů v terči příspívá excitace ⁹B do vyšších energetických stavů či produkce neutronů prostřednictvím sekvenčních či vícečásticových mechanismů, jako jsou kupříkladu (p,p'n) nebo (p,n α). Odpovídající energetické píky produkčních mechanismů (p,*x*n) lze ve spektru zvýraznit použitím tenkého terče. [2] V porovnání s jinými zdrojovými reakcemi pak využití p + Be na tlustém terči vede ke středním hustotám toku produkovaných neutronů [33]; při zachování energie primární nabité částice lze však neutronový výtěžek pod úhlem 0° výrazně zvýšit použitím deuteronů coby projektilů. Díky exoergické povaze nejdůležitější ${}^{9}\text{Be}(d,n){}^{10}\text{B}$ reakce navíc vzroste i průměrná energie neutronů [34].

Obdobně lze prozkoumat rovněž interakce typu p + Li a d + Li; s ohledem na špatné termomechanické vlastnosti lithia se ovšem reakce ⁷Li(p,n)⁷Be realizuje zpravidla pouze na tenkých terčích coby zdroj kvazimonoenergetických neutronů [35], zatímco mechanismy typu Li(d,xn) s aplikací ve vysokointenzivních generátorech rychlých neutronů vyžadují již zkonstruování kapalného terče [36].

Kupříkladu tým K. A. Weavera pro praktické použití hodnotil rovněž interakci d + C na tlustém terči; její výtěžky však dosahovaly přibližně o třetinu nižších hodnot než při použití terčů z berylia a lithia. Výsledky jeho práce znázorňuje graf 2.1 [37].



Obr. 2.1: Energetická spektra neutronů, produkovaných ze zdrojových reakcí typu d + C pod úhlem 3,5°, měřená kolektivem K. A. Weavera [37]

2.3 Fotojaderné reakce

V historickém vývoji urychlovačem řízených neutronových generátorů sehrály svou úlohu taktéž zdroje založené na fotojaderných reakcích. Mechanismus produkce neutronů má dvě fáze; nejprve se urychlený svazek elektronů přivádí na těžký terč, kde se zpomaluje a zároveň emituje tzv. brzdné záření zvané *bremsstrahlung*. Ve druhém kroku pak gama fotony, jimiž je brzdné záření tvořeno, dále interagují s jádry jiného vhodného terčového materiálu za produkce fotoneutronů. [3] V důsledku různých produkčních mechanismů závislých na energii interagujícího (e, γ) fotonu má energetické spektrum neutronů složitý tvar. Nejvyšších spektrálních výtěžků se dosahuje v oblasti přibližně okolo 1 MeV, kde se neutrony produkují především v procesu absorpce fotonu jádrem, tj. při vybuzení jádra na vyšší energetickou hladinu, přičemž excitační energie se následně vyzáří ve formě neutronu. [33] V nízkoenergetické oblasti lze tzv. evaporační neutronové spektrum popsat přibližným vztahem

$$N(E) \approx E^{1/2} \exp(-E/T), \qquad (2.1)$$

kde se symbolem N(E) rozumí počet produkovaných neutronů v závislosti na jejich energii a parametr T nabývá hodnoty mezi 1 MeV a 2 MeV [38]. Vzhledem k podobnosti se spektrem energií okamžitých neutronů ze štěpení se někdy rovněž označuje jako štěpné. Konkrétní příklad popisu evaporačního spektra pro hodnotu T = 1,4 MeV prezentuje graf 2.2. Vysokoenergetická oblast spektra ovšem dosahuje až desítek MeV; zodpovídá za ni především proces s produkcí tzv. kvazi-deuteronového stavu, kdy interagující foton předá svou energii namísto celého jádra primárně jednomu neutronprotonovému páru, jenž se následně rozpadá na dva volné nukleony [33, 38].



Obr. 2.2: Nízkoenergetická neboli štěpná část spektra energií neutronů produkovaných fotoneutronovými zdroji, popsaná rovnicí dle K. Uindzora [39]

Rozvoj neutronových generátorů založených na produkci brzdného záření byl ovšem historicky limitován jednak poměrně výrazným gama pozadím, jednak velkým množstvím tepla, jejž proces vytváří. [33] Produkce tepla je rovněž hlavním faktorem omezujícím emisivitu fotoneutronového zdroje řádově na 10^{14} s⁻¹ [38].

2.4 Fúzní reakce

Jaderná fúze se definuje jako proces sloučení dvou lehkých atomových jader vedoucí ke zformování jediného, těžšího jádra; energie uvolněná fúzní reakcí se přitom transformuje do podoby kinetické energie produktů. V případě dnes nejintenzivněji studované fúzní reakce deuteria s tritiem jsou těmito produkty jádro ⁴He a neutron, mezi něž se rozdělí celková energie interakce 17,6 MeV, a to v poměru 3,5 MeV pro α částici a 14,1 MeV pro uvolněný rychlý neutron. Obdobně lze pak interpretovat druhou hojně využívanou interakci zapisovanou jako d + D \rightarrow ³He(0,83 MeV) + n(2,43 MeV) [40].

Podmínkou pro iniciaci jaderné fúze je překonání coulombovské bariéry, způsobované odpudivými silami mezi oběma kladně nabitými jádry. V případě energetických fúzních reaktorů jde o komplikovaný technologický problém, neboť za účelem zisku energie je nutno fúzní reakci udržovat v prostředí dobře kontrolovaného vysokohustotního plazmatu zahřátého na extrémní teploty. [41] Je-li ovšem interakce využívána pouze jako zdroj rychlých neutronů, lze coulombovskou bariéru mezi slučovanými jádry bez obtíží překonat pomocí konvenčních urychlovačů částic, kdy se pevný terč obsahující jeden z materiálů bombarduje vysokoenergetickými jádry druhého.

Jelikož se neutrony produkují pouze v jediném reakčním mechanismu, označují se spektra fúzních urychlovačem řízených generátorů jako monoenergetická [42]. Jejich neutronový výtěžek je obvykle poměrně nízký, avšak mezi přednosti zařízení patří malé rozměry, nízké náklady a možnost uplatnění v širokém spektru oborů. [3] Neutronový generátor založený na interakci d + T provozuje například Český metrologický institut (ČMI) jakožto součást sestavy státního etalonu příkonu fluence a příkonu spektrální fluence neutronů; zdroj emituje řádově 10⁹ až 10¹⁰ neutronů za sekundu [43].



Obr. 2.3: Fúzní neutronový generátor typu d + T provozovaný ČMI [43]

Kapitola 3

Možnosti aplikace CANS

Intenzivní neutronová pole představují mimořádně cenný nástroj pro celou řadu oborů již od samotného Chadwickova objevu neutrální částice. Jak ovšem bylo naznačeno na předcházejících stranách, s pozvolným uzavíráním pracovišť výzkumných reaktorů a jejich nedostatečně pružným nahrazováním velkými spalačními generátory přichází určitá degradace infrastruktury neutronových zdrojů. Vyvažuje ji právě rozvíjející se síť kompaktních urychlovači řízených generátorů, které díky své variabilitě nabízejí příležitosti pro plejádu různých odvětví od astrofyziky přes medicínskou terapii až po studium kulturního dědictví [3]. Následující kapitola se soustředí na aplikace, v nichž bude v budoucnu využíváno zrekonstruované spektrum zdrojové reakce p(22) + Be na neutronovém generátoru NG-2 anebo které jsou relevantní pro urychlovačem řízené zdroje neutronů o podobných parametrech.

3.1 Validace jaderných dat

Problematika validace jaderných dat se v současné době dostává do popředí zájmu vědecké komunity díky snaze posunout jadernou energetiku od klasických štěpných reaktorů k fúzním. Zatímco ale při štěpení jader ²³⁵U vzniká spektrum okamžitých neutronů se střední energií přibližně 2 MeV, přičemž typické hodnoty hustoty toku neutronů v reaktorech tlakovodní koncepce se pohybují v řádu 10^{13} cm⁻²s⁻¹ [44], fúzní reaktory založené na slučování jader deuteria a tritia budou pracovat s neutronovým spektrem s píkovou energií zhruba 14 MeV a hustotou neutronového toku řádově až $5 \cdot 10^{14}$ cm⁻²s⁻¹ [36].

Potřeba důkladně prozkoumat neutronové interakce na vysokointenzivních zdrojích je proto evidentní; dodnes standardizovaný rozsah knihoven jaderných dat od 10^{-5} eV do 20 MeV se přitom rozšiřuje až k hranici 200 MeV [45]. Přesná data jsou vyžadována pro předpověď množivé schopnosti tritia, hodnocení efektivity stínění, odhad energie uvolňované v systému a rovněž pro simulace aktivací a radiačního poškození ozařovaných materiálů a komponent. Odtud bude možné odvodit rovněž dávkové příkony na pracovišti v době odstávek či po úplném odstavení reaktoru. Dostupnost vysoce kvalitních jaderných dat proto představuje nutnou podmínku pro spolehlivé výpočty designu zařízení, které ovlivní nejen provozní parametry, nýbrž také licencování, nakládání s radioaktivními odpady a jadernou bezpečnost. [46]

Aktivity evropských pracovišť soustředěné na vývoj jaderných dat pro fúzi jsou od roku 2017 zaštítěny výzkumným programem PPPT (Fyzika a technologie elektráren, *Power Plant Physics and Technology*). Program zahrnuje evaluaci jaderných dat obecného účelu, kam spadají například účinné průřezy veškerých jaderných reakcí neutronů, probíhajících při jejich transportu prostředím za současného zpomalování pomocí pružného rozptylu a uvolňování sekundárních neutronů prostřednictvím dalších nepružných interakcí. Rovněž je třeba popisovat excitační funkce důležitých reakcí produkujících tritium, fotony či plynné atomy vodíku a helia.

Program se dále věnuje benchmarkingu, v rámci kterého je ověřována kvalita evaluovaných jaderných dat, identifikují se potenciální nedostatky a hodnotí se využitelost pro fúzní aplikace; hlavním mechanismem benchmarkingu je přitom porovnávání modelových výpočtů s evaluovanými daty vůči dřívějším kalkulacím a zejména vůči experimentálním výsledkům. Další důležitou oblastí zájmu PPPT jsou výpočty radiačního poškození materiálů indukovaného neutrony; za tímto účelem se vytvářejí speciální knihovny jaderných dat, jež popisují účinné průřezy pro poškození ve smyslu dpa (počet přesunů na jeden atom, *displacement per atom*) jako funkce energie dopadajících neutronů. Zcela zásadní jsou v rámci programu rovněž aktivační jaderná data, nebot excitační funkce pro produkci významných zdrojů záření na materiálech vystavených neutronovému toku představují nezbytnou podmínku, aby mohl být určován radioaktivní inventář budoucího fúzního zařízení. [46]

Kromě obecných aktivit se však část PPPT zaměřuje na experimentální podporu konkrétního projektu, kterým je tzv. IFMIF-DONES, tedy Mezinárodní zařízení pro ozařování fúzních materiálů – Neutronový zdroj orientovaný na DEMOnstrační elektrárnu (International Fusion Materials Irradiation Facility – DEMOnstration Power Plant Oriented Neutron Source).

Jde o projekt neutronového generátoru založeného na bombardování 25 mm silného lithiového terče 125mA svazkem deuteronů urychlených až na energii 40 MeV [36]. Takzvané *stripping* neboli "strhávací" reakce typu ^{6,7}Li(d,*x*n) budou schopny produkovat neutronové pole s maximální energií přibližně 55 MeV a hustotou toku neutronů až $5 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ v testovacím modulu vzorků, umístěném v bezprostřední blízkosti terče [47]. Uspořádání jednotlivých modulů vzhledem k sestavě terče je prezentováno na obrázku 3.1. Hlavním cílem zařízení budou ozařovací testy materiálů v simulovaném fúzním prostředí za účelem stanovení potřebné radiační odolnosti; experimentální činnosti se rovněž budou zaměřovat na tvorbu databáze pro benchmarking odezvy materiálů na ozáření [36].

V rámci PPPT proto probíhá taktéž intenzivní zkoumání účinných průřezů pro reakce indukované deuterony coby projektily zařízení IFMIF-DONES [46].



Obr. 3.1: Uspořádání terčové stanice a jednotlivých testovacích modulů pro projektované zařízení IFMIF-DONES [48]

Obecně tedy problematika jaderných dat souvisí především s měřením excitačních funkcí. Obvykle se pro odpovídající experimenty s výhodou používají kvazimonoenergetické zdroje neutronů; je-li pro stanovení hodnot účinného průřezu využita aktivační metoda, lze naměřené výtěžky reakčních produktů přiřadit k jediné energii iniciačních neutronů s určitou mírou nejistoty, a proměřit tak excitační funkci "po bodech". Vysvětlený postup se uplatňuje kupříkladu při validačních experimentech se zdrojovou reakcí p + Li na neutronovém generátoru NG-2 na domovském pracovišti ÚJF AV ČR [49].

Pro stejný účel je ovšem velmi dobře využitelná i studovaná reakce p(22) + Beprodukující "bílé" spektrum neutronů. Příkladem mohou být měření na spalačním zdroji v Centru neutronových věd v Los Alamos (*Los Alamos Neutron Science Center*, LANSCE), kde byla neutronová pole produkovaná srážením 800MeV protonového svazku s těžkým wolframovým terčem použita ke stanovení průměrovaného účinného průřezu pro produkci kosmogenních nuklidů na SiO₂ a Si. Průměrování v tomto případě odkazuje k integraci přes celé energetické spektrum iniciačních neutronů od 0,1 MeV po 750 MeV [50]. Obor nukleární astrofyziky, kam experiment spadá a který taktéž vyžaduje velmi přesná jaderná data, je přitom v rámci Oddělení jaderných reakcí (OJR) na domovském pracovišti ÚJF AV ČR rovněž rozvíjen [23].

3.2 Neutronová aktivační analýza

Aktivační analýza představuje jednu z metod kvantitativního chemického rozboru; zakládá se na aktivaci jader chemických prvků přítomných ve vyšetřovaných vzorcích. Metoda se typicky využívá v případě, kdy nově vznikají radioaktivní jádra s vhodným poločasem rozpadu, aby po ukončení ozařování mohlo být měřeno záření emitované během jejich následných přeměn. Aplikovat ji lze ovšem i za méně častého předpokladu, že produkovaná jádra jsou stabilní nebo z jiného důvodu nevhodná pro zpožděné měření, zato však uvolňují vhodné záření již v průběhu aktivace. [51]

Vzorky lze aktivovat pomocí bombardování nabitými i elektricky neutrálními částicemi; s ohledem na dostupnost svazků s dostatečnou intenzitou a účinné průřezy pro aktivační reakce se přitom nejčastěji využívají tepelné neutrony. Metoda je široce známa pod zkratkou NAA z anglického názvu *neutron activation analysis*; její základy přitom položili již György Hevesy a Hilde Levi roku 1936 při zkoumání radiační odezvy vzácných zemských prvků na neutronové bombardování [52]. Dnes se neutronová aktivační analýza využívá pro studium vzorků v celé řadě odvětví od environmentálních studií přes archeologii až po forenzní vědy. V závislosti na požadované citlivosti se pak metoda používá v radiochemické podobě s úplnou nebo částečnou separací prvků obsažených ve zkoumaném exempláři (RNAA) nebo v podobě čistě instrumentální, mezi jejíž zásadní výhody patří nedestruktivnost, a tedy aplikovatelnost na vzácné vzorky, možnost víceprvkové analýzy v jediném měření či bezproblémová automatizace (INAA). [51]

Tepelné neutrony coby bombardující částice v aktivační analýze ovšem trpí i některými nedostatky. Protože totiž metoda spoléhá především na produkci radionuklidů prostřednictvím radiačního záchytu, není ve své standardní *off-line* podobě schopna zachytit prvky, jejichž žádný izotop se v reakcích typu (n,γ) nestává radioaktivním. Typickým příkladem může být kyslík. [53] Již v roce 1956 proto Stanley Turner představil myšlenku využívat pro NAA nejen tepelné reaktorové zdroje, nýbrž také urychlovačem řízené neutronové generátory, z nichž pro svůj výzkum zvolil fúzní zdroj deuterium-tritium [54]. Položil tak základy tzv. 14MeV neutronové aktivační analýzy, která dnes představuje nejdůkladněji prozkoumanou součást oboru NAA rychlými neutrony, označované zkratkou FNAA.

Metoda namísto radiačního záchytu nejčastěji využívá interakce typu (n,2n), (n,p) a (n, α). Jelikož se však jejich účinné průřezy například pro neutrony s energiemi v oblasti 14 MeV pohybují pouze v oblasti zlomků až nižších stovek milibarnů, FNAA má oproti klasické reaktorové NAA řádově nižší citlivost, kterou je třeba kompenzovat hustotou neutronového toku alespoň v řádu 10¹¹ cm⁻²s⁻¹ [55]. Zároveň mají vznikající radionuklidy studované v rámci FNAA často velmi krátké poločasy rozpadu, což klade značné nároky na konstrukci potrubní pošty mezi místy ozařování a měření, nebot kupříkladu produkt zmiňované interakce ${}^{16}O(n,p){}^{16}N$ se přeměňuje s poločasem pouhých 7,13 s [56]. Pro snížení detekčních limitů může být neutronová aktivační analýza rychlými neutrony aplikována cyklicky například v kombinaci s pulzním neutronovým zdrojem.

V zájmu obecného zvýšení přesnosti zejména kvantitativního měření se pak FNAA obvykle neprovádí absolutně, kdy je ke stanovení množství daného prvku ve vzorku zapotřebí dobře znát spektrální hustotu toku neutronů stejně jako excitační funkce pro produkci radionuklidů, na základě kterých se prvek identifikuje. Namísto toho se zpravidla provádí dvojice ozařování, jednou se samotným studovaným exemplářem a monitorem neutronového toku ve formě aktivačního detektoru a podruhé s kombinací monitoru a standardu, jenž obsahuje známé množství prvku, jehož koncentrace ve vzorku se právě zkoumá. Jak ovšem ilustruje obrázek 3.2, při vhodných geometrických podmínkách lze vzorek i standard ozářit při jediném měření. Obsah kýženého prvku v exempláři se pak určuje tzv. relativní porovnávací metodou.



Obr. 3.2: Standard a prověřované fragmenty meteoritů, připravené pro ozáření v neutronovém poli zdrojové reakce p(35) + Be za účelem zjištění obsahu kobaltu porovnávací metodou FNAA [57]

Neposlední obtíž spojená s využitím rychlých namísto tepelných neutronů může spočívat ve skutečnosti, že vyšší energie projektilu otevírá více možných reakčních kanálů, a proto je při FNAA například častější produkce jediného radionuklidu prostřednictvím více různých interakcí na několika odlišných prvcích či izotopech. [55]

Navzdory dílčím nevýhodám se však v současné době neutronová aktivační analýza rychlými neutrony stává novým vědeckým trendem; na rozdíl od analytických metod využívajících rentgenové záření či nabité částice, jejichž praktický význam je limitován na povrch či pouze tenkou vrstvu zkoumaných vzorků, totiž neutrony umožňují analyzovat prvkové složení celého objemu studovaného expempláře. Dobrým příkladem může být určování obsahu fluoru pomocí reakce ¹⁹F(n,2n)¹⁸F v neutronovém poli zdrojové reakce p(19) + Be na generátoru neutronů NG-2 na pracovišti cyklotronu U-120M [58]. Jiné experimenty se zaměřily například na stanovení obsahu kyslíku, dusíku a křemíku ve fosilních palivech pomocí 14MeV neutronů [59], analýzu hlavních biogenních prvků *in vivo* v těle myši s využitím ³He + Be zdrojové reakce [60] nebo na vyhledávání výbušnin obsahujících O a N pomocí přenosných d + T generátorů [61].

3.3 Testování radiační odolnosti mikroelektroniky

Urychlovačem řízené neutronové generátory dokáží simulovat rovněž spektra sekundárních neutronů vznikajících při interakcích kosmického záření v horních vrstvách atmosféry [62]. Přirozené neutronové záření je poměrně slabé, díky čemuž nepředstavuje téměř žádné zdravotní riziko, avšak s nebezpečím je spojen průchod neutronů zejména polovodičovou elektronikou. Zasáhne-li totiž neutron například jádro křemíku, může nastat celá řada interakcí, z nichž rozptylové vedou k vytvoření intenzivní lokální ionizační dráhy vzniklé při zastavování odraženého jádra, zatímco absorpční reakce mohou způsobit tvorbu složeného jádra s následnou emisí nukleonů při opětovném dosahování stability. Pokud vznikající ionizující částice vytvoří v citlivé oblasti zařízení kritický počet elektron-děrových párů, vytvoří se takzvaný *signle-event upset* neboli SEU, tedy místní narušení způsobené jedinou neutronovou interakcí. Je-li poškození hardwaru dočasné, označuje se jako *soft error*, zatímco trvalá ztráta funkčnosti je definována pod pojmem *hard error*. [63]

Předmětem výzkumného úsilí je obvykle četnost vratných chyb čili SER; hodnota uvedené veličiny představuje zásadní faktor pro fungování integrovaných obvodů či pamětových čipů na medicínských pracovištích, v páteřních komunikačních a informačních sítích a v silniční, železniční i letecké dopravě [62]. Riziko spojené se *single-event upset* demonstruje případ letu Qantas č. 72 na stroji typu Airbus A330-303 ze 7. dubna 2008, kdy selhání jednotky letových dat způsobené pravděpodobně SEU vedlo k chybné indikaci překročení limitu pro úhel náběhu, na kterou primární letový počítač nesprávně zareagoval prudkým sklopením nosu letounu směrem k zemi. Síly vyvolané náhlým zásahem do řízení vymrštily téměř všechny nepřipoutané pasažéry ke stropu letadla, a přestože se pilotům podařilo úspěšně nouzově přistát, téměř 120 cestujících a členů posádky utrpělo zranění. Událost poukázala na význam odolnosti elektroniky pro letectví vůči účinkům kosmického záření. [64]

Ve výšce 11,9 km nad zemským povrchem dosahuje hustota toku neutronů hodnoty $3,4 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$; spektrometrické měření pomocí Bonnerových sfér pak prokázalo, že v diferenciálním spektru neutronů násobeném energií se objevují dva výrazné píky, z nichž jeden je tzv. evaporační na energii přibližně mezi 1 MeV a 2 MeV, zatímco druhý, menší pík se zvedá na energii zhruba 100 MeV s doběhem řádově až 10 GeV [65]. Za neutrony o nejvyšší energii nad 1 GeV jsou zodpovědné hadronové vzdušné "spršky" vznikající v důsledku interakcí s výměnou náboje mezi jádry kosmického a atmosférického původu. Při přímých srážkách protonů a helionů z kosmického záření s jádry atmosférických prvků pak nukleony vstupují do procesu takzvané intranukleární kaskády, v průběhu nějž jádro emituje různé částice včetně neutronů, které typicky odnášejí energie mezi 10 MeV a 100 MeV; zde je původ výše položeného píku. Neutrony tvořící níže situovaný pík jsou uvolňovány v průběhu tzv. vypařování či evaporace, která následuje po intranukleární kaskádě, když se výsledné excitované jádro zbavuje energie emisí hadronů a fotonů. [66] Analytickou funkci pro popis základního spektra neutronů v 18 výškových hladinách nižších než 20 km, navrhli T. Sato a K. Niita. [67]



Obr. 3.3: Grafická prezentace analytické funkce pro popis základního energetického spektra kosmických neutronů, navrhnuté T. Satem a K. Niitou [67]

V současné době existují pracoviště urychlovačem řízených generátorů, která usilují o co největší přiblížení k přirozenému spektru neutronů. Jejich příkladem může být laboratoř ICE (Ozařování čipů a elektroniky, *Irradiation of Chips and Electronics*) v LANSCE, kde se vhodný tvar neutronového spektra produkuje spalačními reakcemi až 800MeV protonů na wolframovém terči pod úhlem 30° [63]. Obecně však konkrétní tvar spektra požadován není; neutronový zdroj pouze musí být schopen vytvářet pole neutronů s energií alespoň 5 MeV, která se při testech *soft errors* považuje za efektivní prahovou hodnotu [62], a zároveň se hodnotí jeho intenzita, neboť vysokointenzivní zdroje jsou schopny i velmi krátkým ozařováním simulovat stovky let provozu elektronického zařízení v reálném prostředí [68]. Směrodatným údajem je pak často takzvaná ekvivalentní fluence monoenergetických 1MeV neutronů neboli informace, s jakou fluencí by musely neutrony o energii přesně 1 MeV zasahovat zkoumaný vzorek, aby v něm způsobily stejné poškození ozářením jako neutrony s reálným energetickým spektrem konkrétního použitého zdroje. [69]

Pro ověřování radiační odolnosti mikroelektroniky se tak často využívá například reakce typu d + Be, přičemž s energiemi deuteronů 20 MeV a 35 MeV pracuje laboratoř LBNL čili *Lawrence Berkeley National Laboratory* [70], zatímco až 50MeV deuterony s beryliem sráží cyklotronové pracoviště UCL, tj. *Université Catholique de Louvain* [71]. Na zdroji NG-2 výzkum probíhá převážně s protonovými svazky, přičemž historicky se pro simulaci radiačního prostředí využily všechny typy dostupných terčových stanic, tedy jak těžkovodní [72], tak lithiová [73] a beryliová [74]. V kvazimonoenergetických i "bílých" neutronových spektrech byly ozařovány zejména polovodičové součásti pro detekční aparatury navrhované pro budoucí experimenty vysokoenergetické jaderné fyziky. Vyzdvihnout lze kupříkladu výzkumnou aktivitu CBM@FAIR, zaměřenou na zkoumání stlačené baryonové hmoty v plánovaném Zařízení pro výzkum antiprotonů a iontů [75], dále experiment NA61@CERN s těžkými ionty a neutriny na protonovém supersynchrotronu v rámci Evropské organizace pro jaderný výzkum [76], a rovněž projekt BM@N, tedy studium baryonové hmoty na nuklotronu v ruském Spojeném ústavu pro jaderný výzkum (SÚJV) [77].

3.4 Materiálový výzkum

S poruchami elektroniky, způsobenými náhodnými neutronovými interakcemi, úzce souvisí obecnější problematika radiačního poškození materiálů tokem rychlých neutronů. Na rozdíl od SEU se však nyní jako dominantní mechanismus obvykle nehodnotí poruchy spojené s ionizačními procesy, nýbrž změny krystalické struktury látky, způsobené vyrážením jednotlivých atomů z jejich rovnovážných pozicí. Jádra ozařované látky jsou totiž zasahována vysokoenergetickými neutrony, které jim dokáží předávat energii mnohem vyšší, než je jejich vazebná energie v krystalické mřížce; první atom zasažený a vyražený částicí ionizujícího záření je přitom označován jako *primary knock-on atom* čili PKA. Díky obdržené kinetické energii se ovšem samotné primární jádro stává vysokoenergetickou částicí, která z mřížky vyráží další atomy, a dává tak vzniknout celé kaskádě poruch. Jádra, jež opustila své rovnovážné polohy, se přitom označují jako intersticiály, zatímco jejich nyní prázdné původní pozice mají název vakance. Poruchy krystalické mřížky navíc nemusejí být pouze bodové, nýbrž se mohou shlukovat do klastrů, vytvářejících oblasti s vysokou hustotou intersticiálů či vakancí. [78] Změny mikrostruktury materiálu s ozářením dokumentuje obrázek 3.4.

Ačkoli může docházet ke vzájemné anihilaci poruch, následkem které z kaskády nemusí přetrvat více než 1 % defektů, popsané změny mikrostrukty zpravidla vedou



Obr. 3.4: Mikrostruktura neozářené (a) a ozářené (b) oceli typu EUROFER97 v neutronovém poli rychlého reaktoru BOR 60 do úrovně 15 dpa; klastry jsou viditelné v podobě černých teček vpravo [79]

k zásadním změnám makroskopických vlastností materiálů. Zejména pro kovy je typické radiační zpevnění, křehnutí a porušení. Doplňkovými procesy mohou být dutinové napuchání či *void swelling* a radiační tečení neboli *irradiation creep*. [78]

Rychlost produkce poruch krystalové mřížky závisí na hustotě toku neutronů a jejich energetickém spektru; míra radiačního poškození přitom s oběma faktory roste [78]. Jsou-li poruchy mřížky popsány totálním účinným průřezem pro vytvoření dislokace v závilosti na energii iniciačního neutronu, dochází přibližně nad hranicí 1 MeV ke strmému nárůstu příslušné excitační funkce [80]. Energetické spektrum neutronů může mít rovněž vliv na konkrétní podobu klastrů vytvořených poruch [81]. Z popsaných důvodů nejsou výsledky ozařovacích experimentů materiálů v neutronových polích tepelných reaktorů automaticky přenositelné na energetická spektra reaktorů rychlých či fúzních. Specifickou oblast oboru pak představuje design samotných urychlovačem řízených neutronových zdrojů včetně zařízení IFMIF-DONES [82]; s nimi souvisí i návrh transmutačních reaktorových systémů označovaných jako ADTT [23]. Experimenty popisující materiálové účinky vysokoenergetických neutronů byly proto prováděny například se zdrojovými reakcemi typu d + Be v Lawrencově národní laboratoři v Livermore či d + Li na Univerzitě v Californii [83], avšak na pracovišti neutronových generátorů NG-2 se formování radiačních defektů v kovech s krystalickou mřížkou typu *bcc* zkoumalo i s využitím produkční interakce p(35) + Be [84].

3.5 Kalibrace detekčních systémů

Metrologie neutronového záření je neoddělitelně spjata se všemi oblastmi jeho využívání. Speciální význam se přitom přikládá kalibraci neutronových detektorů, spektrometrů i prostředků radiační ochrany. V současné době se při kalibračních měřeních přednostně používají monoenergetická či kvazimonoenergetická pole neutronů specifikovaná normou ISO 8529. Mezi mechanismy produkce neutronů dominují reakce urychlených těžkých nabitých částic, obvykle v podobě protonů či deuteronů, na terčových materiálech s nízkými protonovými čísly, jako jsou například ⁷Li, D a T. [42] Jmenované interakce slouží jako produkční mechanismy referenčních monoenergetických polí neutronů s energiemi mezi 24 keV a 19 MeV na pracovišti PTB v Braunschweigu [85].

Referenční neutronové pole je definováno jako trvalé a reprodukovatelné pole záření, které je dobře charakterizováno ve smyslu hustoty toku neutronů, jejich energetického spektra a prostorového i úhlového rozložení toku a jež je jako referenční uznáváno komunitou svých uživatelů [86]. K důležitým charakteristikám monoenergetických referenčních polí neutronů patří rovněž šířka píku, která závisí pouze na emisním úhlu a tlouštce terče, avšak v důsledku nezamýšlených interakcí neutronů s hmotou se snadno narušuje. Prioritou je omezení možnosti odrazu neutronů od stěn; experimentální hala PTB se proto požadavkům přizpůsobuje jednak velkými rozměry, jednak umístěním neutronového generátoru nad rozlehlou dutou šachtu. Tok produkovaných neutronů se určuje pomocí detektorů využívajících princip odražených protonů, neboť účinný průřez pro pružný rozptyl neutronu na protonu je primárním standardem metrologie příslušné veličiny, což zajišťuje potřebnou metrologickou návaznost [43]. Ke stanovení energetického spektra neutronů se pak využívá technika doby letu, v důsledku čehož musejí být generátory schopné provozu v pulzním režimu [35].



Obr. 3.5: Nízkorozptylová experimentální hala PTB Braunschweig; terč produkující neutrony je instalován na konci ionto-optické trasy nad šachtou v podlaze [35]

Kromě monoenergetických referenčních polí však pro kalibraci mohou být využita také standardní pole neutronů s "bílým" energetickým spektrem. Jako příklad lze uvést experiment týmu A. Öhrna, jenž se pokusil oba přístupy porovnat při kalibraci organického scintilačního spektrometru typu BC501 s přibližným sumárním vzorcem $C_1H_{1,287}$ [87], který ke konverzi neutronového záření na světelný signál využívá rovněž odražené protony. Ke stanovení energetického spektra neutronů je ovšem zapotřebí umět detailně popsat specifickou světelenou odezvu použitého detektoru jak na protony, tak na deuterony a α částice, vznikající v různých dalších procesech především na uhlíku; tedy spektrometr zkalibrovat. Pro energie neutronů nižší než 8 MeV lze popsané jevy dostatečně přesně simulovat metodou Monte Carlo, avšak pro rozsáhlejší energetická spektra je nutno realizovat experimentální měření. Během standardní procedury pracoviště PTB založené na technice TOF je zapotřebí proměřit spektrum energií neutronů několika monoenergetických polí a ke stanovení odezvové matice využít Monte Carlo kód, zatímco alternativní přístup využívající *unfolding* amplitudového spektra zaznamenaného detektorem vyžaduje pouze jediné měření spektrálního toku neutronů, produkovaných například ve zdrojové reakci p(19) + Be, a simulace Monte Carlo je zapotřebí pouze za účelem jeho normalizace. [88]

Trojici "bílých" spekter neutronů, vznikajících interakcemi protonů na tlustém beryliovém terči a studovaných kolektivem H. J. Bredeho právě na pracovišti PTB, zachycuje graf 3.6.



Obr. 3.6: Neutronová spektra zdrojových reakcí typu p + Be měřená pomocí techniky *time-of-flight* týmem H. J. Bredeho na pracovišti PTB Braunschweig [89]

3.6 Další způsoby využití

Hlavními argumenty pro studium energetického spektra neutronů ze zdrojové reakce p(22) + Be vrámci bakalářské práce [1] a výzkumného úkolu [2] byly aplikace

podrobně popsané v sekcích 3.1 až 3.5. Neutronová pole produkovaná interakcemi urychlených protonů na tlustých beryliových terčích se ovšem uplatňují také v řadě dalších oborů.

Jedním z příkladů může být produkce izotopů včetně ^{99m}Tc, široce využívaného pro zobrazování v rámci nukleární medicíny. Vzhledem ke krátkému poločasu rozpadu, který činí pouhých 6,01 h [56], se ^{99m}Tc obvykle získává β^- přeměnou radionuklidu ⁹⁹Mo, rozpadajícího se s výrazně delším poločasem 65,94 h [56]; tento se přitom konvenčně připravuje pomocí štěpení jader ²³⁵U. Urychlovačem řízené zdroje rychlých neutronů představují alternativu například ve smyslu produkčního schématu ¹⁰⁰Mo(n,2n)⁹⁹Mo [3]. Na cyklotronovém pracovišti ÚJF AV ČR však byly dosud zkoumány pouze dílčí aspekty přímé reakce ¹⁰⁰Mo(p,2n)^{99m}Tc [90].

Jiný příklad z medicínského prostředí reprezentuje bórová neutronová záchytová terapie známá pod zkratkou BNCT. Její základní princip spočívá v dopravení vhodného nosiče bóru do nádorové tkáně, která se následně vystaví poli tepelných neutronů, generovaných malým jaderným reaktorem či vhodným urvchlovačem řízeným systémem. Bórový izotop ¹⁰B má velmi vysoký účinný průřez pro absorpci tepelného neutronu, což vede na interakci typu ${}^{10}B(n,\alpha)^7Li$, při níž jsou produkovány dvě těžké nabité částice. Jejich nízký dolet a zároveň velmi silné ionizační účinky pak v ideálním případě způsobí deaktivaci dané maligní buňky prostřednictvím přímého poškození DNA. Výhodnější je ovšem často použití epitermálního neutronového pole, neboť rychlé neutrony mají na zdravou tkáň pouze zanedbatelný efekt a průchodem k nádoru dopovanému bórem se účinně termalizují. Proto se v oboru BNCT uplatňují urvchlovačem řízené zdroje založené mimo jiné na interakci p + Be, přičemž svazky protonů poskytuje obvykle lineární protonový urychlovač a odpovídající neutronová pole mají energetická rozpětí zhruba do 8 MeV. Použití zdrojové reakce je tak podmíněno doplněním vhodné sestavy pro tvarování svazku neboli beam shaping assembly (BSA). [3] V České republice ovšem dosud proběhlo pouze testování BNCT na výzkumném reaktoru LVR-15 [91].

V neposlední řadě je vhodné zmínit aplikaci urychlovačem generovaných polí rychlých neutronů pro neaktivační analytické techniky. K nim patří jednak neutronová radiografie a počítačová tomografie, což jsou metody založené na prozařování zkoumaného vzorku širokým svazkem neutronů, přičemž po změření intenzity prošlých částic lze s jejich pomocí rekonstruovat 2D či 3D obraz vnitřní struktury exempláře. Na úrovni atomů a molekul je pak vzorky možné zkoumat s využitím neutronové difrakce. [3] Ani takzvané (n,n) techniky ovšem nebyly dosud v Česku aplikovány jinak než s použitím reaktorových zdrojů neutronů [92].

Část II

Experiment

Kapitola 4

Dosavadní experimentální pokrok

Experimentální část práce, obsahující nové výsledky, bude uvedena shrnutím již dokončených úkolů. Účinnostní kalibrace HPGe spektrometru, samotný aktivační experiment se zdrojovou reakcí p(22) + Be a γ spektrometrická analýza prvních šesti Al, In a Au dozimetrimetrických fólií byla provedena již v rámci bakalářské práce. Výzkumný úkol pokrývá vyhodnocení naměřených dat pro dalších 14 aktivačních detektorů z hliníku, zlata, india, niobu, yttria, kobaltu a niklu a věnuje se rovněž zkoumání prostorového vývoje neutronového pole. Veškeré dosud získané znalosti přitom sehrají zásadní roli při analýze zbývajících osmi Lu, Cu, Fe a Ti ozářených vzorků a především při finální rekonstrukci energetického spektra produkovaných neutronů, jimiž se budou postupně zabývat kapitoly 5 a 6.

4.1 Pracoviště generátoru neutronů NG-2

Srdcem neutronových generátorů provozovaných Oddělením jaderných reakcí je izochronní cyklotron U-120M ve správě Oddělení urychlovačů ÚJF AV ČR. Zařízení bylo projektováno v ruském SÚJV Dubna a do provozu jej pracovníci ÚJF uvedli roku 1977. Cyklotron prošel řadou významných modernizací, z nichž nejvýznamnější byla jeho konverze z původního urychlovače výhradně kladných iontů na urychlovač iontů záporných, díky čemuž se podařilo zvýšit proud svazků vyváděných částic o řád. [23] Kromě protonů a deuteronů, respektive iontů H⁻ a D⁻ poskytuje cyklotron U-120M rovněž svazky urychlených helionů a α částic, přičemž v závislosti na typu částice jej lze přeladit v širokém rozsahu energií od 1 MeV do 50 MeV a proud urychlených iontů může být upravován v řádu jednotek až desítek µA. [26]

Popsané parametry představují dobré předpoklady pro využívání v širokém okruhu experimentů pro základní i aplikovaný výzkum. Typická uplatnění poskytovaných částicových svazků zahrnují oblast jaderné astrofyziky, měření excitačních funkcí a výtěžků reakcí indukovaných kladnými ionty a rovněž produkci radionuklidů. Cyklotron umožňuje jak výrobu medicínsky relevantních zářičů, tak produkci mnoha kalibračních radionuklidů či stopovačů, přičemž ve spolupráci s Oddělením radiofarmak byla pro podobné účely vyvinuta řada pevných, kapalných i plynných terčů. Speciální terčové systémy pak dávají urychlovači U-120M možnost stát se rovněž unikátním intenzivním zdrojem rychlých neutronů. [23]

První neutronové generátory, označované jako NG-1, byly na pracovišti ÚJF konstruovány již před uzpůsobením cyklotronu pro záporný mód urychlování; svazky protonů a deuteronů se vyváděly do terčových stanic po hlavní ionto-optické trase do sousední experimentální haly. Po dokončení modernizace roku 1996 se ovšem dařilo dosahovat vyšších charakteristik produkovaných neutronů na nově vybudované trase přímo v hale cyklotronu. Změna pozice terče a vylepšení parametrů generátorů se indikuje obnovenou zkratkou NG-2 a v současné době se již experimenty provádějí téměř výhradně na nich. [26]



Obr. 4.1: Pozice neutronových generátorů NG-1 a NG-2 na pracovišti ÚJF AV ČR [26]

Oddělení jaderných reakcí aktuálně provozuje dvojici terčových systémů NG-2 se zdrojovými reakcemi protonů či deuteronů s lithiem nebo beryliem. Použití protonů coby projektilů a tenkého lithiového terče s uhlíkovým zhášečem svazku vede na kvazimonoenergetické neutronové spektrum s maximální hustotou toku neutronů $10^9 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$; tlustý beryliový terč umožňuje produkovat spojité spektrum energií s nejvyšší dosažitelnou hustotou neutronového toku $10^{11} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ [23]. Dosud se týmu M. Štefánika podařilo na pracovišti ÚJF pomocí aktivační techniky dozimetrickými fóliemi prozkoumat pole neutronů vytvářených zdrojovými reakcemi p(20) + Be [93], p(24) + Be [94], p(30) + Be [95] a p(35) + Be [96]. Předkládaná diplomová práce zabývající se interakcí typu p(22) + Be doplní analýzu pátého spektra.

4.2 Aktivační experiment

Za účelem provedení ozařovacího experimentu se zdrojovou reakcí p(22) + Be byl izochronní cyklotron U-120M zapojen do soustavy s beryliovou terčovou stanicí, která slouží k přivedení svazku nabitých částic na statický beryliový válec o průměru 50 mm a tlouštce 8 mm [96]. Protože v terči dochází k úplnému zabrzdění dopadajícího svazku a generuje se v něm tepelný výkon až do 400 W, je stanice opatřena ethanolovým chladicím systémem, jenž za provozu udržuje terč na teplotě 5 °C. Průtok chladicího média stejně jako proud nabitých částic na terči a dvou uhlíkových kolimátorech podléhá online monitorování. [94]



Obr. 4.2: Beryliová terčová stanice generátoru rychlých neutronů NG-2 [1]

Paralelně s revizí beryliového disku, energetickým a geometrickým nastavováním protonového svazku a montáží Be terčové stanice do jeho osy probíhala v den aktivačního experimentu rovněž příprava dozimetrických fólií. Z jedenácti aktivačních materiálů, totiž z niklu, kobaltu, zlata, india, titanu, hliníku, yttria, lutecia, železa, niobu a mědi, byly sestaveny celkem čtyři sety. Úplné sady S1 a S4, určené pro ozáření v nejbližší (P0) a nejvzdálenější (P14) geometrii vůči čelu terčové stanice, měly zabezpečit data pro kompletní rekonstrukci neutronového spektra ve vzdálenosti 14 mm a 154 mm od beryliového terče; naopak sety S2 a S3 obsahovaly pouze po jedné zlaté, indiové a hliníkové fólii a sloužily k mapování podélného vývoje pole neutronů v polohách P2 (34 mm) a P6 (74 mm). Všechny zkompletované sady byly po zvážení jednotlivých detektorů postupně zataveny do tenkých polyethylenových obalů, umístěny na nosiče a v definovaných vzdálenostech zdroj-vzorek uchyceny na speciální hliníkový držák, jenž se následně připevnil k hlavě již usazené terčové stanice.

Samotný aktivační experiment v popsané konfiguraci probíhal po dobu více než dvanácti hodin na přelomu 12. a 13. 3. 2021. Energie urychlených protonů měla na počátku ozařování v 17:35 velikost $E_{\rm p}^{\rm start} = 22,185 \,{\rm MeV}$; v době jeho ukončení

v 5:46 následujícího dne byla stejná veličina změřena s výsledkem $E_{\rm p}^{\rm stop} = 22,160 \,{\rm MeV}.$ Průměrný proud protonů na terči přitom dosáhl hodnoty $I = 11,66 \,{\mu}A.$



Obr. 4.3: Jednotlivé sady dozimetrických fólií určených k ozáření v neutronovém poli zdrojové reakce p(22) + Be [1]

4.3 Gama spektrometrie aktivačních detektorů

Ještě než se přikročilo k cyklickému γ spektrometrickému proměřování aktivovaných vzorků, bylo nutné po skončení ozařování přibližně jednu hodinu vyčkat, aby dávkové příkony o velikosti až několika mSv/h na povrchu dozimetrických fólií poklesly na úroveň přijatelnou z hlediska radiační ochrany pracovníků. Poté byla zahájena několik týdnů dlouhá fáze experimentu, kdy se na HPGe γ spektrometru Canberra, situovaném v měřicí laboratoři OJR, opakovaně nabírala gama spektra rozpečetěných sad aktivačních detektorů. Pořadí jednotlivých měření bylo pečlivě optimalizováno s ohledem na aktivitu konkrétní fólie a poločasy rozpadu radionuklidů, jejichž produkci v ní bylo možno očekávat. Jmenované dva faktory rovněž ovlivňovaly potřebnou dobu sběru dat z detektoru, přičemž nejkratší měření trvala přibližně deset minut a nejdelší se pohybovala již v řádu dnů. Počet cyklů proměřování každého detektoru se dle nutnosti měnil mezi šesti a osmi. Výsledkem bylo téměř 200 získaných gama spekter dozimetrických fólií, jejichž vyhodnocování se stalo náplní všech tří akademických prací, kterých je předložená diplomová práce vyvrcholením.

4.3.1 Účinnostní kalibrace HPGe spektrometru

Polovodičový detektor ze superčistého germania, jenž je součástí gama spektrometrického systému Canberra provozovaného OJR, má válcový tvar s poloměrem 65,5 mm a výškou 65 mm. Krystal je zapuštěn 6 mm hluboko pod uhlíkovým vstupním okénkem a za provozu se nachází v horizontální poloze, přičemž na čele detektoru je upevněn držák vzorků definující přípustné vzorek-detektorové vzdálenosti. Ovládání spektrometrické trasy zajišťuje obslužný software Genie-2000. [97]

Nutnou podmínkou pro řádnou analýzu dat naměřených představeným γ spektrometrem byla znalost jeho absolutní píkové detekční účinnosti, tj. bezrozměrné veličiny definované jako

 $\varepsilon_{\rm FEP}^{\gamma}(E_{\gamma}) = \frac{\text{počet pulzů zaznamenaných v píku plné absorpce o dané energii}}{\text{celkový počet fotonů emitovaných radionuklidem v etalonu}}.$ (4.1)

Průběh $\varepsilon_{\text{FEP}}^{\gamma}(E_{\gamma})$ závisí jak na vlastnostech trasy, tak na geometrii měření a energii fotonů dopadajících na krystal detektoru. V případě spektrometru v laboratoři OJR se účinnostní kalibrace realizovala v několikatýdenním předstihu oproti samotným měřením, přičemž se prozkoumala jeho odezva na osm různých kalibračních zářičů obsahujících radionuklidy ⁵⁴Mn, ⁵⁷Co, ⁶⁰Co, ⁸⁸Y, ¹³³Ba, ¹³⁷Cs, ¹⁵²Eu a ²⁴¹Am, umisťovaných postupně do vzorek-detektorových vzdáleností 5 cm (p5), 8 cm (p8) a 30 cm (p20), zamýšlených pro využití při hlavním aktivačním experimentu.



Obr. 4.4: HPGe γ spektrometr Canberra s kalibračním zářičem umístěným na pozici p8 [1]

Samotné kalibrační křivky, tj. závislosti $\varepsilon_{\text{FEP}}^{\gamma}(E_{\gamma})$, se získaly fitováním polynomu

$$\varepsilon_{\text{FEP}}^{\gamma}(E_{\gamma}) = \exp\left(\sum_{k=0}^{n} a_{k} (\ln(E_{\gamma}))^{k}\right)$$
(4.2)

s koeficienty a_k na experimentální body $[E_{\gamma}; \varepsilon_{\text{FEP}}^{\gamma}(E_{\gamma})]$ včetně nejistot pomocí software effekt32, přičemž optimální tvar křivek se zajistil vhodnou volnou stupně polynomu *n*. Graf 4.5 srovnává výsledné kalibrační křivky pro všechny tři vybrané vzorek-detektorové vzdálenosti; s ohledem na energie gama linek použitých kalibračních zářičů byly průběhy závislostí $\varepsilon_{\text{FEP}}^{\gamma}(E_{\gamma})$ optimalizovány pro pracovní oblast přibližně mezi 70 keV a 2,5 MeV.



Obr. 4.5: Výsledné kalibrační křivky pro měřicí geometrie p5, p8 a p20 [1]

4.3.2 Reakční rychlosti

Nejdůležitější průběžné výsledky bakalářské práce [1] a výzkumného úkolu [2] představují tabulky reakčních rychlostí na jedno terčové jádro. Na sedmi dosud prozkoumaných materiálech dozimetrických fólií se již podařilo identifikovat celkem 31 aktivačních a prahových interakcí, pro něž bylo až na několik výjimek možné stanovit hodnotu $R_{\rm R}$ nejen v bližší ozařovací geometrii P0, ale rovněž v pozici P14 ležící nejdále od produkčního beryliového terče. Na 140mm vzdálenosti mezi polohami P0 a P14 došlo obvykle k poklesu původní reakční rychlosti na přibližně 2% až 4%.

Hodnoty $R_{\rm R}$ se získávaly pomocí vztahů zavedených v kapitole 1.1 s využitím online nástroje QCalc [98], jenž vychází z evaluované knihovny atomových hmotností AME2020 [99], dále se pracovalo s webovou databází *The Lund/LBNL Nuclear Data Search* [56], využívající datové soubory evaluované jaderné struktury ENSDF [100], a byla použita rovněž online periodická tabulka prvků *WebElements* profesora M. Wintera ze Sheffieldské univerzity [101]. Hmotnostní zeslabovací koeficienty pro samoabsorpční spektrometrické korekce se čerpaly z nástroje *XCOM: Photon Cross Sections Database* [102] založeného na databázi *XGAM* [103]. Při stanovení korekčního faktoru na nerovnoměrnost ozařování se vycházelo především ze záznamu proudu protonů na terči, poskytnutého operátory cyklotronu, a při výpočtech geometrických korekcí byl hlavním zdrojem informací certifikát gama spektrometru, vydaný společností Canberra [97]. Údaje o energii případných metastabilních stavů jader produkovaných radionuklidů se přebíraly z databáze *NuDat* [104], spoléhajícího rovněž na knihovnu ENSDF [100]. Zbylá data potřebná pro γ spektrometrickou analýzu pocházela výhradně z vlastního měření.

Přehled všech doposud obdržených hodnot $R_{\rm R}$ pro interakce proběhnuvší na hliníkových, zlatých, indiových, niobových, yttriových, kobaltových a niklových dozimetrických fóliích poskytuje tabulka 4.1.

Deelree	Pozice P0		Pozice P14	
пеаксе	$R_{ m R}({ m s}^{-1})$	$\sigma_{R_{ m R}}(\%)$	$R_{ m R}({ m s}^{-1})$	$\sigma_{R_{ m R}}(\%)$
$^{27}\mathrm{Al}(\mathrm{n},\alpha)^{24}\mathrm{Na}$	$8,740 \cdot 10^{-16}$	0,4	$2,043 \cdot 10^{-17}$	0,5
$^{197}\mathrm{Au}(\mathrm{n},\gamma)^{198}\mathrm{Au}$	$1,246 \cdot 10^{-14}$	0,2	$3,668 \cdot 10^{-16}$	0,2
$^{197}Au(n,p)^{197}Pt$	$1,910 \cdot 10^{-15}$	1,3	$5,720 \cdot 10^{-17}$	1,3
$^{197}Au(n,2n)^{196}Au$	$1,360 \cdot 10^{-14}$	0,3	$3,430 \cdot 10^{-16}$	0,3
$^{197}Au(n,2n)^{196m2}Au$	$8,200 \cdot 10^{-16}$	0,8	$2,230 \cdot 10^{-17}$	0,7
$^{197}Au(n,3n)^{195}Au$	$9,300 \cdot 10^{-16}$	1,8	$2,300 \cdot 10^{-17}$	36,2
$^{115}\mathrm{In}(\mathrm{n},\gamma)^{116\mathrm{m}}\mathrm{In}$	$9,270 \cdot 10^{-15}$	1,0	$3,000 \cdot 10^{-16}$	0,6
$^{115}In(n,n')^{115m}In$	$7,470 \cdot 10^{-15}$	0,2	$1,\!615{\cdot}10^{-16}$	0,2
$^{115}In(n,p)^{115}Cd$	$2,800 \cdot 10^{-17}$	0,7	$8,200 \cdot 10^{-19}$	3,0
113 In(n,3n) ¹¹¹ In	$1,900 \cdot 10^{-18}$	2,4	$7,800 \cdot 10^{-20}$	7,1
$^{\rm nat}{\rm In}({\rm n,x})^{114{\rm m}}{\rm In}$	$8,050 \cdot 10^{-15}$	0,1	$2,120 \cdot 10^{-16}$	0,4
$^{\rm nat}In(n,x)^{113m}In$	$3,060 \cdot 10^{-16}$	1,1	$6,450 \cdot 10^{-18}$	1,2
$^{\rm nat}In(n,x)^{112}Ag$	$1,700 \cdot 10^{-17}$	5,8	$4,900 \cdot 10^{-19}$	7,4
$^{93}\mathrm{Nb}(\mathrm{n},\alpha)^{90\mathrm{m}}\mathrm{Y}$	$3,390 \cdot 10^{-17}$	1,6	$9,260 \cdot 10^{-19}$	0,9
93 Nb(n,2n) 92m Nb	$2,541 \cdot 10^{-15}$	0,1	$6,950\cdot 10^{-17}$	0,2
$^{89}\mathrm{Y}(\mathrm{n},\gamma)^{90\mathrm{m}}\mathrm{Y}$	$1,630 \cdot 10^{-17}$	1,9	$3,550\cdot 10^{-19}$	2,1
$^{89}Y(n,2n)^{88}Y$	$4,203 \cdot 10^{-15}$	0,2	$1,261 \cdot 10^{-16}$	0,3
$^{59}\mathrm{Co}(\mathrm{n},\gamma)^{60}\mathrm{Co}$	$1,935 \cdot 10^{-15}$	0,2	$6,250 \cdot 10^{-17}$	0,7
$^{59}\mathrm{Co}(\mathrm{n},\alpha)^{56}\mathrm{Mn}$	$2,126 \cdot 10^{-16}$	0,4	$4,950 \cdot 10^{-18}$	0,5
59 Co(n,p) 59 Fe	$5,090 \cdot 10^{-16}$	0,4	$1,150\cdot 10^{-17}$	0,6
${ m ^{59}Co(n,2n)^{58}Co}$	$1,300 \cdot 10^{-15}$	8,2	$2,800 \cdot 10^{-17}$	8,4
${}^{59}\text{Co}(n,2n){}^{58m}\text{Co}$	$2,500 \cdot 10^{-15}$	4,5	$7,300 \cdot 10^{-17}$	3,9

Tab. 4.1: Reakční rychlosti pro veškeré neutronové interakce identifikované v rámci bakalářské práce a výzkumného úkolu [1, 2]

$^{59}Co(n,3n)^{57}Co$	$4,400 \cdot 10^{-18}$	10,1	_	_
$^{58}Ni(n,x)^{56}Co$	$6,000 \cdot 10^{-19}$	2,6	_	_
$^{nat}Ni(n,x)^{58}Co$	$4,200 \cdot 10^{-15}$	$_{3,0}$	$8,500 \cdot 10^{-17}$	$5,\!8$
$^{nat}Ni(n,x)^{58m}Co$	$2,750 \cdot 10^{-15}$	2,4	$5,300 \cdot 10^{-17}$	4,6
$^{\rm nat}Ni(n,x)^{60}Co$	$3,609 \cdot 10^{-16}$	0,2	$9,400 \cdot 10^{-18}$	$_{3,0}$
58 Ni(n, α) 54 Mn	$2,240 \cdot 10^{-17}$	0,7	$6,300 \cdot 10^{-19}$	$_{9,3}$
$^{nat}Ni(n,x)^{59}Fe$	$4,890 \cdot 10^{-18}$	1,2	$1,300\cdot 10^{-19}$	13,2
$^{58}{ m Ni}({ m n},{ m 2n})^{57}{ m Ni}$	$1,609 \cdot 10^{-16}$	0,3	$3,720 \cdot 10^{-18}$	0,4
64 Ni $(n,\gamma)^{65}$ Ni	$1,100\cdot 10^{-18}$	20,8	_	_

4.3.3 Prostorový vývoj neutronového pole

V rámci výzkumného úkolu byly k sadě dat prezentovaných v tabulce 4.1 doplněny rovněž hodnoty $R_{\rm R}$ pro 13 reakcí pozorovaných na hliníkových, zlatých a indiových fóliích ze setů S2 a S3. Srovnání výsledků získaných v ozařovacích vzdálenostech 34 mm a 74 mm s oběma krajními polohami umožnilo získat informaci o prostorovém vývoji pole neutronů ve směru osy protonového svazku. Graf 4.6 dává reakční rychlosti pro standardní spektrometrické reakce ¹¹⁵In(n,n')^{115m}In, ¹⁹⁷Au(n,2n)¹⁹⁶Au a ²⁷Al(n, α)²⁴Na do kontrastu s ideálním průběhem zákona 1/ r^2 při normování všech křivek na hodnotu 1 v pozici P14. Odchylky oproti 1/ r^2 lze zejména pro malé ozařovací vzdálenosti vysvětlit nebodovostí geometrie experimentu.



Obr. 4.6: Prostorový vývoj neutronového pole zdrojové reakce p(22) + Be [2]

Kapitola 5

Analýza reakcí proběhlých na Lu, Cu, Fe a Ti

Ještě než mohly být veškeré informace o spektru neutronů produkovaných ve zdrojové reakci p(22) + Be, shrnuté v předešlé kapitole 4, využity k samotné jeho rekonstrukci, bylo nutné dosavadní soubor dat zkompletovat dodáním údajů o reakčních rychlostech pro interakce pozorované na posledních osmi dosud neanalyzovaných dozimetrických fóliích. Šlo o čtveřici detektorových párů zhotovených z lutecia, mědi, železa a titanu; jedna fólie z každé dvojice se přitom ozařovala v pozici P0 nejblíže terči a aktivace druhé probíhala naopak v nejvzdálenější poloze P14. Nejdůležitější parametry osmi zbývajících detektorů včetně jejich experimentálního označení, hmotnosti a rovněž počtu proběhlých cyklů měření prezentuje tabulka 5.1. Hmotnost v průběhu vyhodnocování posloužila nejen jako informace o počtu terčových jader ve fólii, nýbrž i jako parametr určující její tlouštku, neboť použitá kruhová raznice zajistila pro každou fólii jednotný průměr 15 mm. V případě Lu, Cu, Fe a Ti se tloušťky kovových plíšků pohybovaly v blízkosti jedné desetiny milimetru.

Fólie	Sada	Pozice	Počet cyklů měření	$m \ (mg)$
Lu-69	S1	P0	7	224,08
Lu-70	S4	P14	8	232,92
Cu-61	S1	P0	6	143,90
Cu-62	S4	P14	7	144,68
Fe-113	S1	P0	7	179,61
Fe-114	S4	P14	8	178,24
Ti-80	S1	P0	8	99,46
Ti-81	S4	P14	8	107,46

Tab. 5.1: Charakteristiky dozimetrických fólií z lutecia, mědi, železa a titanu

5.1 Lutecium

Jako vzácný měkký kov se lutecium v přírodě vyskytuje převážně ve formě izotopu ¹⁷⁵Lu s atomovým zlomkem 97,41 % při 2,59% příměsi ¹⁷⁶Lu [101]. V gama spektrech dozimetrických fólií Lu-69 a Lu-70 se podařilo identifikovat hned sedm naprodukovaných radionuklidů, a to ¹⁷³Lu, ¹⁷⁴Lu, ¹⁷⁴mLu, ¹⁷⁶Lu, ¹⁷⁶mLu, ¹⁷⁷Lu a ¹⁷⁵Yb, avšak s ohledem na poločas rozpadu, velikost signálu či energie odpovídajících γ linek se pro určování $R_{\rm R}$ ukázaly jako vhodné pouze tři. Důležité charakteristiky interakcí vedoucích na vznik ¹⁷⁵Lu, ¹⁷⁶mLu a ¹⁷⁵Yb obsahuje tabulka 5.2.

Produkt	Možné reakční mechanismy	$Q({ m MeV})$	$E_{ m prah}({ m MeV})$
^{173}Lu	$^{175}Lu(n,3n)$	-14,43	$14,\!51$
176mT.11	$^{175}\mathrm{Lu}(\mathrm{n},\gamma)$	$6,\!17$	0,00
Lu	$^{176}Lu(n,n')$	-0,12	0,12
	175 Lu(n,p)	0,31	0,00
175 Yb	176 Lu(n,d)	-3,32	3,34
	176 Lu(n,np)	-5,98	6,01

Tab. 5.2: Mechanismy produkce spolehlivě gama spektrometricky
analyzovatelných radionuklidů na luteciu [98, 104]

Postupem popsaným v kapitole 1.1 se pro vyjmenované radionuklidy získaly hodnoty reakčních rychlostí $R_{\rm R}$, jež jsou uvedeny v souhrnné tabulce výsledků 5.10 v sekci 5.5; při výpočtu byly využity poločasy rozpadu, energie γ linek a jejich intenzity dokumentované tabulkou 5.3.

Produkt	$T_{1/2}$	$E_{\gamma}({ m keV})$	$I_{\gamma}(\%)$
		272,1	21,20
173 Lu	$1,\!4~{ m r}$	78,6	11,87
		100,7	5,24
$^{176\mathrm{m}}\mathrm{Lu}$	3,6 h	88,3	8,90
175 Vb	49 d	396,3	6,40
10	4,2 u	282,5	3,01

Tab. 5.3: Gama spektrometrické vlastnosti radionuklidů ¹⁷³Lu, ^{176m}Lu a ¹⁷⁵Yb [56]

Skutečností, že navzdory multiizotopickému charakteru přírodního lutecia se reakční rychlosti stanovují v poměru k jednomu terčovému jádru celé směsi, se výsledky uzpůsobují pro finální dekonvoluci spektra. Vlastnosti produkčních mechanismů mají být totiž specifikovány komplementárními excitačními funkcemi, pročež budou účinné průřezy pro paralelní interakce vedoucí na tentýž radionuklid sčítány, zatímco vliv zastoupení konkrétního terčového izotopu v přírodním mixu ozařovaného materiálu bude respektován přenásobením jeho atomovým zlomkem a. Jak se popsané úpravy projeví například na excitační funkci pro produkci ¹⁷⁵Yb na přírodní směsi lutecia, demonstruje graf 5.1. Barevné křivky popisují míru pravděpodobnosti dílčích produkčních interakcí ¹⁷⁵Lu(n,p), ¹⁷⁶Lu(n,d) a ¹⁷⁶Lu(n,np), přičemž černá křivka se získala jejich kombinací pomocí vztahu $\sigma_{natLu} = a_{175} \cdot \sigma_{175Lu(n,p)} + a_{176} \cdot (\sigma_{176Lu(n,d)} + \sigma_{176Lu(n,np)})$. Přestože zastoupení ¹⁷⁶Lu v přírodní směsi lutecia činí pouhých 2,59 %, v intervalu od 20 MeV do 60 MeV lze pozorovat významný vliv na něm probíhajících interakcí na tvar výsledné excitační funkce. Pro odečty z knihovny jaderných dat EAF-2010 byl při sestavování grafu využit *Java-based Nuclear Information Software*, známý pod zkratkou JANIS [105].



Obr. 5.1: Excitační funkce pro interakci ^{nat}Lu $(n,x)^{175}$ Yb, získaná kombinací účinných průřezů produkčních reakcí na izotopech ¹⁷⁵Lu a ¹⁷⁶Lu [105, 11, 101]

Po vyhodnocení gama spekter se rovněž přikročilo k doplňkovému ověřování poločasu rozpadu vybraných produkovaných radionuklidů. S ohledem na reprezentativnost získaného výsledku se pro vyšetřování $T_{1/2}$ volily zářiče s intenzivními γ linkami, jejichž přítomnost se podařilo prokázat pokud možno ve všech cyklech měření fólií ozařovaných v nejmenší zdroj-detektorové vzdálenosti. Jestliže byl očekávaný poločas rozpadu radioizotopu pokaždé mnohem delší než měřicí čas t_{real} , postačilo experimentální body R_{R} přepočítávat na aktivity konkrétních linek a pomocí software gnuplot je prokládat exponenciálním rozpadovým zákonem tvaru $A = A_0 \exp\left(-\frac{\ln(2)}{T_{1/2}}t\right)$. Nebyloli možné dobu měření oproti poločasu rozpadu zanedbat, musela se do procesu navíc zavést oprava na přeměnu radionuklidu v průběhu měření a modifikované datové body se fitovaly zároveň funkcí času t i nekorigované měřicí doby t_{real} . Pakliže se při gama spektrometrické analýze vyšetřovaného radionuklidu využilo více jeho γ linek, aplikovala se na jednotlivé dílčí výsledky na závěr procedura váženého průměrování. Obdržená hodnota $T_{1/2}$ se následně porovnávala s údajem tabelovaným v databázi [56].

V případě lutecia bylo experimentální ověření poločasu rozpadu realizováno pro radionuklid ¹⁷⁵Yb se dvěma γ linkami sledovanými v gama spektrech aktivačního detektoru Lu-69. Výše popsaný postup přinesl výsledek $T_{1/2}^{exp} = (4, 1 \pm 0, 1)$ d; shody

s údajem $T_{1/2}^{\text{tab}} = (4, 185 \pm 0, 001) \text{ d} [56]$ bylo proto dosaženo. Korekci na přeměnu radionuklidu během měření nebylo nutné aplikovat. Proložení experimentálních bodů aktivity nejintenzivnější gama linky ¹⁷⁵Yb o energii 396,3 keV exponenciálním rozpadovým zákonem po dosazení $T_{1/2}^{\text{exp}}$ znázorňuje obrázek 5.2.



Obr. 5.2: Experimentální ověření poločasu rozpadu ¹⁷⁵Yb

5.2 Měď

Ušlechtilá načervenalá měď se v přírodě nachází jako izotopická směs 69,15% ⁶³Cu a 30,85% ⁶⁵Cu [101]. Ozařování měděných dozimetrických fólií Cu-61 a Cu-62 vedlo k produkci tří dobře měřitelných radionuklidů, a to ⁶⁴Cu, ⁶⁰Co a ⁶⁵Ni. Jednotlivé reakční mechanismy podrobněji charakterizuje tabulka 5.4.

Produkt	Možné reakční mechanismy	$Q({ m MeV})$	$E_{ m prah}({ m MeV})$
⁶⁴ Cu	$^{63}\mathrm{Cu}(\mathrm{n},\gamma)$	7,92	0,00
	$^{65}\mathrm{Cu}(\mathrm{n,2n})$	-9,91	10,06
60 Co	$^{63}\mathrm{Cu}(\mathrm{n},lpha)$	1,72	0,00
⁶⁵ Ni	65 Cu(n,p)	-1,36	1,38

Tab. 5.4: *Q*-hodnoty a prahové energie E_{prah} produkčních mechanismů ${}^{64}\text{Cu}, {}^{60}\text{Co}$ a ${}^{65}\text{Ni}$ na mědi [98]

Zvláštní pozornost je přitom třeba věnovat interakci 63 Cu $(n,\alpha)^{60}$ Co; přestože gama spektrometricky sledovaným radionuklidem je právě 60g Co ve svém základním stavu, uvedená (n,α) reakce probíhá rovněž do metastabilního stavu 60m Co, jenž se s poločasem rozpadu 10,467 min v 99,76 % případů izomerním přechodem přeměňuje právě na 60g Co [56]. Uvedená pravděpodobnost přeměny se označuje jako *branching factor*. Po uplynutí přibližně dvou hodin od ukončení ozařování už proto sledovaná reakční rychlost na jedno terčové jádro neodpovídá excitační funkci $a_{63} \cdot \sigma_{60\text{gCo}}$, nýbrž součtu účinných průřezů $a_{63} \cdot \sigma_{60\text{gCo}} + a_{63} \cdot 0,9976 \cdot \sigma_{60\text{mCo}}$. Graficky problematiku vysvětluje obrázek 5.3; všechny tři křivky jsou přitom již přenásobeny atomovým zlomkem ⁶³Cu.



Obr. 5.3: Součet excitační funkce pro produkci základního stavu ^{60g}Co a metastavu ^{60m}Co po opravě atomovými zlomky a *branching factorem* [105, 11, 101]

Určování hodnot $R_{\rm R}$ pro všechny tři pozorované reakční mechanismy proběhlo standardním způsobem jako v případě lutecia; gama spektrometrické údaje o radionuklidech dokumentuje tabulka 5.5, výsledné reakční rychlosti obsahuje souhrnná tabulka 5.10. Jediným radioizotopem, pro nějž se v důsledku nízké indukované aktivity nepodařilo určit $R_{\rm R}$ ve vzdálenější ozařovací pozici, byl přitom právě výše komentovaný ⁶⁰Co.

Produkt	$T_{1/2}$	$E_{\gamma}({ m keV})$	$I_{\gamma}\left(\% ight)$
⁶⁴ Cu	$12,7 { m h}$	1345,8	0,47
60Co	53 r	1332,5	99,99
	0,01	1173,2	99,97
65 N;	25h	1481,8	24,00
	2,0 II	1115,5	15,43

Tab. 5.5: Poločasy rozpadu, energie a intenzity gama linek pro sledované radionuklidy ⁶⁴Cu, ⁶⁰Co a ⁶⁵Ni [56]

Pro experimentální ověření hodnoty poločasu rozpadu byl v případě mědi vybrán radionuklid ⁶⁴Cu a jeho jediná pozorovaná γ linka s energií 1345,8 keV. Ověření proběhlo na základě gama spekter aktivačního detektoru Cu-61. Zvolení komplikovanějšího postupu s korekcí na rozpad během měření vedlo k výsledku $T_{1/2}^{\exp} = (13, 0 \pm 0, 1)$ h. Vzhledem k poměrně nízkému dvouprocentnímu rozdílu oproti tabelované hodnotě $T_{1/2}^{tab} = (12, 700 \pm 0, 002)$ h [56] lze poločas rozpadu rovněž považovat za ověřený.



Obr. 5.4: Experimentální ověření poločasu rozpadu ⁶⁴Cu

5.3 Železo

Železo, lesklý stříbřitý kov, se v přírodě vyskytuje v podobě směsi 5,84 % 54 Fe, 91,75 % 56 Fe, 2,12 % 57 Fe a 0,28 % 58 Fe [101]. Na základě charakteristik emitovaného gama záření, uvedených v tabulce 5.6, se v jeho spektrech podařilo prokázat přítomnost radionuklidů 51 Cr, 54 Mn a 56 Mn.

Produkt	$T_{1/2}$	$E_{\gamma}({ m keV})$	$I_{\gamma}\left(\% ight)$
^{51}Cr	27,7 d	320,1	10,00
^{54}Mn	312,3 d	834,8	99,98
$^{56}\mathrm{Mn}$	2,6 h	846,8	98,90
		1810,8	27,20
		2113,1	$14,\!30$
		2522,9	0,99

Tab. 5.6: Důležité vlastnosti radionuklidů $^{51}\mathrm{Cr},~^{54}\mathrm{Mn}$ a $^{56}\mathrm{Mn}$ z hlediska γ spektrometrie [56]

Příslušné reakční mechanismy blíže specifikuje tabulka 5.7. V případě železa neprodukuje žádná z interakcí měřitelný metastabilní radionuklid. Průběhy účinných průřezů pro čtveřici možných produkčních reakcí ⁵⁶Mn dokumentuje graf 5.5; jako dominantní se vzhledem k největšímu zastoupení terčového izotopu ukazuje interakce ⁵⁶Fe(n,p)⁵⁶Mn. Soubor šesti reakčních rychlostí pro všechny tři produkované radionuklidy v obou ozařovacích pozicích je opět zahrnut do tabulky 5.10.

Produkt	Možné reakční mechanismy	$Q({ m MeV})$	$E_{ m prah}({ m MeV})$
^{51}Cr	$^{54}\mathrm{Fe}(\mathrm{n},lpha)$	0,84	0,00
54Mn	54 Fe(n,p)	0,09	0,00
10111	56 Fe(n,nd)	-18,18	18,51
	56 Fe(n,p)	-2,91	2,97
56 M n	57 Fe(n,d)	-8,33	8,48
10111	57 Fe(n,np)	-10,56	10,75
	58 Fe(n,nd)	-18,38	18,70

Tab. 5.7: Vlastnosti produkčních reakcí ⁵¹Cu, ⁵⁴Mn a ⁵⁶Mn na železných dozimetrických fóliích [98]



Obr. 5.5: Složená excitační funkce pro interakce typu $^{nat}Fe(n,x)^{56}Mn$ [105, 11, 101]

5.4 Titan

Leskle bílý titan je stejně jako železo tvořen směsí pěti izotopů, a to v poměru 8,25 % ⁴⁶Ti, 7,44 % ⁴⁷Ti, 73,72 % ⁴⁸Ti, 5,41 % ⁴⁹Ti a 5,18 % ⁵⁰Ti [101]. Díky jeho pestrému složení může na přírodním titanu probíhat široká škála aktivačních a prahových reakcí; nejvýznamnější z nich blíže charakterizuje tabulka 5.8. Produkty popsaných interakcí jsou gama spektrometricky velmi dobře pozorovatelné radionuklidy ⁴⁶Sc, ⁴⁷Sc a ⁴⁸Sc, doplněné o vápníkový radioizotop ⁴⁷Ca. S výjimkou ⁴⁶Sc, vyskytujícího se rovněž v metastabilní formě s poločasem rozpadu 18,75 s [56], se všechna jádra produkují ve svém základním stavu. Vliv jednotlivých reakcí na různých složkách přírodní směsi ukazuje graf 5.6 na příkladu produkce ⁴⁷Sc; nejvýrazněji se na složené excitační funkci opět projevuje nejhojněji zastoupený titanový izotop ⁴⁸Ti.

Produkt	Možné reakční mechanismy	$Q({ m MeV})$	$E_{ m prah}({ m MeV})$
	$^{46}\mathrm{Ti}(\mathrm{n,p})$	-1,58	1,62
$^{46}\mathrm{Sc}$	47Ti(n,d)	-8,24	8,42
	47Ti(n,np)	-10,46	10,69
	$^{47}\mathrm{Ti}(\mathrm{n,p})$	0,18	0,00
	$^{48}\mathrm{Ti}(\mathrm{n,d})$	-9,22	9,41
⁴⁷ Sc	$^{48}\mathrm{Ti}(\mathrm{n,np})$	-11,45	11,69
	49 Ti(n,nd)	-17,36	17,72
	49 Ti(n,2np)	-19,59	19,99
	$^{48}\mathrm{Ti}(\mathrm{n,p})$	-3,21	3,27
$^{48}\mathrm{Sc}$	49 Ti(n,d)	-9,12	9,31
	49 Ti(n,np)	-11,35	11,58
	$^{48}{ m Ti}({ m n},2{ m p})$	$-12,\!65$	12,92
^{47}Ca	49 Ti(n,pd)	-18,57	18,96
	50 Ti(n, α)	-3,44	3,51

Tab. 5.8: Produkční mechanismy radionuklidů ⁴⁶Sc, ⁴⁷Sc, ⁴⁸Sc a ⁴⁷Ca pro titan [98]



Obr. 5.6: Celkový účinný průřez pro sledovanou reakci ^{nat}Ti(n,x)⁴⁷Sc [105, 11, 101]

Které hodnoty E_{γ} byly využity k určování reakčních rychlostí na jedno terčové jádro pro čtveřici pozorovaných radionuklidů a jaké jsou jejich $I_{\gamma}(E_{\gamma})$ a příslušné $T_{1/2}$, udává tabulka 5.9. Zde specifikované gama linky příslušející radionuklidům ⁴⁷Sc a ⁴⁸Sc se navíc staly základem pro experimentální ověření poločasu rozpadu pro oba radioizotopy. Proložení změřených bodů aktivity pro $E_{\gamma} = 159,4$ keV a $E_{\gamma} = 983,5$ keV exponenciálním rozpadovým zákonem je znázorněno na obrázku 5.7. Korekci na rozpad radionuklidů v průběhu měření nebylo ani nyní nutné aplikovat. Pro ⁴⁷Sc se dosáhlo výsledku $T_{1/2}^{\exp} = (3, 382 \pm 0, 004)$ d, v případě ⁴⁸Sc dalo fitování hodnotu $T_{1/2}^{\exp} = (43, 60 \pm 0, 03)$ h. Srovnání s tabelovanou hodnotou $T_{1/2}^{tab} = (3, 3492 \pm 0, 0006)$ d [56] odhaluje pro poločas rozpadu prvního scandiového izotopu přibližně 1% rozdíl, který

lze vůči relativně dlouhé hodnotě $T_{1/2}$ považovat za přiměřený, zatímco pro druhý radioizotop scandia je překryv s $T_{1/2}^{\text{tab}} = (43, 67 \pm 0, 09)$ h [56] v mezích nejistoty úplný. Reakční rychlosti pro dva podrobně zkoumané radionuklidy stejně jako pro ⁴⁶Sc a ⁴⁷Ca rovněž obsahuje tabulka 5.10; nízká aktivita ovšem v případě posledního jmenovaného radioizotopu znemožnila vyhodnocení R_{R} v geometrii 154 mm.

Produkt	$T_{1/2}$	$E_{\gamma}({ m keV})$	$I_{\gamma}\left(\% ight)$
46 S c	83.8.4	889,3	99,98
DC DC	00,0 u	1120,5	99,99
$^{47}\mathrm{Sc}$	3,3 d	159,4	68,30
		983,5	100,00
		1312,1	100,00
^{48}Sc	43,7 h	1037,6	97,60
		175,4	7,48
		1212,9	2,38
⁴⁷ Ca	4,5 d	1297,1	71,00

Tab. 5.9: Specifikace γ linek využitých při určování hodnot $R_{\rm R}$ pro radionuklidy produkované na titanu [56]



Obr. 5.7: Experimentální ověření poločasů rozpadu ^{47}Sc a ^{48}Sc

5.5 Výsledné reakční rychlosti

Veškeré hodnoty $R_{\rm R}$, získané analýzou aktivačních materiálů popsanou v sekcích 5.1 až 5.4, shrnuje tabulka 5.10. Gama spektrometricky charakterizováno je v ní celkem třináct interakcí pozorovaných na dozimetrických fóliích z lutecia, mědi, železa a titanu. Šest z nich se zároveň klasifikuje jako prahové; jmenovitě jde o ^{nat}Lu(n,x)¹⁷³Lu, ⁶⁵Cu(n,p)⁶⁵Ni, ^{nat}Fe(n,x)⁵⁶Mn, ^{nat}Ti(n,x)⁴⁶Sc, ^{nat}Ti(n,x)⁴⁸Sc a ^{nat}Ti(n,x)⁴⁷Ca. S výjimkou mechanismů ^{nat}Cu(n,x)⁶⁰Co a ^{nat}Ti(n,x)⁴⁷Ca se pokaždé podařilo stanovit reakční rychlost ve zdroj-detektorové vzdálenosti 14 mm i 154 mm.

Bookco	Pozice P0		Pozice P14	
Iteance	$R_{ m R}({ m s}^{-1})$	$\sigma_{R_{ m R}}(\%)$	$R_{ m R}({ m s}^{-1})$	$\sigma_{R_{ ext{R}}}(\%)$
175 Lu(n,3n) ¹⁷³ Lu	$1,770 \cdot 10^{-15}$	$0,\!6$	$6,200 \cdot 10^{-17}$	$6,\!8$
$^{nat}Lu(n,x)^{176m}Lu$	$1,565 \cdot 10^{-14}$	0,3	$4,240 \cdot 10^{-16}$	0,3
$^{nat}Lu(n,x)^{175}Yb$	$4,930 \cdot 10^{-17}$	0,9	$1,800 \cdot 10^{-18}$	9,7
$^{\rm nat}Cu(n,x)^{64}Cu$	$1,909 \cdot 10^{-15}$	$0,\!5$	$5,610 \cdot 10^{-17}$	1,1
63 Cu(n, α) 60 Co	$2,250 \cdot 10^{-16}$	1,5	_	_
$^{65}Cu(n,p)^{65}Ni$	$5,300 \cdot 10^{-17}$	1,0	$1,360 \cdot 10^{-18}$	2,0
54 Fe(n, α) ⁵¹ Cr	$3,980 \cdot 10^{-17}$	1,0	$1,030 \cdot 10^{-18}$	4,1
$^{\rm nat}{\rm Fe}({\rm n,x})^{54}{\rm Mn}$	$4,280 \cdot 10^{-16}$	0,4	$1,006 \cdot 10^{-17}$	0,4
$^{nat}Fe(n,x)^{56}Mn$	$7,460 \cdot 10^{-16}$	0,3	$1,880 \cdot 10^{-17}$	0,4
$^{nat}Ti(n,x)^{46}Sc$	$2,769 \cdot 10^{-16}$	0,1	$7,650 \cdot 10^{-18}$	$0,\!3$
$^{nat}Ti(n,x)^{47}Sc$	$2,768 \cdot 10^{-16}$	0,2	$7,740 \cdot 10^{-18}$	0,2
$^{nat}Ti(n,x)^{48}Sc$	$3,173 \cdot 10^{-16}$	0,1	$7,830 \cdot 10^{-18}$	0,2
$^{nat}Ti(n,x)^{47}Ca$	$3,290 \cdot 10^{-18}$	1,0	—	—

Tab. 5.10: Konečné hodnoty reakčních rychlostí včetně procentuálních nejistot pro všechny interakce pozorované v γ spektrech fólií Lu-69, Lu-70, Cu-61, Cu-62, Fe-113, Fe-114, Ti-80 a Ti-81

Na základě tabulky 5.10 lze činit podobné závěry jako pro výsledky obdržené v rámci bakalářské práce a výzkumného úkolu, což indikuje konzistenci získávaných dat. Mezi pozicemi P0 a P14 klesají reakční rychlosti přibližně na 2,5 % až 3,5 % původních hodnot; naproti tomu nejistoty ve vzdálenější oproti bližší ozařovací geometrii vzrůstají až o řád. Hodnoty $R_{\rm R}$ pro nejintenzivněji probíhající interakce dosahují až $10^{-14} \, {\rm s}^{-1}$ v poloze P0, zatímco nejméně vydatné pozorované mechanismy se velikostmi svých reakčních rychlostí pohybují v řádu $10^{-18} \, {\rm s}^{-1}$.

Sada celkem 44 hodnot $R_{\rm R}$ pro ozařovací geometrii 14 mm, resp. 40 reakčních rychlostí ve zdroj-detektorové vzdálenosti 154 mm, ze kterých se více než polovina charakterizuje jako prahová, je tímto zkompletována.
Kapitola 6

Dekonvoluce neutronového spektra

Kapitola věnující se rekonstrukci spektra neutronů završuje nejen předloženou diplomovou práci, nýbrž spolu s ní uzavírá také celý ozařovací experiment se zdrojovou reakcí p(22) + Be na pracovišti ÚJF AV ČR. V zájmu reprodukovatelnosti bude podrobně popsán proces přípravy knihovny jaderných dat, postup samotné dekonvoluce kódem SAND-II a také sled testů, které třemi různými metodami potvrzují věrohodnost obdrženého výsledku. Součástí je rovněž diskuze fyzikální správnosti *unfoldingu*. Takto prověřené spektrum je na úrovni pracoviště již plně kvalifikováno pro aplikaci v jakékoli disciplíně naznačené v kapitole 3; závěrečnou pasáž práce pak uzavírá vytipování nejperspektivnějších možností uplatnění.

6.1 Příprava vstupních dat

Jak se ukázalo při řešení rešeršní části práce, výběr aktivačních datových souborů v oblasti neutronových energií větších než 20 MeV je značně limitován, a to v důsledku nedostupnosti experimentálních dat zejména pro interakce vedoucí na metastabilní stavy produkovaných jader (viz sekci 1.3). Z popsaných důvodů byla pro dekonvoluci spektra zvolena standardně používaná knihovna jaderných dat EAF-2010.

Excitační funkce se s pomocí nástroje JANIS diskretizovaly do 351 grupové struktury TRIPOLI+ s rozsahem od $1,1 \cdot 10^{-5}$ eV do 55 MeV; vážení se uskutečnilo při volbě konstantního neutronového toku. Diskretizaci totálních excitačních funkcí pro dříve komentované interakce ^{nat}Ti(n,x)⁴⁷Sc a ^{nat}Fe(n,x)⁵⁶Mn vizualizuje graf 6.1. Grupové účinné průřezy odpovídající všem 44 pozorovaným reakcím byly následně převedeny do striktně strukturovaného vstupního souboru pro samotný dekonvoluční kód.



Obr. 6.1: Totální excitační funkce reakcí $^{nat}Ti(n,x)^{47}Sc$ a $^{nat}Fe(n,x)^{56}Mn$, diskretizované do 351 energetických grup dle struktury TRIPOLI+ [105, 11, 101]

Pro zahájení procedury *unfoldingu* bylo třeba poskytnout programu navíc iniciační *guess* spektrum, jež se získalo simulací ve stochastickém kódu MCNPX. Model ozařovací geometrie, vytvořený na ÚJF, obsahoval kromě samotného beryliového terče a příslušných zdroj-detektorových vzdáleností rovněž detailní strukturu hlavy terčové stanice, a to včetně konečného úseku evakuované trasy protonů, ethanolového chlazení terče a hliníkového držáku vzorků podle obrázku 6.2 [93]. Disktretizace spektrální hustoty toku neutronů se provedla taktéž podle TRIPOLI+. Simulované spektrum stejně jako základní informace o něm byly pro účely diplomové práce poskytnuty vedoucím.



Obr. 6.2: Model ozařovací geometrie pro MCNPX [93]

6.2 Proces dekonvoluce

Roli unfoldingového nástroje sehrál kód SAND-II, resp. jeho modifikovaná verze používaná ÚJF, která oproti standardní verzi pracující s intervalem energií od 10⁻⁴ eV do 18 MeV nabízí rozšířený energetický rozsah kompatibilní právě s grupovou strukturou TRIPOLI+. Po načtení vstupů, tedy konkrétního souboru pozorovaných interakcí s odpovídajícími reakčními rychlostmi včetně nejistot, knihovny jaderných dat a simulovaného guess spektra, provedl kód zadaný počet iterací grupové hustoty toku neutronů. Konečná podoba spektrální hustoty byla následně vypsána do samostatného výstupního souboru stejně jako výsledné poměry C/E, tedy poměry reakčních rychlostí určených výpočtem na základě vstupní knihovny jaderých dat pro dekonvoluované spektrum neutronů vůči reakčním rychlostem stanoveným experimentálně. Rekonstruovat neutronové spektrum znamenalo opakovat běhy SAND-II tak, aby se výběrem vstupní sady $R_{\rm R}$ pro vhodnou skupinu reakcí na dozimetrických fóliích a volbou přiměřeného počtu iterací kódu dosáhlo výsledků, kdy poměry C/E výrazně nepřesáhnou hranici $\pm 20 \%$ a finální tvar spektra se co nejvíce přiblíží tvaru MCNPX simulace v tom smyslu, že nebude navíc vykazovat fyzikálně neodůvodněné píky, propady či jiné podezřelé chování. Obě výsledná spektra, získaná po pěti iteracích SAND-II v případě pozice P0 a po čtyřech bězích kódu pro polohu P14, prezentuje ve srovnání s původními MCNPX odhady graf 6.3.



Obr. 6.3: Nově zrekonstruovaná energetická spektra neutronů ze zdrojové reakce $p(22) + Be pod úhlem 0^{\circ}$ na neutronovém generátoru NG-2 ve zdroj-detektorových vzdálenostech 14 mm a 154 mm

Konečný soubor 32 reakcí, s nimiž se při volbě pěti iterací algoritmu SAND-II podařilo rekonstruovat neutronové spektrum zdrojové reakce p(22) + Be v pozici

P0, je ve smyslu hodnot C/E charakterizován ve druhém sloupci tabulky 6.1. Třetí sloupec obsahuje tytéž údaje pro polohu P14; v jejím případě byla dekonvoluce s jinou sadou 32 interakcí úspěšná již po čtyřech iteracích programu. Do vyčíslení nejistot se kromě samotné neurčitosti experimentálních hodnot $R_{\rm R}$ promítla rovněž 5% nejistota ve stanovení velikosti proudu protonů na terči a neurčitost geometrie experimentu, konzervativně odhadnutá na 3%. Aby bylo možné adekvátně ocenit souhrnnou nejistotu spektrální hustoty toku neutronů, zkombinovala se s uvedenými faktory rovněž neurčitost excitačních funkcí, čímž se dospělo k odhadu 8% totální neurčitosti $\phi(E)$.

Reakce	$C/E_{P0}(-)$	$\mathrm{C/E}_{\mathrm{P14}}\left(- ight)$
$^{27}\mathrm{Al}(\mathrm{n},\alpha)^{24}\mathrm{Na}$	$1,\!09\pm0,\!06$	$1,\!16\pm0,\!07$
$^{197}\mathrm{Au}(\mathrm{n},\gamma)^{198}\mathrm{Au}$	$1,\!02\pm0,\!06$	$0,\!92\pm0,\!05$
$^{197}Au(n,2n)^{196}Au$	$1,\!00\pm0,\!06$	$1,\!02\pm0,\!06$
197Au(n,2n) 196 m2Au	$0,\!91\pm0,\!05$	$0,\!91\pm0,\!05$
$^{197}Au(n,3n)^{195}Au$	$0,\!83\pm0,\!05$	_
$^{nat}In(n,x)^{114m}In$	$0,\!85\pm0,\!05$	$0,\!84\pm0,\!05$
$^{nat}In(n,x)^{113m}In$	$0,\!87\pm0,\!05$	$0,\!94\pm0,\!06$
$^{\rm nat}In(n,x)^{112}Ag$	—	$0,\!88\pm0,\!08$
113 In(n,3n) ¹¹¹ In	_	$0,\!99\pm0,\!09$
$^{115}In(n,p)^{115}Cd$	$0,\!93\pm0,\!05$	$0,\!88\pm0,\!06$
115 In(n,n') ^{115m} In	$0,\!96\pm0,\!06$	$0,\!98\pm0,\!06$
59 Co(n, γ) 60 Co	$1,\!01\pm0,\!06$	$1,\!00\pm0,\!06$
59 Co(n, α) ⁵⁶ Mn	$1,\!00\pm0,\!06$	$1,\!08\pm0,\!06$
$^{59}Co(n,p)^{59}Fe$	$0,\!97\pm0,\!06$	$1,\!06\pm0,\!06$
$^{59}Co(n,2n)^{58}Co$	$0,\!78\pm0,\!08$	$1{,}00\pm0{,}10$
$^{59}Co(n,2n)^{58m}Co$	$0,\!87\pm0,\!06$	$0,\!81\pm0,\!06$
$^{93}Nb(n,2n)^{92m}Nb$	$1,\!13\pm0,\!07$	$1,\!07\pm0,\!06$
$^{93}Nb(n,\alpha)^{90m}Y$	$1,\!13\pm0,\!07$	$1,\!06\pm0,\!06$
$^{nat}Ni(n,x)^{60}Co$	$0,\!97\pm0,\!06$	$0,\!92\pm0,\!06$
58 Ni(n,2n) 57 Ni	—	$0,\!88\pm0,\!05$
64 Ni $(n,\gamma)^{65}$ Ni	$1,\!10\pm0,\!20$	—
$^{nat}Ni(n,x)^{58}Co$	$0,\!91\pm0,\!06$	$1,\!04\pm0,\!09$
$^{nat}Ni(n,x)^{58m}Co$	$1,\!14\pm0,\!07$	_
$^{89}Y(n,2n)^{88}Y$	$0,\!92\pm0,\!05$	$0,\!87\pm0,\!05$
89 Y(n, γ) ^{90m} Y	$0,80 \pm 0,05$	$0,\!81\pm0,\!05$

Tab. 6.1: Poměry napočtených a experimentálních reakčních rychlostí pro
závěrečné iterace unfoldingu nových neutronových spekter

$^{\rm nat}{\rm Cu}({\rm n,x})^{64}{\rm Cu}$	$0,\!99\pm0,\!06$	$0{,}90\pm0{,}05$
$^{65}\mathrm{Cu}(\mathrm{n,p})^{65}\mathrm{Ni}$	$1,\!21\pm0,\!07$	$1,\!18\pm0,\!07$
${ m ^{54}Fe}({\rm n},\alpha){ m ^{51}Cr}$	$1,\!03\pm0,\!06$	$1,\!01\pm0,\!07$
$^{\rm nat}{\rm Fe}({\rm n,x})^{54}{\rm Mn}$	$1,\!14\pm0,\!07$	$1,\!14\pm0,\!07$
$^{\rm nat}{\rm Fe}({\rm n,x})^{56}{\rm Mn}$	$1,\!11\pm0,\!06$	$1,\!10\pm0,\!06$
$^{\rm nat}Lu(n,x)^{176m}Lu$	$0,\!98\pm0,\!06$	$0,\!95\pm0,\!06$
$^{\mathrm{nat}}\mathrm{Lu}(\mathbf{n},\mathbf{x})^{175}\mathrm{Yb}$	$0,\!87\pm0,\!05$	_
$^{\rm nat}{\rm Ti}({\rm n,x})^{46}{\rm Sc}$	$1,\!07\pm0,\!06$	$0,96\pm0,06$
$^{nat}Ti(n,x)^{47}Sc$	$1,\!04\pm0,\!06$	$1,\!02\pm0,\!06$
$^{nat}Ti(n,x)^{48}Sc$	$0,\!98\pm0,\!06$	$1,01 \pm 0,06$

6.3 Testy věrohodnosti získaného spektra

Za jeden ze způsobů ověřování správnosti dekonvolučního procesu lze považovat již samotné kritérium $C/E \in \langle 0,8; 1,2 \rangle$, ačkoli ojediněle je možné připustit i vyšší odchylku hodnoty C/E od jedné. Příkladem může být reakce ⁵⁹Co(n,2n)⁵⁸Co, vykazující na dozimetrické fólii ozařované ve 14mm vzdálenosti od terče 22% absolutní deviaci vůči jedničce. Poměry C/E pro veškeré interakce uvažované při rekonstrukci spektra v pozici P0, resp. P14 jsou graficky reprezentovány červenými, resp. zelenými body na obrázku 6.4. Jako horizontální souřadnice se zvolila střední energie neutronů interagujících daným mechanismem, vážená v sumě přes všechny grupy struktury TRIPOLI+ součinem šířky každého binu s jeho střední energií a hustotou neutronového toku v něm.



Obr. 6.4: Poměry vypočtených a experimentálních hodnot reakčních rychlostí pro nově dekonvoluovaná neutronová spektra v pozicích P0 a P14

Spektrum lze rovněž otestovat porovnáním s již publikovanými výsledky jiných autorů. Pro energetická spektra neutronů produkovaných interakcemi urychlených protonů v tlustém beryliovém terči experimentátoři nejčastěji využívají empirický vztah navržený M. A. Lonem roku 1981, který při studiu zdrojových interakcí s $E_p = 9$ MeV, 12 MeV, 14,8 MeV, 18 MeV a 23 MeV metodou *time-of-flight* ve vzdálenosti 3 m od terče vypozoroval, že střední energie neutronů ve spektru $\overline{E_n}$ se nad hranicí 2 MeV pro úhel 0° mění podle zákonitosti

$$\overline{E_{\rm n}} = 0,47E_{\rm p} - 2,2\,{\rm MeV} \tag{6.1}$$

při dosazení příslušných hodnot energií v megaelektronvoltech. [106] Střední energie neutronů pro spektrum měřené v pozici P0 se od empirické předpovědi neliší o více než -5,7%; ještě mnohem nižší odchylky 0,0045% se přitom dosahuje v ozařovací geometrii P14. Razantní zlepšení shody lze přisuzovat výraznému nárůstu zkoumané zdroj-detektorové vzdálenosti. Umístí-li se totiž fólie o průměru 15 mm pouhých 14 mm od produkčního beryliového terče, neinteragují s ní pouze neutrony vylétávající pod úhlem 0°, nýbrž emitované do celého prostorového úhlu určeného zdroj-detektorovou vzdáleností a poloměrem dané fólie. V pozici P14 se detektor nachází jedenáctkrát dále od terče, tedy v uspořádání mnohem bližším původnímu Loneho experimentu, při němž 3m vzdálenost zajistila téměř dokonalé odfiltrování neutronů vyzařovaných pod jiným než 0° úhlem.

Ve vědeckých publikacích lze dohledat několik alternativních empiricky odvozených vztahů pro předpověď $\overline{E_n}$ na základě E_p , avšak jejich přesnost je obecně menší než v případě rovnice (6.1) a do dalšího textu byly zařazeny pouze pro úplnost. Střední energii neutronů v oblasti nad 0,3 MeV lze srovnávat rovněž s méně známou Loneho empirickou formulí

$$\overline{E_{\rm n}} \simeq E_{\rm p}^{1,13} \,, \tag{6.2}$$

představenou opět na základě experimentu využívajícího techniku TOF ve zdrojdetektorové vzdálenosti 3 m při úhlu 0°, a to pro spektra energií neutronů generovaných na tlustém beryliovém terči bombardováním protony s E_p mezi 14 MeV a 24 MeV [34]. Uvedený vztah ovšem v případě neutronových spekter nyní studované reakce p(22) + Be silně podhodnocuje reálně pozorované hodnoty $\overline{E_n}$. Loneho rovnice předpovídá střední energii neutronů 4,6 MeV, zatímco v ozařovací geometrii P0 byl získán experimentální výsledek $\overline{E_n} = 5,4$ MeV, a v pozici P14 dokonce $\overline{E_n} = 5,9$ MeV. Na vině může být odlišná kvalita metody *time-of-flight* oproti aktivační technice pro zkoumání nízkoenergetické části spektra v oboru 0,3 MeV až 2 MeV. Empirický vztah pro předpověď střední energie neutronů ve spektru na základě míry urychlení iniciačních protonů publikoval rovněž H. J. Brede roku 1989. [89] Během vlastního výzkumu, využívajícího metodu TOF pro studium zdrojových reakcí berylia s protony o energiích mezi 17,2 MeV a 22 MeV pod úhlem 0° ve vzdálenosti 20 m od terče, nabídl určitou modifikaci původního Loneho vztahu (6.1) do podoby

$$\overline{E_{\rm n}} = CE_{\rm p} + D\,,\tag{6.3}$$

kde hodnoty $\overline{E_n}$ a E_p mají opět rozměr MeV a pomocí konstant C a D se rovnice ladí pro různé rozsahy energií produkovaných neutronů. Specifikuje se přitom dolní energetická hranice spektra, označovaná pro účely Bredeho předpovědí jako práh. Konkrétní hodnoty konstant uvádí tabulka 6.2 společně s informacemi, nakolik se predikce vztahu (6.3) liší od reálně pozorovaných středních energií neutronů v pozici P0 a P14. Lze si povšimnout, že při volbě prahu 2,0 MeV mají odchylky velmi podobné hodnoty jako při aplikaci rovnice (6.1); pro nižší hranice spektra se výsledky jeví nekonzistentně. Přestože je shoda s Bredeho předpověďmi obecně lepší než v případě alternativního Loneova vztahu (6.2), lze opět soudit, že predikce dle metody TOF nefungují v nízkoenergetické oblasti pro aktivační techniku zcela spolehlivě.

Tab. 6.2: Srovnání střední energie neutronů dekonvoluovaných spekter s Bredeho empirickými předpověďmi [89]

Práh	$C\left(- ight)$	D(-)	$\overline{E_{ m n}}({ m MeV})$	$\Delta \overline{E_{\mathrm{n,P0}}}\left(\% ight)$	$\Delta \overline{E_{\mathrm{n,P14}}}\left(\% ight)$
0,4 MeV	0,345	-2,21	$5,\!4$	$1,\!3$	11,2
1,0 MeV	0,37	-1,37	6,8	-11,0	-2,2
2,0 MeV	0,433	-1,39	8,2	$-5,\!6$	0,1

Tvar obou nově dekonvoluovaných spekter zdrojové reakce p(22) + Be se ovšem s výsledky M. A. Loneho i H. J. Bredeho pro E_p blízké 22 MeV velmi dobře shoduje. Křivka spektrální hustoty toku neutronů vykazuje totožné znaky, tj. mírně klesající trend, nepřítomnost výraznějších píků a zakončení ostrou hranou, stejně na obrázku 6.3 jako v grafech 6.5 a 3.6, zařazeném do kapitoly o využití kompaktních urychlovačem řízených zdrojů.

V rámci posledního testovacího procesu je na ÚJF zvykem vynést do grafu poměry výsledků získaných pro pozici P0 vůči pozici P14; vykresluje se jednak poměr simulovaných guess spekter, jednak poměr spekter nově dekonvoluovaných. Obě křivky se následně doplní experimentálními body $R_{\rm R}^{\rm P0}/R_{\rm R}^{\rm P14}$, jež potvrdí správnost provedeného unfoldingu, jestliže budou ležet v blízkosti křivky popisující poměr obou dekonvoluovaných spekter. Jejich horizontální souřadnice se určuje stejným způsobem jako při vykreslování grafu 6.4.



Obr. 6.5: Energetická spektra neutronů produkovaných interakcemi typu p + Be, měřená metodou TOF kolektivem M. A. Loneho na pracovišti Chalk River [34]

Data získaná pro zdrojovou reakci p(22) + Be vizualizuje obrázek 6.6; zvýrazňuje se tak zejména rozdílný poměr spekter napočtených v MCNPX a rekonstruovaných pomocí SAND-II v poloze P0 versus P14. Zdůvodnění může spočívat v nedokonalé simulaci dopředného charakteru p + Be interakce kódem MCNPX, v důsledku čehož se predikce neutronového spektra v blízké geometrii s velmi širokým prostorovým úhlem odchyluje od experimentu více, než je tomu ve 154mm vzdálenosti od terče, kde se již může dobře uplatnit bodové přiblížení. Že se realitě více přibližují dekonvoluovaná než simulovaná spektra neutronů, stvrzuje shoda křivky jejich poměrů s experimentálně stanovenými poměry reakčních rychlostí.



Obr. 6.6: Poměry simulovaných a dekonvoluovaných spekter včetně experimentálních reakčních rychlostí v pozici P0 oproti poloze P14

6.4 Diskuze

Přestože nově dekonvoluovaná spektra úspěšně prošla sérií všech testů popsaných v sekci 6.3, má smysl v závěru kapitoly detailně prodiskutovat, zda výsledky odpovídají rovněž fundamentálním fyzikálním očekáváním. S ohledem na motivaci diplomové práce je rovněž třeba ocenit, k jakým aplikacím, detailně popsaným v rešeršní části 3, se spektra podle svého experimentálně nalezeného tvaru, intenzity a rozsahu hodí nejvíce.

6.4.1 Fyzikální interpretace výsledků

Grupová spektrální hustota toku neutronů, *unfoldovaná* kódem SAND-II, má v ozařovací geometrii P0 i P14 převážně plochý trend, což je typické pro spektra produkovaná na tlustých terčích. Postupné zpomalování protonů dopadajících na berylium až do jejich úplného zastavení způsobuje, že k interakcím produkujícím neutrony může docházet v široké škále hodnot E_p , čímž se píky odpovídající jednotlivým produkčním mechanismům efektivně "rozmývají" a složené spektrum se vyhlazuje.

Dominantně se vůči jiným interakcím projevuje ⁹Be(p,n₀)⁹B vedoucí na základní stav ⁹B, jejíž *Q*-hodnota činí -1,85 MeV, a tudíž má v laboratorní soustavě prahovou energii 2,06 MeV [98]. Kinematický limit pro (p,n₀) reakci proto odpovídá $E_n = E_p - 2,06$ MeV, což výborně koresponduje s ostrou hranou rekonstruovaných spekter na energii 20 MeV. Že však na hranici příslušných dvou grup nedochází k poklesu $\phi(E)$ k nule, nýbrž pouze přibližně o jeden řád, vysvětluje nedokonalost vyladění energie protonového svazku přesně na 22 MeV; s ohledem na velikost $E_{\rm prah}$ ve srování s $E_p^{\rm start}$ a $E_p^{\rm storp}$, pohybujících se v blízkosti 22,2 MeV, mohlo v sousední energetické grupě vznikat ještě poměrně velké množství neutronů.

Kromě (p,n) interakce, umožňující produkci ⁹B nejen v základním, ale rovněž ve vyšších excitovaných stavech, se ovšem na vzniku neutronů srážením protonů s ⁹Be podílí také řada vícečásticových a sekvenčních procesů. V rámci první skupiny reakcí není neutron jedinou částicí emitovanou při srážce; společně s ním může být vyprodukován kupříkladu nepružně rozptýlený proton, α částice, anebo proton i α částice současně. Druhý pojem "sekvenční" odkazuje ke skutečnosti, že interakcí bombardujícího protonu vzniká nestabilní radionuklid, který vyzáří neutron teprve při následné přeměně svého jádra. Jako příklady poslouží jednak excitované stavy ⁹Be* a ⁶Li*, jednak samostatný radioizotop ⁵He. Nejdůležitější energetické parametry jmenovaných reakcí obsahuje tabulka 6.3.

Reakce	$Q({ m MeV})$	$E_{ m prah}({ m MeV})$
$^{9}\text{Be}(p,n)^{9}\text{B}$	$^{-1,85}$	2,06
$^{9}\text{Be}(p,p'n)^{8}\text{Be}$	$^{-1,66}$	1,85
$^{9}\text{Be}(p,n\alpha)^{5}\text{Li}$	$-3,\!54$	$3,\!93$
$^{9}\text{Be}(p,pn\alpha)^{4}\text{He}$	$^{-1,57}$	1,75
$^{9}\text{Be}(p,p')^{9}\text{Be}^{*}$	-2,43	2,70
$^{9}\text{Be}(\mathbf{p},\alpha)^{6}\text{Li}^{*}$	-2,19	2,43
$^{9}\text{Be}(p,p\alpha)^{5}\text{He}$	-2,31	2,57

Tab. 6.3: Charakteristiky jednotlivých reakčních mechanismů
v rámci zdrojové reakce $\mathbf{p} + \mathbf{Be}$ [98, 104]

Popsané reakční mechanismy včetně (p,n) interakcí do excitovaných stavů se podílejí na růstu spektrální hustoty toku neutronů především v oblasti nižších energií; takto vyprodukované neutrony jsou proto označovány jako nízkoenergetické kontinuum [5]. Z převážné části tak zodpovídají za poslední charakteristický rys nově rekonstruovaných spekter, totiž za globální mírný pokles $\phi(E)$ s energií, a zároveň v nich patrně lze hledat vysvětlení pro dvojici slabých píků lokalizovaných v oblasti 1,4 MeV a 5,5 MeV.

6.4.2 Uplatnění dekonvoluovaných spekter

Jak demonstrovala rešeršní část práce, "bílé" spektrum neutronů vzniklých ve zdrojové reakci typu p + Be na tlustém terči lze využít k širokému okruhu experimentů, mezi nimiž dominuje validace jaderných dat, NAA rychlými neutrony, testování radiační odolnosti mikroelektroniky, materiálový výzkum a kalibrace detekčních systémů. Spektra nově rekonstruovaná na pracovišti neutronového generátoru NG-2 v rámci ÚJF AV ČR disponují rovnoměrným, jen mírně klesajícím rozložením $\phi(E)$ v rozsahu takřka od 10^{-5} eV po 20 MeV, přičemž jejich střední energie nad hranicí 2 MeV dosahuje v pozici P0 hodnoty přibližně 7,8 MeV a 8,2 MeV pro polohu P14. Hustoty toku rychlých neutronů mají pak pro bližší a vzdálenější ozařovací geometrii hodnotu popořadě $(4,0 \pm 0,3) \cdot 10^{10}$ cm⁻²s⁻¹ a $(8,8 \pm 0,7) \cdot 10^8$ cm⁻²s⁻¹ při protonovém proudu 11,66 µA. Nejen díky vyjmenovaným konkrétním charakteristikám je využití neutronového pole zdrojové reakce p(22) + Be v některých aplikacích výhodnější než v jiných.

Z hlediska rozpětí neutronových energií se spektrum mimořádně hodí pro validaci jaderných dat v oboru jaderné fúze. Ačkoli na zdroji NG-2 se pro tyto účely obvykle využívají kvazimonoenergetická pole neutronů z interakcí typu p + Li, které umožňují proměřovat účinné průřezy "po bodech", spojitá spektra studované reakce p(22) + Be mohou příslušná měření doplnit cennými informacemi o integrálních účinných průřezech, průměrovaných přes celý energetický rozsah. Užitečnost podobných experimentů prokázal i výzkumný program LANSCE, zaměřený na zjišťování integrálních excitačních funkcí pro produkci kosmogenních radionuklidů, jenž může navíc být inspirací pro skupinu jaderné astrofyziky přímo v rámci Oddělení jaderných reakcí ÚJF AV ČR.

V pozici P0 má rekonstruované pole neutronů zároveň dostatečně vysokou hustotu neutronového toku pro experimenty z oblasti FNAA. Dobrý referenční příklad představuje výzkum kolektivu pana prof. J. Kučery [58], zaměřený na určování obsahu fluoru v biologických a environmentálních vzorcích, a to s pomocí zdrojové reakce p(19) + Be právě na neutronovém generátoru NG-2. Podobně může nově dekonvoluované spektrum s maximální hodnotou $E_n = 20$ MeV představovat vyhovující kompromis, kdy bude energie neutronů dostatečná pro otevření reakčních kanálů na prvcích nezjistitelných klasickou reaktorovou NAA, avšak zároveň nezpůsobí vznik přílišného množství dalších radioizotopů komplikujících vyhodnocení experimentu.

Testování radiační odolnosti mikroelektroniky, a to zejména pro centra základního výzkumu FAIR, CERN a SÚJV, představují v současné době jeden z pilířů experimentálních činností Oddělení jaderných reakcí. Ozařování prototypových elektronických součástek historicky probíhala v "bílých" i kvazimonoenergetických polích neutronů generovaných na všech třech dostupných terčových stanicích například pod vedením S. Menkeho [72], V. Kushpila [73] a V. Mikhaylova [74]. Variabilita neutronových spekter poskytuje možnost vystavovat vzorky různým hodnotám ekvivalentní fluence monoenergetických 1MeV neutronů; dosavadní možnosti dále rozšíří rovněž nové spektrum p(22) + Be.

Přímo na domovském pracovišti ÚJF AV ČR probíhal také výzkum účinků toku rychlých neutronů na vlastnosti materiálů obecně; radiační poškození wolframu, molybdenu a železa neutronovým polem zdrojové reakce p(35) + Be zkoumal kupříkladu kolektiv O. Ogorodnikové [84]. Protože jde o materiály zamýšlené pro konstrukci prvních fúzních reaktorů, jedná se o další způsob, jak mohou spektra se střední energií blízkou 8 MeV přispět k vývoji fúzní technologie.

Přestože však Německý institut metrologie v Braunschweigu prokázal, že "bílá" neutronová pole představují perspektivní nástroj rovněž pro kalibraci detekčních systémů, jeví se metrologická aplikace pro pracoviště ÚJF ve srovnání s předchozími méně výhodně. Neutronová pole zdroje NG-2 obecně nejsou chápána jako referenční; cyklotronová hala navíc není podobným účelům uzpůsobena ve smyslu opatření pro snížení rozptylu neutronů. Principiálně však nejsou potřebné změny vyloučeny, a proto je možné kalibraci detekčních systémů chápat jako příležitost pro budoucí rozvoj pracoviště.

Kapitolu tak lze uzavřít konstatováním, že rekonstrukce energetických spekter neutronů ze zdrojové reakce p(22) + Be na neutronovém generátoru NG-2 v rámci

Ústavu jaderné fyziky AV ČR byla provedena úspěšně. Samotný proces dekonvoluce funkcí $\phi(E)$ na základě předpřipravených sad experimentálních hodnot $R_{\rm R}$, přiřazených k excitačním funkcím $\sigma(E)$ z knihovny jaderných dat EAF-2010, proběhl bez obtíží. Jako argumenty pro věrohodnost jeho výsledku lze využít trojici zdárných testů, a to kontrolu nepřekročení 20% hranice pro maximální odchylku mezi vypočtenými a experimentálními reakčními rychlostmi, dále prokázání dobré shody střední energie neutronů s dříve publikovanými empirickými predikcemi jiných autorů a naposled posuzování poměrů výsledků získaných v ozařovací geometrii P0 oproti P14. Obě rekonstruovaná spektra jsou zároveň plně v souladu s fyzikálními očekáváními. Jako vedlejší výstup z experimentu lze proto chápat ověření správnosti výpočtu v MCNPX; nejdůležitější nové poznatky však představuje právě dvojice rekonstruovaných spekter. Dosavadní soubor čtvř dobře definovaných neutronových polí zdrojové reakce p + Be na tlustém terči, dostupných na ÚJF pro výzkumné i provozní aplikace, se tak rozšiřuje na pět. Nově dekonvoluované spektrum interakce p(22) + Be má přitom mimořádný potenciál zejména pro obory validace jadernýchdat, neutronové aktivační analýzy rychlými neutrony a materiálového výzkumu včetně testování radiační odolnosti elektroniky.

Závěr

Motivací pro předloženou diplomovou práci bylo rozšíření výzkumných možností pracoviště neutronového generátoru NG-2 na pracovišti Ústavu jaderné fyziky AV ČR. Spojité energetické spektrum rychlých neutronů, produkované svazkem protonů o energii 22 MeV na tlustém beryliovém terči, vhodně doplní sadu již prozkoumaných "bílých" i kvazimonoenergetických neutronových spekter, která v současnosti ÚJF využívá například pro validaci jaderných dat v oblasti fúzních energií, neutronovou aktivační analýzu nebo testování radiační odolnosti mikroelektronických komponent.

Jelikož diplomová práce přímo navazuje na výzkumný úkol a bakalářskou práci, v zájmu ucelení jejího textu bylo nejprve provedeno shrnutí dosavadních znalostí o aktivační technice dozimetrickými fóliemi, zvolené ke spektrometrii neutronového pole. Hlouběji byla oproti předcházejícím dvěma pracím prostudována zejména problematika rekonstrukce spektra pomocí dekonvolučních numerických kódů. Rešerše byla zároveň rozšířena o přehled knihoven jaderných dat dostupných pro aktivační a prahové reakce iniciované vysokoenergetickými neutrony.

Na stručné shrnutí vlastností neutronových polí produkovaných zdrojovou reakcí p + Be, jež se zakládalo na poznatcích nabytých převážně při řešení výzkumného úkolu, navázalo jejich srovnání s energetickými spektry neutronů vznikajících při jiných interakcích nabitých částic s lehkými jádry. Komentována byla rovněž neutronová spektra brzdného záření a fúzních reakcí. Neutronové generátory fungující na principu jmenovaných reakcí lze společně zařadit do kategorie urychlovačem řízených zdrojů neutronů; podrobně bylo prozkoumáno jejich využívání v oblasti jaderných dat, aktivační analýzy, testování radiační odolnosti elektroniky, materiálového výzkumu a kalibrace detekčních systémů. Speciální důraz se kladl na uvádění příkladů využití přímo z pracoviště ÚJF.

Aby se však čerstvě nabyté poznatky mohly uplatnit na neutronové spektrum zdrojové reakce p(22) + Be, musela být v rámci diplomové práce dokončena analýza gama spekter zbývajících osmi luteciových, měděných, železných a titanových aktivačních detektorů; během ozařovacího experimentu, jenž byl realizován v roce 2021 při řešení bakalářské práce, byly jmenované dozimetrické fólie aktivovány ve vzdálenostech 14 mm a 154 mm od produkčního beryliového terče. Podařilo se tak

zkompletovat sadu celkem 44 reakčních rychlostí na jedno terčové jádro pro interakce pozorované v bližší ozařovací geometrii. Pro zdroj-detektorovou vzdálenost 154 mm se reakčních rychlostí získalo dohromady 40. V obou případech přitom více než polovina interakcí vykazovala striktní práh.

Výsledky následného *unfoldingu*, provedeného pomocí modifikované verze kódu SAND-II, představují vyvrcholení nejen diplomové práce, nýbrž i obou předcházejících akademických prací. Dekonvolucí finálních redukovaných sad celkem 32 reakčních rychlostí společně s excitačními funkcemi z knihovny jaderných dat EAF-2010 se podařilo získat dvě nová spektra, která shodně vykazují stabilní, mírně klesající trend až do ostré hrany na energii 20 MeV, přičemž střední energie neutronů je blízká 8 MeV. Hustota toku neutronů při protonovém proudu 11,66 µA dosahuje pro ozařovací vzdálenost 14 mm hodnoty přibližně $4,0 \cdot 10^{10}$ cm⁻²s⁻¹ a pro geometrii 154 mm pak $8,8 \cdot 10^8$ cm⁻²s⁻¹. Obě zrekonstruovaná spektra byla podrobena sérii testů za účelem ověření jejich důvěryhodnosti. Nebyla opomenuta ani podrobná fyzikální diskuze charakteru spekter a vytipování nejvýhodnějších aplikací pro ně. Největší potenciál zřejmě skýtá oblast integrální validace jaderných dat pro vysokoenergetické neutrony, FNAA a studium materiálového poškození s důrazem na účinky neutronového ozařování na mikroelektroniku.

Naplněním cílů předložené diplomové práce se zdařilo pro pracoviště ÚJF AV ČR získat cenný experimentální nástroj v podobě nového spektra rychlých neutronů produkovaného v dosud málo probádané zdrojové reakci p(22) + Be. Spektrální hustota neutronového toku, rekonstruovaná ve vzdálenosti 14 mm i 154 mm od terče, bude mít význam dobře definovaného nástroje zejména pro budoucí použití při měření průměrovaných účinných průřezů pro fúzní neutrony, studiu materiálového poškození a při provádění testů radiační odolnosti mikroelektroniky, určené nejen pro plánované experimenty vysokoenergetické jaderné fyziky. Zároveň najde uplatnění v rychle se rozvíjejícím oboru neutronové aktivační analýzy rychlými neutrony.

Bibliografie

- ORSÁGOVÁ, K. Aktivační a prahové reakce v poli urychlovačem řízeného zdroje rychlých neutronů s p + Be reakcí. 2021. Bak. pr. České vysoké učení technické v Praze. Vedoucí práce Ing. Milan Štefánik, Ph.D.
- [2] ORSÁGOVÁ, K. Studium produktů prahových reakcí v neutronovém poli urychlovačem řízeného zdroje s p(22) + Be reakcí. 2022. Výzkumný úkol. České vysoké učení technické v Praze. Vedoucí práce Ing. Milan Štefánik, Ph.D.
- [3] ANDERSON, I. et al. Research opportunities with compact accelerator-driven neutron sources. *Physics Reports.* 2016, roč. 654, s. 1–58. ISSN 0370-1573. Dostupné z DOI: https://doi.org/10.1016/j.physrep.2016.07.007.
- [4] Neutrons used as a probe [online]. Heinz Maier-Leibnitz Zentrum, 2023 [cit. 2023-04-05]. Dostupné z: https://mlz-garching.de/englisch/research/neutrons-as-a-probe.html.
- [5] HOWARD, W. B. et al. Measurement of the Thick-Target ⁹Be(p,n) Neutron Energy Spectra. *Nuclear Science and Engineering*. 2001, roč. 138, č. 2, s. 145– 160. Dostupné z DOI: 10.13182/NSE01-A2206.
- [6] ADAM, J. et al. Transmutation of Th and U with neutrons produced in Pb target and U blanket system by relativistic deuterons. 2008. Tech. zpr. Dzhelepov Laboratory of Nuclear Problems.
- [7] ŠTEFÁNIK, M. Experimentálne stanovenie spektier urýchľovačom riadených neutrónových generátorov. 2015. Dis. pr. České vysoké učení technické v Praze. Vedoucí práce Ing. Karel Katovský, Ph.D.
- [8] KNOLL, G. F. Radiation Detection and Measurement. 3rd edition. New York: John Wiley a Sons, 2000. ISBN 978-0-471-07338-3.
- [9] ADAM, J. et al. Program package and supplements to activation analysis for calculations of nuclear reaction cross sections. 2000. Tech. zpr., JINR P10-2000-28. Laboratory of Nuclear Problems.
- [10] TRKOV, A. et al. IRDFF-II: a new neutron metrology library. Nuclear Data Sheets. 2020, roč. 163, s. 1–108.
- [11] SUBLET, J. C. et al. EAF 2010 neutron-induced cross section library. CCFE-R (10). 2010, roč. 5.
- [12] HUANG, X.-L. et al. Neutron activation cross section data library. Chinese Physics B. 2022, roč. 31, č. 6, s. 060102. Dostupné z DOI: 10.1088/1674-1056/ac657e.
- [13] TRKOV, A. Status and perspective of nuclear data production, evaluation and validation. *Nuclear Engineering and Technology*. 2005, roč. 37, č. 1, s. 11–24.

- [14] RAJ, P. et al. Comparative survey of evaluated nuclear data libraries for fusion-relevant neutron activation spectrometry. In: *EPJ Web of Conferences*. 2020, sv. 239, s. 21003.
- [15] KONING, A. et al. TENDL: Complete Nuclear Data Library for Innovative Nuclear Science and Technology. *Nuclear Data Sheets.* 2019, roč. 155, s. 1–55.
 ISSN 0090-3752. Dostupné z DOI: https://doi.org/10.1016/j.nds.2019. 01.002.
- [16] MATZKE, M. Unfolding of particle spectra. In: VOURVOPOULOS, G. (ed.). International Conference Neutrons in Research and Industry. SPIE, 1997, sv. 2867, s. 598–607. Dostupné z DOI: 10.1117/12.267860.
- [17] REGINATTO, M. Overview of spectral unfolding techniques and uncertainty estimation. *Radiation Measurements*. 2010, roč. 45, č. 10, s. 1323-1329. ISSN 1350-4487. Dostupné z DOI: https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2010.06.016.
- [18] PEREY, F. Least-squares dosimetry unfolding: The program STAY'SL. 1977. Tech. zpr. Oak Ridge National Lab.
- [19] MAERKER, R. E.; BROADHEAD, B. L.; WAGSCHAL, J. J. Theory of a New Unfolding Procedure in Pressurized Water Reactor Pressure Vessel Dosimetry and Development of an Associated Benchmark Data Base. *Nuclear Science and Engineering*. 1985, roč. 91, č. 4, s. 369–392. Dostupné z DOI: 10.13182/NSE85-A18355.
- [20] MCELROY, W.; BERG, S.; CROCKETT, T.; HAWKINS, R. A computerautomated iterative method for neutron flux spectra determination by foil activation. Volume 1. A study of the iterative method. 1967. Tech. zpr. Atomics International Canoga Park CA.
- [21] MATZKE, M. Unfolding of pulse height spectra: the HEPRO program system. 1994. Tech. zpr. SCAN-9501291.
- [22] REGINATTO, M.; GOLDHAGEN, P.; NEUMANN, S. Spectrum unfolding, sensitivity analysis and propagation of uncertainties with the maximum entropy deconvolution code MAXED. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 2002, roč. 476, č. 1, s. 242–246. ISSN 0168-9002. Dostupné z DOI: https://doi.org/10.1016/S0168-9002(01)01439-5.
- [23] Ústav jaderné fyziky AV ČR [online]. Středisko společných činností AV ČR, 2023 [cit. 2023-02-09]. Dostupné z: http://www.ujf.cas.cz/cs/.
- [24] ŠTEFÁNIK, M. et al. Accelerator driven p(37) + D₂O fast neutron source at NPI Řež. In: Proceedings of the 2014 15th International Scientific Conference on Electric Power Engineering (EPE). 2014, s. 743–748. Dostupné z DOI: 10.1109/EPE.2014.6839529.
- [25] BÉM, P. et al. The NPI cyclotron-based fast neutron facility. In: International Conference on Nuclear Data for Science and Technology. 2007, s. 555–558.
- [26] SIMECKOVA, E. et al. The NPI Center of Accelerators and Nuclear Analytical Methods (CANAM), Basic and Applied Research with Ion Beams. In: 18th Conference of Czech and Slovak Physicists. [B.r.], s. 87.

- [27] NESVIZHEVSKY, V.; VILLAIN, J. The discovery of the neutron and its consequences (1930–1940). Comptes Rendus Physique. 2017, roč. 18, č. 9, s. 592–600. ISSN 1631-0705. Dostupné z DOI: https://doi.org/10.1016/j.crhy.2017.11.001.
- [28] GUERRA, F.; LEONE, M.; ROBOTTI, N. Enrico Fermi's discovery of neutroninduced artificial radioactivity: neutrons and neutron sources. *Physics in perspective*. 2006, roč. 8, s. 255–281.
- [29] LAWRENCE, E. O. The evolution of the cyclotron. *Nobel Lecture*. 1951.
- [30] GUILLAUMONT, R. Completion and extension of the periodic table of elements beyond uranium. *Comptes Rendus Physique*. 2019, roč. 20, č. 7, s. 617-630. ISSN 1631-0705. Dostupné z DOI: https://doi.org/10.1016/j. crhy.2018.12.006.
- [31] HANNON, A. Neutron Diffraction, Instrumentation. In: LINDON, J. C. (ed.). Encyclopedia of Spectroscopy and Spectrometry. Second Edition. Oxford: Academic Press, 1999, s. 1766–1778. ISBN 978-0-12-374413-5. Dostupné z DOI: https://doi.org/10.1016/B978-0-12-374413-5.00223-2.
- [32] CARPENTER, J.; MARMER, G. Evaluation of the ZGS injector-booster as an intense neutron generator. 1972. Tech. zpr. Argonne National Lab.
- [33] BERMEJO, F. J.; SORDO, F. Neutron sources. Experimental Methods in the Physical Sciences. 2013, roč. 44, s. 137–243.
- [34] LONE, M. A. et al. Thick target neutron yields and spectral distributions from the ⁷Li(pd,n) and ⁹Be(pd,n) reactions. *Nuclear Instruments and Methods*. 1977, roč. 143, č. 2, s. 331–344. ISSN 0029-554X. Dostupné z DOI: https://doi.org/10.1016/0029-554X(77)90616-4.
- [35] PTB [online]. Physikalisch-technische Bundesanstalt, 2023 [cit. 2023-02-21].
 Dostupné z: https://www.ptb.de/cms/en.html.
- [36] IBARRA, A. et al. The IFMIF-DONES project: preliminary engineering design. Nuclear Fusion. 2018, roč. 58, č. 10, s. 105002. Dostupné z DOI: 10.1088/1741-4326/aad91f.
- [37] WEAVER, K.; ANDERSON, J.; BARSCHALL, H.; DAVIS, J. Neutron spectra from deuteron bombardment of D, Li, Be, and C. Nuclear Science and Engineering. 1973, roč. 52, č. 1, s. 35–45.
- [38] CARPENTER, J. M.; YELON, W. B. 2. Neutron Sources. In: Methods in Experimental Physics. Elsevier, 1986, sv. 23, s. 99–196.
- [39] UINDZOR, K. Pulsed neutron scattering. 1985.
- [40] CERULLO, N.; ESPOSITO, J.; MONTAGNINI, B. Feasibility of a neutron beam for BNCT application based on nuclear fusion reactions DD and DT. *Journal of Nuclear Science and Technology.* 2000, roč. 37, č. sup1, s. 384–388.
- [41] *ITER* [online]. ITER Organization, 2023 [cit. 2023-02-22]. Dostupné z: https://www.iter.org.
- [42] NOLTE, R.; THOMAS, D. J. Monoenergetic fast neutron reference fields:
 I. Neutron production. *Metrologia*. 2011, roč. 48, č. 6, S263. Dostupné z DOI: 10.1088/0026-1394/48/6/S04.

- [43] ČMI [online]. Český metrologický institut, 2023 [cit. 2023-02-21]. Dostupné z: https://www.cmi.cz/.
- [44] TODT, W. H. Characteristics of self-powered neutron detectors used in power reactors. In: Proc. of a Specialists' Meeting on In-core Inst. and Reactor Core Assessment, NEA Nuclear Science Committee. 1996.
- [45] FORREST, R. A. The role of nuclear data for fusion technology studies. Nuclear engineering and design. 2011, roč. 241, č. 10, s. 4326–4330.
- [46] FISCHER, U. et al. The role of nuclear data for fusion nuclear technology. *Fusion Engineering and Design.* 2018, roč. 136, s. 162–167. ISSN 0920-3796. Dostupné z DOI: https://doi.org/10.1016/j.fusengdes.2018.01.036.
- [47] FISCHER, U. et al. Neutronics of the IFMIF-DONES irradiation facility. *Fusion Engineering and Design.* 2019, roč. 146, s. 1276–1281. ISSN 0920-3796. Dostupné z DOI: https://doi.org/10.1016/j.fusengdes.2019.02.057.
- [48] ARBEITER, F. et al. Design description and validation results for the IFMIF High Flux Test Module as outcome of the EVEDA phase. Nuclear Materials and Energy. 2016, roč. 9, s. 59–65. ISSN 2352-1791. Dostupné z DOI: https: //doi.org/10.1016/j.nme.2016.04.013.
- [49] JAROŠÍK, J. et al. Activation cross-section measurement of fast neutroninduced reactions in Al, Au, Bi, Co, F, Na, and Y. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 2022, roč. 511, s. 64–74. ISSN 0168-583X. Dostupné z DOI: https: //doi.org/10.1016/j.nimb.2021.10.018.
- [50] CAFFEE, M.; NISHIIZUMI, K.; SISTERSON, J.; ULLMANN, J.; WELTEN, K. Cross section measurements at neutron energies 71 and 112 MeV and energy integrated cross section measurements (0.1 < E_n < 750 MeV) for the neutron induced reactions O(n,x)¹⁰Be, Si(n,x)¹⁰Be, and Si(n,x)²⁶Al. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 2013, roč. 294, s. 479–483. ISSN 0168-583X. Dostupné z DOI: https://doi.org/10.1016/j.nimb.2012.07.011.
- [51] ALFASSI, Z. Activation Analysis, Volume I. Boca Raton: CRC Press, 1990. ISBN 0-8493-4583-9.
- [52] HEVESY, G.; LEVI, H. Action of slow neutrons on rare earth elements. *Nature*. 1936, roč. 137, č. 3457, s. 185–185.
- [53] EBY, N. Instrumental Neutron Activation Analysis (INAA) [online]. Science Education Resource Center, 2022 [cit. 2023-02-14]. Dostupné z: https:// serc.carleton.edu/msu%5C_nanotech/methods/INAA.html.
- [54] TURNER, S. E. Fast neutron activation analysis. Analytical Chemistry. 1956, roč. 28, č. 9, s. 1457–1459.
- [55] ALFASSI, Z. Activation Analysis, Volume II. Boca Raton: CRC Press, 1990. ISBN 0-8493-4584-7.
- [56] CHU, S. Y. F.; EKSTRÖM, L. P.; FIRESTONE, R. B. The Lund/LBNL Nuclear Data Search [online]. 1999 [cit. 2023-03-29]. Dostupné z: http:// nucleardata.nuclear.lu.se/toi/.
- [57] ŠTEFÁNIK, M. Vzorky pripevnené na nosič. [B.r.]. Nepublikovaný studijní materiál KJR.

- [58] KUČERA, J.; ŠTEFÁNIK, M.; VESELKA, P. Fluorine determination in biological and environmental samples with INAA using fast neutrons from a p(19) + Be neutron generator. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 2019, roč. 322, s. 1517–1523.
- [59] HANNAN, M.; OLUWOLE, A.; KEHINDE, L.; BORISADE, A. Determination of oxygen, nitrogen, and silicon in Nigerian fossil fuels by 14 MeV neutron activation analysis. *Journal of radioanalytical and nuclear chemistry*. 2003, roč. 256, č. 1, s. 61–65.
- [60] BIGGIN, H.; MORGAN, W. Fast neutron activation analysis of the major body elements. *Journal of Nuclear Medicine*. 1971, roč. 12, č. 12, s. 808–814.
- [61] LI, X.-n. et al. Detection of Hidden Explosives by Fast Neutron Activation Analysis. Atomic Energy Science and Technology. 2008, roč. 42, č. 4, s. 343– 347. Dostupné z DOI: https://www.aest.org.cn/EN/10.7538/yzk.2008. 42.04.0343.
- [62] IWASHITA, H. et al. Accelerated tests of soft errors in network systems using a compact accelerator-driven neutron source. *IEEE Transactions on Nuclear Science*. 2016, roč. 64, č. 1, s. 689–696.
- [63] TAKALA, B. The ICE house neutron testing leads to more reliable electronics. Los Alamos Science. 2006, roč. 30, s. 96.
- [64] BUREAU, A. T. S. In-flight upset 154 km west of Learmouth. WA, VH-QPA, Airbus A330-303, Aviation Occurrence Investigation AO-2008-070 Preliminary. 2008.
- [65] GOLDHAGEN, P.; CLEM, J. M.; WILSON, J. W. The energy spectrum of cosmic-ray induced neutrons measured on an airplane over a wide range of altitude and latitude. *Radiation Protection Dosimetry*. 2004, roč. 110, č. 1-4, s. 387–392. ISSN 0144-8420. Dostupné z DOI: 10.1093/rpd/nch216.
- [66] KOLE, M.; PEARCE, M.; MUÑOZ SALINAS, M. A model of the cosmic ray induced atmospheric neutron environment. Astroparticle Physics. 2015, roč. 62, s. 230–240. ISSN 0927-6505. Dostupné z DOI: https://doi.org/10. 1016/j.astropartphys.2014.10.002.
- [67] SATO, T.; NIITA, K. Analytical functions to predict cosmic-ray neutron spectra in the atmosphere. *Radiation research.* 2006, roč. 166, č. 3, s. 544–555.
- [68] SENESI, R.; GIUSEPPE, G.; ANDREANI, C. et al. Fast neutron irradiation facilities for electronics and materials. Il Nuovo Saggiatore. 2017, roč. 33, s. 15–20.
- [69] BENNION, J. et al. Characterization and qualification of a neutron irradiation environment for neutron hardness assurance testing of electronic devices. *IEEE Transactions on Nuclear Science*. 1995, roč. 42, č. 6, s. 1886–1894. Dostupné z DOI: 10.1109/23.489231.
- [70] GEORGE, J. S.; KOGA, R.; MCMAHAN, M. A. Neutron soft errors in Xilinx FPGAs at Lawrence Berkeley National Laboratory. In: 2008 IEEE Radiation Effects Data Workshop. 2008, s. 118–123.
- [71] TRIGANO, A.; HUBERT, G.; MARFAING, J.; CASTELLANI, K. Experimental study of neutron-induced soft errors in modern cardiac pacemakers. *Journal of interventional cardiac electrophysiology*. 2012, roč. 33, s. 19–25.

- [72] MENKE, S. Proton and neutron irradiation tests of readout electronics of the ATLAS hadronic endcap calorimeter. In: 2012 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference Record (NSS/MIC). 2012, s. 1676– 1680. Dostupné z DOI: 10.1109/NSSMIC.2012.6551397.
- [73] KUSHPIL, V. et al. Radiation hardness of semiconductor avalanche detectors for calorimeters in future HEP experiments. *Journal of Physics: Conference Series.* 2016, roč. 675, č. 1, s. 012039. Dostupné z DOI: 10.1088/1742-6596/675/1/012039.
- [74] MIKHAYLOV, V. et al. Radiation hardness of Silicon Photomultipliers for CBM@FAIR, NA61@CERN and BM@N experiments. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 2018, roč. 912, s. 241–244. ISSN 0168-9002. Dostupné z DOI: https://doi.org/10.1016/j.nima.2017.11.066.
- [75] CBM: Compressed Baryonic Matter experiment at FAIR [online]. GSI Helmholtzzentrum für Schwerionenforschung, 2023 [cit. 2023-04-05]. Dostupné z: https://www.cbm.gsi.de/physics.
- [76] NA61/SHINE: The SPS Heavy Ion and Neutrino Experiment (NA61/SHINE) studies the properties of hadrons in collisions of beam particles with fixed targets [online]. CERN, 2023 [cit. 2023-04-05]. Dostupné z: https://home. web.cern.ch/science/experiments/na61shine.
- [77] KAPISHIN, M. Studies of baryonic matter at the BM@N experiment (JINR). Nuclear Physics A. 2019, roč. 982, s. 967–970. ISSN 0375-9474. Dostupné z DOI: https://doi.org/10.1016/j.nuclphysa.2018.07.014.
- [78] OLANDER, D. R. Fundamental aspects of nuclear reactor fuel elements: solutions to problems. 1976. Tech. zpr. California Univ., Berkeley (USA). Dept. of Nuclear Engineering.
- [79] WEISS, O. J.; GAGANIDZE, E.; AKTAA, J. Quantitative characterization of microstructural defects in up to 32 dpa neutron irradiated EUROFER97. *Journal of Nuclear Materials.* 2012, roč. 426, č. 1, s. 52–58. ISSN 0022-3115. Dostupné z DOI: https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2012.03.027.
- [80] DORAN, D. Neutron Displacement Cross Sections for Stainless Steel and Tantalum Based on a Lindhard Model. Nuclear Science and Engineering. 1972, roč. 49, č. 2, s. 130–144. Dostupné z DOI: 10.13182/NSE72-A35501.
- [81] MITCHELL, J.; LOGAN, C.; ECHER, C. Comparison of 16 MeV proton, 14 MeV neutron and fission neutron damage in copper. *Journal of Nuclear Materials*. 1973, roč. 48, č. 2, s. 139–142. ISSN 0022-3115. Dostupné z DOI: https://doi.org/10.1016/0022-3115(73)90148-7.
- [82] SIMAKOV, S.; FISCHER, U. Displacement damage induced in iron by gammas and neutrons under irradiation in the IFMIF test cell. *Journal of Nuclear Materials*. 2011, roč. 417, č. 1, s. 1321–1324. ISSN 0022-3115. Dostupné z DOI: https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2010.12.175.
- [83] MITCHELL, J. Exploratory experiments comparing damage effects of highenergy neutrons and fission-reactor neutrons in metals. 1978. Tech. zpr. California Univ., Livermore (USA). Lawrence Livermore Lab.

- [84] OGORODNIKOVA, O. et al. Radiation defect formation in bcc metals irradiated with high energy protons, self-ions and neutrons with different spectra. Problems of Atomic Science and Technology, Ser. Thermonuclear Fusion. 2021, roč. 44, s. 167–168. Dostupné z DOI: 10.21517/0202-3822-2021-44-2-167-168.
- [85] NOLTE, R. et al. Quasi-monoenergetic neutron reference fields in the energy range from thermal to 200 MeV. *Radiation Protection Dosimetry*. 2004, roč. 110, č. 1-4, s. 97–102. ISSN 0144-8420. Dostupné z DOI: 10.1093/rpd/ nch195.
- [86] VLASOV, M. IAEA programme on benchmark neutron fields applications for reactor dosimetry. 1976. Tech. zpr. International Atomic Energy Agency.
- [87] BC-501, BC-501A, BC-519 Liquid Scintillators. Saint-Gobain Ceramics & Plastics, 2018.
- [88] ÖHRN, A. et al. Calibration procedure for a neutron monitor at energies below 20 MeV. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 2008, roč. 592, č. 3, s. 405–413. ISSN 0168-9002. Dostupné z DOI: https://doi. org/10.1016/j.nima.2008.04.030.
- [89] BREDE, H. J. et al. Neutron yields from thick Be targets bombarded with deuterons or protons. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 1989, roč. 274, č. 1, s. 332–344. ISSN 0168-9002. Dostupné z DOI: https: //doi.org/10.1016/0168-9002(89)90399-9.
- [90] LEBEDA, O.; VAN LIER, E. J.; ŠTURSA, J.; RÁLIŠ, J.; ZYUZIN, A. Assessment of radionuclidic impurities in cyclotron produced ^{99m}Tc. Nuclear Medicine and Biology. 2012, roč. 39, č. 8, s. 1286–1291. ISSN 0969-8051. Dostupné z DOI: https://doi.org/10.1016/j.nucmedbio.2012.06.009.
- [91] BURIAN, J. et al. Report on the first patient group of the phase I BNCT trial at the LVR-15 reactor. *International Congress Series*. 2004, roč. 1259, s. 27– 32. ISSN 0531-5131. Dostupné z DOI: https://doi.org/10.1016/S0531-5131(03)01515-2.
- [92] CAPEK, J. et al. On the Weldability of Thick P355NL1 Pressure Vessel Steel Plates Using Laser Welding. *Materials.* 2021, roč. 14, č. 1. ISSN 1996-1944. Dostupné z DOI: 10.3390/ma14010131.
- [93] ŠTEFÁNIK, M. et al. The p(20) + Be reaction as a source of fusion relevant neutrons. Fusion Engineering and Design. 2020, roč. 161, s. 112053. ISSN 0920-3796. Dostupné z DOI: https://doi.org/10.1016/j.fusengdes.2020. 112053.
- [94] ŠTEFÁNIK, M. et al. Neutron field study of p(24) + Be source reaction using the multi-foil activation technique. Fusion Engineering and Design. 2019, roč. 146, s. 2053–2056. ISSN 0920-3796. Dostupné z DOI: https://doi.org/ 10.1016/j.fusengdes.2019.03.100.
- [95] STEFANIK, M. et al. Neutron spectrum determination of p + Be reaction for 30 MeV protons using the multi-foil activation technique. In: *EPJ Web of Conferences.* 2020, sv. 239, s. 17015.

- [96] ŠTEFÁNIK, M. et al. Neutron field study of p(35) + Be source reaction at the NPI Rez. Radiation Physics and Chemistry. 2019, roč. 155, s. 294-298. ISSN 0969-806X. Dostupné z DOI: https://doi.org/10.1016/j.radphyschem. 2018.06.046.
- [97] Detector Specification and Performance Data. Canberra Industries, 2013.
- [98] Q-value Calculator (QCalc) [online]. National Nuclear Data Center, 2012 [cit. 2023-03-29]. Dostupné z: https://www.nndc.bnl.gov/qcalc/.
- [99] HUANG, W.; WANG, M.; KONDEV, F.; AUDI, G.; NAIMI, S. The AME 2020 atomic mass evaluation (I). Evaluation of input data, and adjustment procedures. *Chinese Physics C.* 2021, roč. 45, č. 3, s. 030002. Dostupné z DOI: 10.1088/1674-1137/abddb0.
- [100] BHAT, M. R. Evaluated nuclear structure data file (ENSDF). In: Nuclear data for science and technology. 1992, s. 817–821.
- [101] WINTER, M. WebElements: THE periodic table on the WWW [online]. The University of Sheffield, 2022 [cit. 2023-03-29]. Dostupné z: https://www. webelements.com/.
- [102] J., B. M. NIST XCOM : Photon Cross Sections Database. [B.r.]. Dostupné také z: https://cir.nii.ac.jp/crid/1570572700840582016.
- [103] BERGER, M. et al. NIST standard reference database 8 (XGAM). National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD, USA. 2010.
- [104] SONZOGNI, A. A. NuDat 2.8 [online]. National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, 2015 [cit. 2023-03-29]. Dostupné z: https: //www.nndc.bnl.gov/nudat2/.
- [105] SOPPERA, N.; BOSSANT, M.; DUPONT, E. JANIS 4: An Improved Version of the NEA Java-Based Nuclear Data Information System. Nuclear Data Sheets. 2014, roč. 120, s. 294–296. ISSN 0090-3752. Dostupné z DOI: https: //doi.org/10.1016/j.nds.2014.07.071.
- [106] LONE, M.; FERGUSON, A.; ROBERTSON, B. Characteristics of neutrons from Be targets bombarded with protons, deuterons and alpha particles. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*. 1981, roč. 189, č. 2, s. 515–523. ISSN 0167-5087. Dostupné z DOI: https://doi.org/10.1016/ 0029-554X(81)90438-9.