České vysoké učení technické v Praze Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská

> Katedra jaderných reaktorů Obor: Jaderné inženýrství



Studium reakcí neutronů důležitých pro pokročilé jaderné systémy

Study of nuclear reactions important for advanced nuclear systems

DIPLOMOVÁ PRÁCE

Vypracoval: Bc. Jiří Jarošík Vedoucí práce: RNDr. Vladimír Wagner, CSc. Rok: 2021



Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská

Břehová 7 115 19 Praha 1

Katedra jaderných reaktorů

Akademický rok: 2020/2021

ZADÁNÍ DIPLOMOVÉ PRÁCE

Student:	Bc. Jiří Jarošík	
Studijní program:	Aplikace přírodních věd	
Obor:	Jaderné inženýrství	
Název práce česky:	Studium reakcí neutronů důležitých jaderné systémy	pro pokročilé

Název práce anglicky: Study of neutron reactions important for advanced nuclear systems

Pokyny pro vypracování:

- Využijte rešeršní část svého výzkumného úkolu týkající se různých zdrojů neutronů řízených urychlovačem, ještě detailněji se podívejte na vlastnosti a možnosti využití kvazimonoenergetických a bílých zdrojů neutronů využívajících cyklotrony v ÚJF AV ČR v Řeži.
- 2) Popište metodiku měření účinných průřezů pomocí aktivační metody a nejistoty, kterými je tato metodika zatížena.
- Ověřte možnosti měření účinných průřezů v případě, kdy při ozařování vzniká nuklid v základním i metastabilním stavu. Analyzujte případ, kdy se izomerní stav deexcituje emisí gama záření, které nemůžeme měřit.
- 4) Ověřte možnosti využití možnosti využití měření anihilačního píku při zjišťování účinného průřezu reakce produkující radionuklid, který je čistým pozitronovým zářičem, rozeberte všechny zdroje nejistot při využití této metody.
- 5) Podívejte se na měření excitačních funkcí některých neutronových reakcí důležitých pro pokročilé jaderné systémy a práci na metodikách určování energie neutronů na neutronových zdrojích ÚJF AV ČR

Doporučená literatura:

- Experimental Nuclear Reaction Data (EXFOR/CSISRS); Databáze JANIS http://www-nds.iaea.org/exfor/exfor00.htm; http://www.nea.fr/janis
- 2. Hnatowicz V.: Handbook of Nuclear Data for Neutron Activation Analysis. Evaluation of Gamma-Ray Spectra, Cs. Atomic Energy Commission, Nuclear Information Centre, 1986
- 3. Štefánik M.: Experimentálne stanovenie spektier urychlovačom riadených neutronových generátorov, PhD práce, KJR FJFI ČVUT, 2016
- 4. Vrzalová J.: Experimentální určení účinných průřezů neutronových reakcí důležitých pro urychlovačem řízené transmutační systémy, PhD práce, KJR FJFI ČVUT, 2016
- 5. Chudoba P.: Study of reaction cross-sections important for advanced nuclear systems, PhD práce, MFF UK, 2018
- 6. Koning A. et al.: *A nuclear reaction program TALYS*, NRG print 2007, <u>http://www.talys.eu</u>
- 7. P. Bem et al.: *The NPI cyclotron-based fast neutron facility*, in International Conference on Nuclear Data for Science and Technology 2007, Nice, 2007, pp. 555-558.

Jméno a pracoviště vedoucího práce:

RNDr. Vladimír Wagner, CSc. Ústav jaderné fyziky AV ČR

Jméno a pracoviště konzultanta:Ing. Milan Štefánik, Ph.D.
KJR FJFI ČVUT v PrazeDatum zadání diplomové práce:19. 10. 2020Datum odevzdání diplomové práce:3. 5. 2021

Doba platnosti zadání je dva roky od data zadání.

V Praze dne 19. 10. 2020

doc. Ing. Martin Kropík, CSc.

industry subscription

Ing. Jan Rataj, Ph.D.

Vedoucí katedry



prof. Ing. Igor Jex, DrSc.

// Děkan

Prohlášení

Prohlašuji, že jsem svou diplomovou práci vypracoval samostatně a použil jsem pouze podklady (literaturu, projekty, SW atd.) uvedené v přiloženém seznamu.

V Praze dne 30. 04. 2021

.....

Bc. Jiří Jarošík

Poděkování

Na tomto místě bych chtěl poděkovat především vedoucímu svých akademických prací RNDr. Vladimíru Wagnerovi, Csc. za nezměrnou ochotu při řešení všech problémů, které vyvstaly v průběhu psaní práce i analýzy experimentů. Děkuji i za cenné připomínky a rady. Velice si vážím naší dosavadní spolupráce.

Můj veliký dík patří také konzultantu Ing. Milanu Štefánikovi, Ph.D., zejména za neocenitelnou pomoc při realizaci ozařování zkoumaných vzorků a za užitečné připomínky. Dále bych chtěl poděkovat Ing. Mitjovi Majerlemu, Ph.D. z OJR ÚJF za výpočty neutronového spektra a pomoc s výpočetním kódem MCNPX. Děkuji i kolegům z OJS ÚJF, jmenovitě pak RNDr. Petru Chudobovi, Ph.D. a Ing. Markovi Fikrlemu, Ph.D. za poskytnutí údajů o kalibraci HPGe detektoru a modelu tohoto zařízení v kódu MCNPX.

V neposlední řadě bych rád vyjádřil svůj dík přítelkyni Klárce a celé mé rodině za podporu, pochopení a shovívavost projevovanou nejen během psaní této práce, ale během všech let studia.

Bc. Jiří Jarošík

Název práce:

Studium reakcí neutronů důležitých pro pokročilé jaderné systémy

Autor:	Bc. Jiří Jarošík
Studijní program: Obor: Druh práce:	Aplikace přírodních věd Jaderné inženýrství Diplomová práce
Vedoucí práce:	RNDr. Vladimír Wagner, CSc. ÚJF AV ČR, v.v.i., Řež
Konzultant:	Ing. Milan Štefánik, Ph.D. KJR FJFI ČVUT v Praze

Abstrakt:

Diplomová práce je zaměřena na možnosti experimentálního studia účinných průřezů reakcí rychlých neutronů s vybranými materiály pomocí aktivační metody. V textu jsou stručně nastíněny potřeby jaderných dat pro účely návrhu pokročilých jaderných systémů a jsou identifikovány potenciálně důležité reakce, pro které je v současné době nedostatek experimentálních dat. Uvedený je rovněž přehled možností produkce rychlých neutronů pomocí zdrojů řízených urychlovačem nabitých částic. Jsou popsány i různé přístupy ke spektrometrii těchto zdrojů. Část textu je věnována úvodu do spektrometrie gama záření v rozsahu nezbytném pro účely úspěšné analýzy ozářených vzorků. Diskutována je i možnost netradičního využití gama spektrometrie při analýze čistého pozitronového zářiče. V práci jsou uvedeny i detailní informace o průběhu experimentu, při kterém byly určeny účinné průřezy vybraných jaderných reakcí. Značná pozornost se věnuje i analýze nejistot a jejich šíření ve výpočtech. Výsledné hodnoty získaných účinných průřezů jsou srovnány s údaji dostupnými v knihovnách experimentálních i zhodnocených jaderných dat.

Klíčová slova:

Jaderná data, urychlovačem řízené zdroje neutronů, účinný průřez, aktivační detektory, spektrometrie gama záření.

Title: Study of nuclear reactions important for advanced nuclear systems

Author:	Bc. Jiří Jarošík
Degree Programme: Field of Study:	Application of natural sciences Nuclear Engineering
Supervisor:	RNDr. Vladimír Wagner, CSc. NPI CAS, p.r.i., Řež
Consultant:	Ing. Milan Štefánik, Ph.D. DNR FNSPE CTU in Prague

Abstract:

The master's thesis is focused on the possibilities of experimental research of fastneutron-induced reactions with chosen materials by means of an activation method. The nuclear data needs for advanced nuclear systems are briefly introduced in the text and potentially important reactions with lack of experimental data are identified. Fast-neutron production possibilities using accelerator driven neutron sources are presented. Various approaches to spectrometry of these sources are described. Part of the text is dedicated to the introduction to gamma ray spectrometry in the range vital for successful evaluation of irradiated samples. Unconventional use of gamma ray spectrometry for analysis of pure beta radiators is discussed. There is also detailed information about the experiment focused on the cross section determination for chosen nuclear reactions. Effort to estimate the uncertainties and analyse their propagation in calculations is also presented. The cross-sections determined within this thesis are compared to accessible figures from both evaluated and experimental nuclear data libraries.

Key words:

Nuclear data, accelerator-driven neutron sources, cross section, activation detectors, gamma spectrometry.

	Úvo	od	13	
1	Problematika jaderných dat			
	1.1	.1 Význam studia jaderných dat		
	1.2	Knihovny jaderných dat	15	
	1.3	Možnosti získávání nových jaderných dat	16	
	1.4	Mezinárodní spolupráce v oblasti jaderných dat	17	
	1.5	Účinné průřezy pro pokročilé jaderné systémy		
		1.5.1 Reaktory čtvrté generace	18	
		1.5.2 Urychlovačem řízené systémy	19	
		1.5.3 Fúzní reaktory	19	
	1.6	Reakce z HPRL zkoumané v rámci této práce	20	
2	Mo	žnosti produkce neutronů pomocí zdrojů řízených urychlovačem	21	
	2.1	Specifika urychlovačem řízených zdrojů neutronů	21	
	2.2	Neutronový zdroj NG-2 řízený cyklotronem U-120M	22	
		2.2.1 Izochronní cyklotron U-120M	22	
		2.2.2 Neutronový zdroj NG-2	23	
	2.3	Produkce neutronů pomocí terče z deuteria		
	2.4	Produkce neutronů pomocí terče z beryllia		
	2.5	9 Produkce neutronů pomocí terče z lithia		
	2.6	Produkce neutronů pomocí terče z těžkého materiálu	31	
3	Vyu	užití aktivačních detektorů pro měření účinných průřezů	32	
	3.1	Energetické spektrum gama záření	32	
	3.2	Odvození rovnice pro výpočet výtěžku reakce	33	
	3.3	Analýza energetického spektra gama záření	35	
		3.3.1 Plocha píku příslušné gama linky $S_{\rm pík}$	35	
		3.3.2 Intenzita příslušné gama linky I_γ	36	

		3.3.3	Píková účinnost detektoru $\epsilon_{\rm p}$	36
		3.3.4	Korekce na vliv samoabsorpce C_{abs}	38
		3.3.5	Korekce na vliv pravých kaskádních ko incidencí $C_{\rm COI}$	38
		3.3.6	Korekce na vliv nestability svazku $C_{\rm stab}$	39
		3.3.7	Korekce na vliv plošného zářiče $C_{\rm plocha}$	40
		3.3.8	Korekce na vliv mrtvé doby detektoru	42
	3.4	Fináln	í tvar rovnice pro výpočet výtěžku	42
4	Prů	běh ex	perimentu v ÚJF AV ČR v.v.i.	44
	4.1	Výběr	terčových materiálů	44
	4.2	Přípra	va vzorků před ozářením	45
	4.3	Průběl	h ozařování	47
	4.4	Analýz	za ozářených vzorků	47
	4.5	Účel a	porovnání dosavadních experimentů	48
5	Kas	kádní	rozpad	49
	5.1	Rovnie	e kaskádního rozpadu	49
		5.1.1	Bilance během ozařování	49
		5.1.2	Bilance po ukončení ozařování	50
		5.1.3	Výpočet výtěžku při kaskádním rozpadu	51
	5.2	Kaská	dní rozpad u yttria	51
	5.3	Kaská	dní rozpad u zlata	53
	5.4	Kaská	dní rozpad u kobaltu	54
6	Mo	žnosti	gama spektrometrické analýzy čistého pozitronového	
	záři	če		57
	6.1	Vliv b	eta zářiče na energetické spektrum gama záření	57
	6.2	Experi	mentální studium čistého pozitronového zářiče	58
	6.3	Simula	ace účinnosti detektoru v kódu MCNPX	59
	6.4	Výpoč	et výtěžku na základě analýzy anihilačního píku	61

7	Spe	ktrometrie urychlovačem řízeného zdroje neutronů	63
	7.1	Určení spektra neutronů z doby letu	63
	7.2	Určení spektra neutronů pomocí výpočetních kódů	65
	7.3	Ověření parametrů spektra analýzou Li terče	67
	7.4	Výsledné spektrum neutronů emitovaných Li terčovou stanicí	67
	7.5	Ověření popisu neutronového pole pomocí aktivačních detektorů $\ . \ .$	68
8	VýĮ	počet účinných průřezů	70
	8.1	Vliv spojitého neutronového pozadí na výtěžek reakce	70
	8.2	Výpočetní kód TALYS	71
	8.3	Korekce na vliv spojitého neutronového pozadí na výtěžek reakce $\ . \ .$	72
	8.4	Rovnice pro výpočet účinných průřezů	74
9	Zho	odnocení nejistot a výsledky měření	76
	9.1	Nejistota účinného průřezu	76
	9.2	Nejistota určení energie	78
	9.3	Výsledné hodnoty účinných průřezů	79
	9.4	Diskuze	82
	Závěr Seznam obrázků Seznam tabulek Seznam zkratek Seznam veličin		86
			87
			89
			90
			93
	Příloha A: Excitační funkce sledovaných reakcí		95
	Reference		

Úvod

Co nejpřesnější znalost jaderných dat má zcela klíčový význam nejen pro účely návrhu a optimalizace celé řady zařízení využívajících jaderné reakce, ale také při snahách formulovat stále obecnější teoretické modely popisující strukturu atomových jader a jejich interakce. Ukazuje se, že pro účely rozvoje pokročilých jaderných systémů, kam lze zařadit například jaderné reaktory čtvrté generace, urychlovačem řízené transmutační systémy či případná budoucí fúzní zařízení, je nezbytné rozšířit současné knihovny zhodnocených jaderných dat. Zejména je třeba věnovat zvýšenou pozornost studiu reakcí rychlých neutronů s energiemi až v řádu jednotek megaelektronvoltů (MeV), u vybraných koncepcí dokonce desítek MeV. Pro tuto oblast energií je u celé řady reakcí typický nedostatek experimentálních údajů. Dostupné výsledky měření jsou navíc často zatíženy značnými nejistotami a není výjimkou, že se údaje od různých experimentátorů významně liší. Mnohé vědecké instituce po celém světě intenzivně pracují na odstranění těchto nedostatků. Ovšem vzhledem k velkému množství známých nuklidů, nemalému počtu potenciálně zajímavých reakcí a potřebě studovat široké rozpětí energií interagujících částic, je při získávání nových údajů zapotřebí velmi rozsáhlé experimentální činnosti.

Rešeršní část předkládané práce nastiňuje problematiku získávání a sdílení jaderných dat, vyzdvihuje důležitost mezinárodní spolupráce v této oblasti a snaží se ukázat, proč i dnes, téměř 80 let po spuštění prvního jaderného reaktoru na světě (Chicago Pile-1, 1942 [1]), je stále nutné měřit nová jaderná data a stávající hodnoty zpřesňovat. Následuje přehled možností produkce rychlých neutronů pomocí zdrojů řízených urychlovačem nabitých částic. Zvláštní pozornost je věnována především zdrojovým reakcím vedoucím ke vzniku kvazimonoenergetických neutronových spekter. Ve stručnosti jsou zmíněny základy spektrometrie gama záření a využití této metody při analýze ozářených aktivačních detektorů. Diskutují se a na experimentálních datech se také ilustrují některá netradiční využití gama spektrometrie, například možnosti analýzy čistého pozitronového zářiče.

Cílem této práce je poskytnout ucelený pohled na problematiku měření účinných průřezů pomocí aktivační metody. Proto je snaha nastínit motivaci pro experimentální získávání stále nových jaderných dat, uvést potřebné vybavení a standardní postupy používané při těchto experimentech a analýze získaných dat. Obecné principy jsou vždy následně aplikovány na konkrétní vybavení a postupy používané na pracovištích Ústavu jaderné fyziky Akademie věd České republiky (ÚJF AV ČR, v.v.i.), kde byla uskutečněna experimentální část předkládané práce. Z popisu analýzy získaných dat a z prezentovaných výsledků je možné si udělat představu o komplexnosti studované problematiky a nejistotách spojených s jednotlivými fázemi experimentu.

1 Problematika jaderných dat

Jaderná data představují kvantitativní výsledky vědeckého bádání v oblasti studia vlastností atomových jader a jejich interakcí [2]. Příkladem zkoumaných vlastností jader jsou poločasy rozpadu, struktura excitovaných stavů, energie a intenzita emitovaných gama fotonů a mnoho dalších. Pro kvantifikaci popisu reakce dopadajících částic s atomovými jádry se zavádí veličina účinný průřez, která představuje míru pravděpodobnosti, že nastane konkrétní jaderná reakce (štěpení, radiační záchyt neutronu, emise nabité částice atd.) [3]. Tato kapitola je věnována nastínění významu jaderných dat a důležitosti mezinárodní spolupráce v dané oblasti. Je zmíněn i krátký přehled reakcí důležitých pro pokročilé jaderné systémy, pro které je vážný nedostatek experimentálních dat.

1.1 Význam studia jaderných dat

Jaderná fyzika je poměrně mladý obor, který vznikl ve dvacátém století objevem atomového jádra (Ernest Rutherford, 1911 [4]). Jedná se o disciplínu, která od svého vzniku zažívá velmi dynamický rozvoj a inženýrské aplikace z ní odvozené významně ovlivňují mnohé oblasti lidské činnosti od energetiky, přes medicínu, diagnostiku materiálů, až po výzkum vesmíru a mnoho dalšího. Všechny tyto rozmanité obory však stojí na společném základě, a tím je výborná znalost nejrůznějších jaderných dat kvantifikujících vlastnosti jader a jejich reakcí.

V počátcích jaderné éry, kdy vznikala první experimentální jaderná zařízení, bylo primárním cílem ověření funkčnosti různých koncepcí paliva, chladiva a moderátoru. Návrh i účel těchto zařízení byl odlišný od současné generace jaderných reaktorů. Mnohé charakteristiky prvních štěpných zařízení musely být zjišťovány při integrálních experimentech na různě komplexních fyzických modelech a replikách částí reaktoru. I bez rozsáhlých znalostí přesných jaderných dat se však podařilo vytvořit plně funkční reaktory.

S rozvojem výpočetní techniky se masivně začalo využívat počítačového modelování. K tomuto účelu je však nezbytné znát celou řadu jaderných dat, protože právě jaderná data dávají fyzikální význam matematickým modelům, které jsou používány k návrhu a popisu činnosti nejrůznějších zařízení využívajících jaderné procesy. Počítačové modely umožňují na rozdíl od zmíněných experimentů nejen ověření funkčnosti zamýšlené koncepce, ale především optimalizaci zkoumaného návrhu. Je nutné si uvědomit, že mezi funkčním a optimalizovaným reaktorem je propastný rozdíl. Ačkoliv lze první jaderné reaktory označit slovem funkční, jen těžko lze jejich návrh považovat za optimální například z bezpečnostního či ekonomického hlediska. Právě snaha o optimalizaci je hlavním důvodem neustálého intenzivního výzkumu v oblasti jaderných dat. Je zřejmé, že spolehlivost a přesnost a spolehlivostí dostupných jaderných dat. Nejistota jaderných dat je jednou z nejdůležitějších složek výsledných nejistot simulací v reaktorové fyzice [5]. Zaručení bezpečnosti jaderného reaktoru vyžaduje konzervativní přístup při návrhu dílčích komponent i formulaci provozních předpisů tak, aby všechna požadovaná bezpečnostní kritéria byla dodržena i při nejméně příznivých hodnotách, kterých mohou sledované parametry v rámci svých nejistot nabývat. Minimalizace nejistot výsledků počítačových modelů tedy vede na menší požadavky na robustnost jednotlivých zařízení a provozní parametry nemusí být voleny tak konzervativně. Tím lze omezit technické problémy a ekonomické ztráty plynoucí ze zbytečně konzervativního přístupu, který je nutné s ohledem na zajištění požadované bezpečnosti zvolit, pokud účinné průřezy vybraných reakcí nejsou známy, nebo jsou zatíženy velkými nejistotami [6].

Přestože měření účinných průřezů celé řady jaderných reakcí probíhá již desítky let, stále je nutné v této oblasti provádět celou řadu experimentů. Jaderná data charakterizující reakce důležité pro současnou generaci jaderných reaktorů jsou již většinou poměrně dobře známá. Například pro účely výzkumu a vývoje pokročilých jaderných systémů je však jaderných dat stále nedostatek, což je detailněji popsáno v sekci 1.5. Potřeba nových jaderných dat navíc není omezená pouze na průmyslové aplikace, je významná i pro medicínu, astrofyziku či validaci a zpřesnění teoretických modelů popisujících atomová jádra a jejich interakce. Proto i dnes, téměř 80 let po spuštění prvního jaderného reaktoru na světě (Chicago Pile-1, 1942 [1]), je stále nutné měřit nová jaderná data a stávající hodnoty zpřesňovat.

1.2 Knihovny jaderných dat

Jaderná data jsou ukládána ve standardizovaných formátech do obsáhlých databází, takzvaných knihoven, které umožňují jejich snadné sdílení. Existuje několik typů knihoven jaderných dat.

Výsledky měření publikované autory z výzkumných ústavů po celém světě jsou uchovávány v knihovnách experimentálních dat, například v knihovně EXFOR [7], která v současnosti obsahuje více než 23 tisíc sad měření (přes 18,5 milionů naměřených hodnot) [8]. Experimentálně určené velikosti účinných průřezů pro konkrétní reakci jsou v knihovně EXFOR uloženy jako sada diskrétních hodnot pro různé energie, při kterých probíhala uvedená měření.

Před použitím v praktických aplikacích je nezbytné zhodnocení (evaluace) experimentálních hodnot účinných průřezů, které spočívá v analýze těchto dat a srovnání s teoretickými hodnotami určenými na základě různých jaderných modelů. Výsledkem zhodnocení jsou tabulky, které vznikly proložením experimentálních dat, a představují "nejlepší" hodnoty jaderných dat určené na základě dostupných údajů. Zároveň jsou definovány funkce umožňující interpolaci účinných průřezů pro libovolnou energii ve zhodnoceném rozsahu. Tabulky s přesně definovaným způsobem interpolace tedy představují spojitou závislost účinného průřezu na energii, která je nezbytná pro použití ve výpočetních kódech. Samotný proces zhodnocení je velmi komplikovaný a jeho výsledek je do jisté míry ovlivněn použitým teoretickým modelem i úsudkem odborníka, který zhodnocení provádí. Kvůli tomu jsou mezi jednotlivými zhodnocenými knihovnami jaderných dat (či různými verzemi těchto knihoven) v mnohých případech značně rozdílné výsledky pro stejné reakce, což ilustruje i srovnání v příloze A. Existuje celá řada knihoven zhodnocených jaderných dat. Pro univerzální použití jsou v současnosti běžně používané například ENDF/B-VIII.0 (USA) [9], JEFF-3.3 (Evropa) [10], JENDL-4.0 (Japonsko) [11] a celá řada dalších. Pro některé konkrétní aplikace existují specializované knihovny, například pro účely dozimetrie IRDFF [12] či pro fúzní aplikace EAF-2010 [13]. Snadné nadnárodní použití zaručuje ukládání dat ve standardizovaném formátu ENDF-6 (mezinárodní formát zhodnocených dat popisujících jaderné reakce) a ENSDF (mezinárodní formát zhodnocených dat popisujících strukturu jader). Na základě požadavků na zpřesňování jaderných dat vznikají s rozvojem procesů zhodnocení a získáváním nových experimentálních hodnot nové zhodnocené knihovny či aktualizované verze starších knihoven.

Propojení mezi numerickými databázemi, detaily o procesu zhodnocení a vědeckými články s publikovanými experimentálními údaji zajišťují knihovny bibliografických dat. Příkladem takové knihovny je CINDA (Computer Index of Nuclear Reaction Data) [14].

1.3 Možnosti získávání nových jaderných dat

V principu existují dva způsoby získávání nových jaderných dat. Prvním způsobem je experimentální určení, druhým pak výpočet na základě teoretických modelů. Doposud však nejsou známy přesné univerzální teoretické modely, které by umožnily popis atomového jádra a jeho interakcí v takové míře, že by bylo možné libovolná jaderná data odvozovat pouze na základě řešení těchto modelů. V procesu získávání nových jaderných dat, ověřování závěrů teoretických modelů a snahách tyto modely zlepšovat stále mají nezastupitelnou roli experimenty. Vzhledem k značnému množství známých nuklidů, nemalému počtu možných reakcí a širokému rozpětí mnoha řádů potenciálně důležitých energií interagujících částic je i pro světové velmoci prakticky nemožné získat dostatečně obsáhlou knihovnu jaderných dat bez intenzivní mezinárodní spolupráce.

1.4 Mezinárodní spolupráce v oblasti jaderných dat

Za počátek mezinárodní spolupráce v oblasti jaderných dat lze do jisté míry považovat Mezinárodní konferenci o mírovém využití jaderné energie konané v Ženevě v roce 1955. Dalším důležitým milníkem bylo založení Mezinárodní agentury pro atomovou energii (IAEA) v roce 1957. Brzy po svém vzniku se IAEA ujala správy nad uchováváním a mezinárodním sdílením jaderných dat. Pro usnadnění sdílení experimentálních dat mezi výzkumnými institucemi po celém světě byla klíčová konference v roce 1969 v Moskvě, kde byl ustanoven mezinárodní standard pro zaznamenávání experimentálních údajů EXFOR (EXchange FORmat) [2].

Důležitou roli v mezinárodní spolupráci v oblasti jaderných dat hraje i Agentura pro atomovou energii v rámci Organizace pro hospodářskou spolupráci a rozvoj (*Nuclear Energy Agency within the framework of The Organisation for Economic Co-operation and Development*, NEA OECD). Tato organizace sdružuje desítky států po celém světě (včetně České republiky), které využívají a dále rozvíjí jaderné technologie. Kromě celé řady dalších aktivit intenzivně podporuje spolupráci v oblasti měření i zhodnocení (evaluace) jaderných dat. Jednou z klíčových činností NEA v této oblasti je správa databáze požadavků na zpřesnění jaderných dat (*High Priority Request List*, HPRL) [15, 16]. Jedná se o požadavky, které pochází zejména od uživatelů jaderných dat zabývajících se výpočty pro průmyslovou aplikaci jaderných technologií. Každý požadavek obsahuje:

- Specifikaci nuklidu a kýžené jaderné reakce.
- Specifikaci rozsahu energií, které jsou předmětem zájmu zadavatele.
- Specifikaci požadavků na nejistoty měření.
- Stručné informace o zadavateli a účelu jeho požadavku.
- Odkazy na literaturu s podrobnostmi o studované problematice.

Databáze HPRL, která je dostupná online k nahlédnutí na webové stránce [17], poté slouží jako podklad pro plánování nových měření účinných průřezů. Je rozdělena do tří kategorií na urgentní požadavky, obecné požadavky a požadavky pro speciální účely. Neméně důležitou aktivitou NEA je podpora skupin odborníků, kteří se dlouhodobě zabývají analýzou zhodnocených knihoven jaderných dat s cílem zlepšit jejich kvalitu a úplnost pro potřeby konkrétních jaderných technologií. Výsledkem práce těchto odborníků jsou rozsáhlé dokumenty shrnující požadavky na jaderná data pro účely výzkumu a vývoje pokročilých technologií.

1.5 Účinné průřezy pro pokročilé jaderné systémy

Za podpory NEA OECD proběhla i detailní analýza potřeb jaderných dat pro účely výzkumu a vývoje pokročilých jaderných systémů, zejména reaktorů čtvrté generace (Gen. IV), urychlovačem řízených systémů (ADS) a fúzních reaktorů. Mimo jiné byly provedeny rozsáhlé analýzy a výpočty s cílem určit vliv nejistot účinných průřezů jaderných reakcí vyvolaných neutrony na vybrané integrální parametry aktivní zóny těchto systémů (koeficient násobení, koeficienty reaktivity, distribuci výkonu atd.). Díky tomu se podařilo shrnout, jaké reakce je třeba lépe proměřit a zhodnotit, jaký rozsah energií je důležitý a jaké jsou požadavky na nejistoty jaderných dat. Zmiňované analýzy jsou k nahlédnutí v obsáhlých dokumentech [18, 19, 20]. Pro účely této práce jsou v následujících odstavcích shrnuty pouze nejdůležitější závěry uvedených studií.

1.5.1 Reaktory čtvrté generace

Nejistoty integrálních parametrů aktivní zóny většiny zkoumaných pokročilých systémů vypočítaných s použitím současných knihoven jaderných dat jsou dostatečné pro rané fáze návrhu těchto systémů. Nejistoty koeficientu násobení se pohybují obvykle pod 2%, nejistoty koeficientů reaktivity pod 20% [19]. Pro účely optimalizace však bude potřeba významně zlepšit přesnost jaderných dat u mnohých reakcí za účelem minimalizace nejistot a tolerancí v návrhu těchto zařízení, at už z bezpečnostních či ekonomických důvodů. Díky značnému úsilí věnovanému studiu účinných průřezů pro štěpení a radiační záchyt u štěpných a štěpitelných nuklidů používaných v současných jaderných reaktorech (²³⁵U, ²³⁹Pu, ²³⁸U) jsou tyto reakce velmi dobře proměřeny a zatíženy poměrně malými nejistotami. Toho lze s výhodou využít i při návrhu pokročilých jaderných systémů. Zejména při použití paliva typu MOX či snaze zvyšovat vyhoření je však nutné snížit nejistoty účinných průřezů pro štěpení a radiační záchyt na vybraných izotopech plutonia, americia a curia. Při použití alternativních typů chladiv (tekuté kovy, tekuté soli atd.) je typickým problémem nedostatečná znalost účinných průřezů pro rozptyl na těchto materiálech.

Požadavky na jaderná data se netýkají jen návrhu a provozu jaderného reaktoru, ale také zadní části palivového cyklu (skladování, přepracování a ukládání použitého jaderného paliva). Problematické jsou ve zmíněné oblasti opět zejména vyšší transurany.

1.5.2 Urychlovačem řízené systémy

Urychlovačem řízené systémy (ADS) představují z hlediska potřeb nových jaderných dat specifickou kategorii. Při provozu ADS systémů je nutné počítat i s neutrony s významně vyššími energiemi (desítky až nižší stovky MeV u vybraných reakcí [21]), pro které je nedostatek experimentálně určených hodnot účinných průřezů. Navíc v palivu ADS budou ve vysoké míře zastoupeny vyšší transurany, které bude tento typ reaktoru také spalovat. Ovšem pro většinu těchto minoritních aktinoidů je většina potenciálně důležitých reakcí nedostatečně probádána a nejistoty současných hodnot účinných průřezů jsou často i o řád větší, než je požadováno pro optimální návrh ADS. Vyšší obsah transuranů v palivu je typický pro reaktory zaměřené na transmutaci použitého jaderného paliva z konvenčních typů reaktorů. Není tedy čistě doménou ADS, ale také kritických transmutačních systémů.

Nezbytné je také zajistit dostatek přesných jaderných dat nejen pro provoz, ale také pro účely dozimetrie a spektrometrie neutronových polí těchto zařízení. Monitorování polí rychlých neutronů je poměrně komplikovanou záležitostí. Pro offline měření lze použít například vhodné aktivační detektory. Více informací o perspektivních materiálech pro tyto účely lze nalézt v sekci 4.1.

1.5.3 Fúzní reaktory

Účinné průřezy celé řady reakcí indukovaných neutrony musí být známy pro všechny nuklidy obsažené v konstrukčních materiálech, chladivu, stínění a dalších komponentách připravovaných reaktorů. Nejvyšší přesnost zmíněných účinných průřezů je vyžadována v okolí¹ 14 MeV. Důležité je zejména studium nepružného rozptylu neutronů [22]. Pro účely návrhu fúzních reaktorů je velmi významné také studium radiačního poškozování konstrukčních materiálů. Intenzivní výzkum zmíněné problematiky probíhá v mezinárodním zařízení *The International Fusion Materials Irradiation Facility* (IFMIF) [23]. Ačkoliv nejdůležitější je oblast energií do 20 MeV, u mnohých reakcí probíhá výzkum i pro energie v řádu vyšších desítek MeV. Radiační poškozování je samozřejmě důležité i pro ostatní pokročilé systémy. Mohou se částečně lišit potenciálně důležité materiály, a také požadavky na studované energie jsou zpravidla nižší (samozřejmě s výjimkou ADS).

¹Energie neutronu uvolněného při syntéze deuteronu s tritonem je přibližně 14 MeV.

1.6 Reakce z HPRL zkoumané v rámci této práce

Experimentální část předkládané diplomové práce je věnována měření účinných průřezů reakcí potenciálně užitečných pro pokročilé jaderné systémy. Konkrétně se jedná o reakce rychlých neutronů s energií v řádu desítek MeV s vybranými zejména konstrukčními materiály. Při výběru vhodných materiálů pro experiment byla snaha zohlednit potřeby současného výzkumu a vývoje. Proto byly zkoumány některé reakce uvedené v databázi High priority request list NEA OECD [17]. Pro účely zpřesnění a doplnění knihovny International Reactor Dosimetry and Fusion File (IRDFF) [12] je požadavek měřit účinné průřezy reakcí rychlých neutronů. Konkrétně se jedná o reakce s vysokými prahovými energiemi, zejména (n, xn) reakce. Kýžený rozsah energií neutronů je od prahové energie až po 100–200 MeV. Z devíti doporučených materiálů byly pro účely této práce zvoleny čtyři, konkrétně bismut, kobalt, yttrium a zlato. Je kladen důraz na minimalizaci nejistot, které by se podle požadavků HPRL měly pohybovat v rozmezí 5 až 10%, podobně jako v nejlepších dosud provedených experimentech. Praktické uplatnění naměřených hodnot je zamýšleno pro účely urychlovačem řízených zdrojů neutronů, reaktorů ADS či dozimetrii rychlých neutronů.

2 Možnosti produkce neutronů pomocí zdrojů řízených urychlovačem

Neutrony jsou spolu s protony vázány v atomových jádrech silnou interakcí. Existuje celá řada jaderných reakcí, které vedou na uvolnění neutronů z jádra. Svazky volných neutronů nacházejí svá uplatnění v nejrůznějších oborech lidské činnosti od základního vědeckého výzkumu přes rozličná využití v průmyslu až k archeologickým či medicínským aplikacím a mnoho dalších. Každá z těchto aplikací vyžaduje neutronové pole se specifickými parametry (energetické spektrum, hustota toku neutronů, prostorová závislost atd.). Proto bylo vyvinuto mnoho zdrojů neutronů založených na různých jaderných reakcích. V zásadě lze zmíněné zdroje rozdělit do dvou skupin. První skupinu lze označit jako zdroje nízké intenzity, mezi které se řadí radionuklidové zdroje neutronů. Jedná se o zdroje založené na spontánním štěpení vybraných radionuklidů, nebo kombinaci silných alfa, resp. gama zářičů s vhodným konverzním materiálem, ze kterého jsou neutrony uvolňovány prostřednictvím (α , n), resp. (γ , n) reakcí. Do druhé skupiny se řadí zdroje vysoké intenzity, kterými jsou jaderné reaktory a zdroje řízené urychlovačem nabitých částic [24]. Co se týče možností studia reakcí rychlých neutronů potenciálně důležitých pro pokročilé jaderné systémy, je perspektivní zejména použití poslední zmíněné technologie, tedy zdrojů řízených urychlovačem nabitých částic, kterým je věnována celá tato kapitola.

2.1 Specifika urychlovačem řízených zdrojů neutronů

Jak již bylo zmíněno v úvodu této kapitoly, existují v podstatě pouze dva druhy zdrojů neutronů, které dokáží poskytovat intenzivní neutronové svazky. Jedná se o jaderné reaktory a zdroje řízené urychlovačem. U jaderných reaktorů je však silně limitována energie produkovaných neutronů. Střední hodnota energie okamžitých neutronů ze štěpení odpovídá přibližně 2 MeV, naprostá většina produkovaných neutronů má energii nižší než 10 MeV [25]. V oblasti energií neutronů v řádu desítek a stovek MeV představují urychlovačem řízené zdroje v podstatě jediný dostupný zdroj.

Neutron, jak již napovídá jeho název, je elektricky neutrální částice, což znemožňuje jeho urychlení pomocí elektrického pole. Urychlovačem řízené zdroje rychlých neutronů jsou tedy založeny na interakci urychlených nabitých částic s terčem z vhodného materiálu, ve kterém jsou prostřednictvím jaderných reakcí produkovány neutrony. Volbou terčového materiálu, tloušťky terče a druhu urychlovaných nabitých částic lze ovlivnit výsledné spektrum produkovaných neutronů. Obvykle se rozlišují dva typy neutronových spekter. První typ představují svazky se spojitým širokým spektrem neutronů, ve kterém není žádná energie dominantní. Tato spektra se také nazývají bílá. Druhý typ představují svazky neutronů převážně z úzkého intervalu energií, takzvané monoenergetické svazky.

Pojmem tenký terč se označuje vzorek materiálu takové tloušťky, že významně neovlivní intenzitu a energii dopadajícího svazku částic. Při použití monoenergetického svazku nabitých částic a tenkého terče lze často produkovat monoenergetická spektra neutronů. Naopak v tlustém terči dochází postupně k degradaci dopadajícího svazku nabitých částic, často i k jeho úplnému zastavení. Nabité částice v tomto terči vlivem ionizace postupně ztrácí energii a reakce vedoucí na vznik neutronů jsou vyvolávány širokým spektrem nabitých částic od maximální energie odpovídající původní energii svazku až po prahové energie sledovaných reakcí. To vede k produkci bílého spektra neutronů. Je zřejmé, že odlišení toho, zda se jedná o tlustý či tenký terč silně záleží na druhu a energii dopadajících částic. V následujících odstavcích jsou uvedeny typické terčové materiály používané k produkci neutronů a jejich specifika. Bílá spektra nachází široké uplatnění při studiu radiačního poškozování materiálů, testování radiační odolnosti elektronických zařízení, neutronové radioterapii či pro účely integrální validace jaderných dat. Monoenergetická neutronová spektra jsou používána zejména při měření diskrétních hodnot účinných průřezů pro konkrétní energie neutronů.

2.2 Neutronový zdroj NG-2 řízený cyklotronem U-120M

Produkci rychlých neutronů na pracovištích ÚJF zajišťuje především neutronový zdroj NG-2 řízený cyklotronem U-120M. Před rozborem konkrétních možností produkce různých neutronových polí je vhodné tato zařízení stručně představit.

2.2.1 Izochronní cyklotron U-120M

Cyklotron je typickým zástupcem skupiny rezonančních kruhových urychlovačů. Urychlované nabité částice, případně ionty, jsou vpravovány do válcové vakuové komory cyklotronu poblíž jejího středu. V komoře jsou umístěny dvě duté elektrody polokruhovitého půdorysu zvané duanty, které jsou připojeny ke zdroji vysokofrekvenčního napětí. V mezeře mezi duanty dochází k urychlení nabitých částic pomocí elektrického pole s periodicky se měnící polaritou. Uvnitř duantu nedochází k urychlování částice, pouze k zakřivení její trajektorie vlivem magnetického pole, jehož indukční čáry jsou kolmé na směr pohybu. Částice se pohybují po soustředných kružnicích, jejichž poloměr roste s každým průchodem částice mezerou. Aby bylo možné tímto způsobem svazky částic efektivně urychlovat, musí být úhlová frekvence jejich oběhu $\omega_{\rm C}$ po celou dobu urychlování konstantní [3]:

$$\omega_{\rm C} = \frac{q B}{m} = \text{konst.},\tag{2-1}$$

kde q představuje náboj urychlované částice (resp. iontu) s hmotností m a B je velikost magnetické indukce. Veličina $\omega_{\rm C}$ je též nazývána cyklotronovou frekvencí. U tzv. klasického cyklotronu je magnetické pole v každém místě vakuové komory

stejné, magnetická indukce je všude konstantní. Ze vztahu (2-1) je zřejmé, že v klasickém cyklotronu je $\omega_{\rm C}$ konstantní pouze pro takové kinetické energie částic, při kterých se prakticky neprojeví relativistický růst hmotnosti. Modifikací klasického cyklotronu, která umožní urychlovat na vyšší energie, je tzv. izochronní cyklotron (z řeckého *isos* = stejný, *chronos* = čas). Magnetické pole izochronního cyklotronu je speciálně tvarované tak, aby *B* vhodně rostla se zvětšujícím se poloměrem oběhu částice a kompenzovala tak relativistický růst její hmotnosti. To umožní zachovat konstantní velikost úhlové frekvence oběhu částic.

Izochronní cyklotron U-120M je od roku 1977 provozován na pracovišti ÚJF v Řeži, kam byl dopraven z SÚJV Dubna. Od své instalace prošel celou řadou úprav a modernizací. Dnes je schopen poskytovat svazky kladných i záporných iontů (${}^{1}H^{-}$, ${}^{1}H^{+}$, ${}^{2}H^{-}$, ${}^{2}H^{+}$, ${}^{3}He^{2+}$, ${}^{4}He^{2+}$). V závislosti na typu částic je možné urychlovat v širokém rozsahu energií 1 až 55 MeV s proudy svazku v rozmezí jednotek nanoampér až po desítky mikroampérů. Režimy urychlování kladných, resp. záporných iontů se liší nejen energií a intenzitou poskytovaného svazku, ale také způsobem jeho vyvedení. V případě urychlování kladných iontů je vyvedení svazku z vakuové komory cyklotronu zajištěno přiloženým magnetickým polem, v případě záporných iontů pomocí tenké přebíjecí fólie z uhlíku, která odstraněním několika elektronů zajistí konverzi aniontu na kationt. Při provozu v režimu urychlování záporných iontů je svazek iontovodem vyveden přímo v cyklotronové hale, v režimu kladných iontů je svazek vyveden do sousední experimentální haly.

2.2.2 Neutronový zdroj NG-2

K produkci rychlých neutronů ve spojení s cyklotronem U-120M historicky sloužilo několik takzvaných terčových stanic. Pojmem terčová stanice se označuje zařízení umožňující vyvedení svazku nabitých částic z evakuovaného prostředí cyklotronu na terč z vhodného materiálu, ve kterém je prostřednictvím jaderných reakcí zajištěna produkce neutronů. Zároveň zajištuje chlazení terče a definuje prostor pro umístění ozařovaných vzorků. Pro každý typ terče má příslušná terčová stanice svá specifika. Vývoj a výrobu těchto zařízení zajištují odborníci z ÚJF. Odpovídající terčová stanice se před provozem připojí na trasu vyvedení svazku záporných iontů z cyklotronu U-120M a označuje se jako neutronový zdroj NG-2. V závislosti na volbě terčové stanice je umožněno poskytovat neutrony s bílým či kvazimonoenergetickým spektrem. Cyklotron U-120M s připojenou lithiovou terčovou stanicí je ukázán na Obr. 2.1.



Obr. 2.1: Izochronní cyklotron U-120M s připojenou lithiovou terčovou stanicí. Foto autor práce.

2.3 Produkce neutronů pomocí terče z deuteria

Deuterium spolu s berylliem a lithiem představují skupinu vhodných materiálů používaných k produkci neutronů na urychlovačem řízených zdrojích. Deuteriové terče jsou typicky konstruovány s tlustou vrstvou plynného D_2 , případně těžké vody (D_2O) . Ukázka energetického spektra neutronů produkovaných při reakcích nabitých částic s tlustým terčem z deuteria je uvedena na Obr. 2.2.

Významné reakce

Reakce protonu s deuteriem vede na trojčásticový rozpad ${}^{2}D(p, n)2p$. Této reakce se využívá při konstrukci zdrojů s bílým spektrem neutronů. Zdroje založené na reakci deuteronu s deuteriem ${}^{2}D(d, n){}^{3}He$ produkují v rozsahu energií přibližně 2 až 8 MeV monoenergetické svazky neutronů. S rostoucí energií dopadajících deuteronů se objevuje nezanedbatelné spojité pozadí. Pro energie přibližně nad 12 MeV je výsledné spektrum bílé [26]. Reakce s protony i deuterony na deuteriovém terči v oblasti desítek MeV vedou na produkci tvrdšího spektra neutronů a významně větší výtěžky, než v případě reakcí s berylliem [27].

Zkušenosti s tímto terčem v ÚJF AV ČR

Deuteriový terč může být zkonstruován jak s plynnou, tak s kapalnou náplní. Kapalná náplň je realizována těžkou vodou. Na OJR ÚJF AV ČR byly v minulosti vyvíjeny a provozovány oba typy terčů. V případě použití plynného deuteria je nezbytné udržovat v terči vysoký tlak, často v řádu desítek barů [27], aby měl terčový materiál dostatečnou hustotu. Přesto je umožněn provoz pouze pro nízké intenzity svazku nabitých částic, protože při vyšších intenzitách dochází v místě kontaktu svazku s plynnou náplní k silnému lokálnímu ohřevu, což vede na významný pokles hustoty D₂ v dané oblasti [28]. Ve snaze provozovat deuteriový terč při vyšších intenzitách svazku se později přikročilo k nahrazení plynného D₂ těžkou vodou. Postupně bylo vytvořeno několik verzí těžkovodního terče, kdy byl optimalizován způsob recirkulace a chlazení D₂O, aby se omezil vznik parních a plynových bublin vlivem lokálního varu a disociace molekul těžké vody při kontaktu se svazkem nabitých částic [29]. Použití těžké vody umožňuje reakce nabitých částic nejen s deuteriem, ale i s kyslíkem. Avšak v energetickém rozsahu protonů používaných v ÚJF dosahuje účinný průřez reakce ²D(p, n)2p řádově vyšších hodnot než v případě reakcí ¹⁶O(n, *x*n) [28].



Obr. 2.2: Ukázka energetického spektra neutronů produkovaných při reakcích nabitých částic s tlustým terčem z deuteria [27].

2.4 Produkce neutronů pomocí terče z beryllia

Přestože reakce na deuteriovém terči vedou na lepší výtěžky neutronů, k produkci bílých spekter neutronů se nejčastěji používá beryllium. Je to dáno zejména složitostí a technickými obtížemi provázejícími vývoj a provoz deuteriových terčů. Reakce vyvolané protony a deuterony na berylliu mají v oblasti jednotek a desítek MeV vysoké hodnoty účinných průřezů. Beryllium má navíc vysokou teplotu tání, což umožňuje provoz terče i při vysokých intenzitách toku nabitých částic. Produkce monoenergetických svazků neutronů je při použití tenkého terče v principu také možná, avšak pro tyto účely se významně častěji využívá lithium [30]. Významnou nevýhodou beryllia je jeho silná toxicita a potenciální karcinogenní účinky [31], což komplikuje veškeré manipulace s tímto materiálem. Ukázka energetického spektra neutronů produkovaných při reakcích nabitých částic s tlustým terčem z beryllia je uvedena na Obr. 2.3.

Významné reakce

Protony dopadající na tlustý berylliový terč mohou vyvolat celou řadu reakcí vedoucích na produkci neutronů. Nejvýznamnější je reakce ⁹Be(p, n)⁹B, která silně přispívá k produkci rychlých neutronů v dopředném směru. Výsledné spektrum významně ovlivňují i vícečásticové rozpady, například ${}^{9}\text{Be}(p,n\alpha){}^{5}\text{Li}, {}^{9}\text{Be}(p,np){}^{8}\text{Be}$ či ${}^{9}\text{Be}(p, np\alpha)^{4}\text{He}$, které způsobují, že značná část celkového výtěžku neutronů se nachází v oblasti nižších energií. Navíc emise neutronů při vícečásticovém rozpadu nemá tak výrazný dopředný charakter, ale je více izotropní [32]. Proto je u beryllia ve srovnání s deuteriem nižší výtěžek v dopředném směru a měkčí spektrum při stejné energii protonů. V případě interakce urychlených deuteronů s tlustým berylliovým terčem je výtěžek rychlých neutronů v dopředném směru asi desetkrát větší než v případě použití svazku protonů se stejnou energií na témže terči. Úhlové rozdělení emitovaných neutronů je podstatně více dopředně orientované než při použití protonů [30]. Ve srovnání s reakcí deuteronů na tlustém terči z deuteria je výtěžek reakce d+Be opět významně horší [27]. Podobně jako u protonů, majoritní vliv na dopřednou emisi neutronů má reakce ${}^{9}Be(d,n){}^{10}B$, k oblasti nižších energií přispívají zejména vícečásticové rozpady, například ⁹Be(d, np)⁹Be či ⁹Be(d, p2n)⁸Be. Neutronové spektrum těchto reakcí vykazuje výrazné maximum v podobě širokého gaussovského píku v oblasti přibližně čtyřiceti procent energie dopadajících deuteronů [33].

Zkušenosti s tímto terčem v ÚJF AV ČR

Konstrukce berylliového terče je významně jednodušší než v případě použití těžké vody. Díky pevnému skupenství, vysoké teplotě tání a lepší tepelné vodivost lze používat beryllium ve formě desky, v ÚJF se jedná o válec s průměrem 5 cm a tlouštkou 8 mm, který je za provozu z jedné strany chlazen ethanolem s teplotou 5 °C [28]. V současné době představuje berylliová terčová stanice nejpoužívanější zdroj bílého spektra neutronů v ÚJF.



Obr. 2.3: Ukázka energetického spektra neutronů produkovaných při reakcích nabitých částic s tlustým terčem z beryllia [32].

2.5 Produkce neutronů pomocí terče z lithia

Při použití tenkého lithiového terče lze pro relativně nízké energie protonů v řádu nejvýše desetin MeV produkovat čistě monoenergetické spektrum neutronů. Pro vyšší energie urychlovaných protonů začíná růst význam spojitého neutronového pozadí rozprostírajícího se od výrazného monoenergetického píku směrem k nižším energiím neutronů. V tomto případě se výsledné spektrum označuje jako kvazimonoenergetické. Spojité pozadí je sice významné, avšak dobře odlišitelné od monoenergetického píku, což umožňuje kompenzaci jeho vlivu vhodnou korekcí (podrobněji viz. sekce 8.1). Tlustý lithiový terč lze využít i k produkci bílého spektra neutronů. Jeho značnou nevýhodou oproti berylliu pro tuto aplikaci je významně nižší teplota tání, která je u lithia přibližně 180 °C, zatímco pro beryllium přibližně 1277 °C [34]. Podobně jako další alkalické kovy je lithium značně reaktivní, což ztěžuje manipulace s tímto materiálem. Při kontaktu s kyslíkem ve vzduchu se povrch vzorku lithia rychle pasivuje vrstvou oxidu. Bouřlivá reakce nastává při kontaktu s vodou, případně se vzdušnou vlhkostí. Veškeré manipulace s lithiovými terči tak musí probíhat v ochranné atmosféře z inertního plynu. Výhodou je, že se nejedná o toxický materiál jako v případě beryllia [31]. Ukázka energetického spektra neutronů produkovaných při reakcích nabitých částic s tlustým terčem z lithia je uvedena na Obr. 2.4, s tenkým terčem pak na Obr. 2.5.



Obr. 2.4: Ukázka energetického spektra neutronů produkovaných při reakcích nabitých částic s tlustým terčem z lithia [32].



Obr. 2.5: Ukázka energetického spektra neutronů produkovaných při reakcích protonů s tenkým terčem z lithia [35].

Významné reakce

K výraznému monoenergetickému píku přispívají neutrony produkované v reakcích ⁷Li(p, n)⁷Be vedoucích na vznik ⁷Be v základním a prvním excitovaném stavu. V případě vzniku jader ⁷Be ve vyšších excitovaných stavech přispívají produkované neutrony ke spojitému pozadí, podobně jako vícečásticové rozpady a další doprovodné reakce, například ⁷Li(p, np)⁶Li či ⁷Li(p, ³He)⁵He \rightarrow ⁴He + n [32]. Pro reakce s protony v energetické oblasti desítek MeV je výtěžek neutronů příslušných spojitému pozadí řádově srovnatelný s výtěžkem v monoenergetickém píku [36]. Reakce protonů na tenkém lithiovém terči má celou řadu příznivých vlastností. Ve srovnání s jinými možnostmi produkce kvazimonoenergetických spekter má výrazný pík malou pološířku a lze produkovat poměrně intenzivní svazky neutronů. Navíc je možné gama spektrometrickou analýzou použitého lithiového terče určit množství neutronů příslušných monoenergetickému píku emitovaných do prostorového úhlu 4π , což je detailněji popsáno v sekci 7.3.

Reakce ⁷Li(d, n)⁸Be je zajímavá z hlediska materiálového výzkumu pro účely fúzních reaktorů. Deuterony s energií přibližně 40 MeV produkují spektrum neutronů se střední hodnotou v okolí 14 MeV, což je vhodné pro účely napodobení neutronového spektra fúzních reaktorů [29].

Zkušenosti s tímto terčem v ÚJF AV ČR

Historicky byla v ÚJF snaha využívat tlustý lithiový terčík k produkci bílého spektra neutronů. Kvůli nízké teplotě tání lithia by však pro požadované intenzity musel být terč v kapalné podobě. Technické komplikace spojené s tímto konceptem nakonec vedly k zavržení celého projektu. Místo toho se přikročilo k experimentům s tenkým lithiovým terčem, ve kterém nabité částice ztrácí jen malou část své energie, tudíž nedochází k tak silnému ohřevu terče, který díky tomu může být provozován v pevném skupenství [28].

Terčová stanice s tenkým lithiovým terčem je v ÚJF používána jako zdroj kvazimonoenergetických neutronů zejména pro účely studia účinných průřezů. Je schopna produkovat neutronová spektra s výrazným píkem v rozsahu energií 18 až 33 MeV. Pološířka FWHM výrazného píku se typicky pohybuje okolo 2,5 MeV. Samotná stanice sestává z odnímatelné terčové komory, soustavy kolimátorů svazku nabitých částic s průměry 18, resp. 8 mm a nastavitelného podstavce, který umožňuje přesné seřízení výšky při připojování terčové stanice k trase vyvedení H⁻ iontů z cyklotronu U-120M. Před začátkem experimentu je odnímatelná terčová komora přemístěna do digestoře s ochrannou argonovou atmosférou, kde probíhá instalace lithiového terče. Používané terče mají kruhový průřez s průměrem 30 mm a tloušťkou 2,0(1) mm a obsahují velmi vysoký podíl izotopu ⁷Li. Před osazením do terčové stanice jsou uchovávány v petrolejové lázni. Komora je následně evakuována a přemístěna zpět

do cyklotronové haly. Poté probíhá přesné nastavení polohy terčové stanice do osy svazku nabitých částic. Po sérii testů může být zahájen provoz. Protože se používá tenký terčík, více než 90% dopadajících protonů projde tímto terčem bez interakce. což vede na vznik směsného pole protonů a neutronů. Protony je nezbytné před kontaktem s ozařovaným vzorkem z tohoto pole odstranit. Některé laboratoře používají k odklonění protonů magnetické pole, avšak v ÚJF byl zvolen koncept degradace nabitých částic vlivem ionizačních ztrát v tlusté uhlíkové destičce (tloušťka 10 mm), takzvaném zhášeči. Lithiový terč a zejména pak zhášeč se během provozu silně zahřívají, proto je nutné zajistit jejich chlazení. Za tímto účelem je ke stanici připojen speciální chladící systém, který cirkulací ethanolu zajišťuje chlazení držáku terče a zadní strany uhlíkového zhášeče. Ozařované vzorky jsou umistovány do hliníkového držáku, který umožňuje přesnou identifikaci vzdálenosti vzorku od terče. Po ukončení ozařování je použitý lithiový terč opět v ochranné atmosféře vyjmut z komory a uložen zpět do petroleje. Pro každé ozařování je používán nový terč, avšak pro účely spektrometrie je vhodné použitý terč uschovat (viz. sekce 7.3). K produkci neutronů nedochází pouze v lithiovém terči, ale i v uhlíkovém zhášeči. Z fyzikálního hlediska však mají reakce C(p, xn) vysoké prahy reakcí začínající na hodnotě 19.6 MeV [37], proto nemohou ovlivnit výrazný pík, ale pouze přispívají ke spojitému neutronovému pozadí. Fotografie lithiové terčové stanice s popisem základních komponent je uvedena na Obr. 2.6, detailní záběr držáku se vzorky k ozáření pak na Obr. 2.7.



Obr. 2.6: Li terčová stanice [38].



Obr. 2.7: Držák se vzorky k ozáření připojený k Li terčové stanici. Foto autor práce.

2.6 Produkce neutronů pomocí terče z těžkého materiálu

Pro úplnost je vhodné krátce zmínit produkci neutronů pomocí spalačních (tříštivých) reakcí. Urychlovač poskytuje svazek relativistických projektilů, typicky protonů či jiných lehkých iontů, jejichž energie se zpravidla pohybuje v řádu stovek MeV až jednotek GeV na nukleon [39]. De Broglieho vlnová délka projektilu při těchto energiích je typicky významně menší než průměr terčových jader, proto projektil neinteraguje s jádrem jako celkem, ale s jednotlivými nukleony. Ačkoliv může být spalační reakce vyvolána u libovolných jader, s rostoucím hmotnostním číslem jádra obvykle roste počet neutronů emitovaných na jeden projektil. Z toho důvodu se terče typicky konstruují z těžkých materiálů jako olovo či wolfram. Srovnání neutronových spekter štěpného a spalačního zdroje je uvedeno na Obr. 2.8. Spalační zdroje neutronů jsou kromě výzkumu důležité i pro případný provoz urychlovačem řízených transmutačních systémů. Detailnější rozbor nastíněné problematiky však není předmětem této práce.



Obr. 2.8: Srovnání neutronových spekter tepelného štěpného zdroje a spalačního zdroje p(800 MeV)+W [40].

3 Využití aktivačních detektorů pro měření účinných průřezů

Ve vzorku, který je umístěn v poli neutronů, dochází prostřednictvím různých jaderných reakcí k produkci nových jader, obvykle radionuklidů. Je-li vzorek podroben analýze na gama spektrometrické aparatuře, lze v něm určit kvalitativní i kvantitativní zastoupení celé řady radionuklidů. Na zmíněném principu fungují aktivační detektory. Jedná se nejčastěji o tenké fólie či dráty z čistého materiálu, v optimálním případě tvořené jediným nuklidem. Všechny radionuklidy obsažené v analyzovaném aktivačním detektoru jsou pak přímými produkty jaderných reakcí neutronu s jediným nuklidem, nebo se jedná o radionuklidy zastoupené v rozpadových řadách přímých produktů. Díky tomu lze určit, jaké reakce v detektoru probíhaly a jaké byly jejich výtěžky. Pojmem "výtěžek reakce" je v celé práci označován počet jader vyprodukovaných sledovanou reakcí za celou dobu ozařování. Takto zavedený pojem je odlišný od standardní definice výtěžku, který je obvykle chápán jako počet vyprodukovaných částic či jader vztažený na jednu dopadající částici (projektil). Tato kapitola je zaměřena na gama spektrometrii ozářených aktivačních detektorů, nastínění korekcí, které je nutné aplikovat při výpočtu výtěžku reakce, a stručný rozbor nejistot spojených s popsanou problematikou.

3.1 Energetické spektrum gama záření

Vede-li radioaktivní přeměna (alfa či beta) na vznik dceřiného jádra v excitovaném stavu, pak ji lze obvykle zaznamenat na gama spektrometrické aparatuře, protože deexcitace dceřiného jádra zpravidla probíhá emisí gama záření. Přeměna alfa, zejména pak u radionuklidů s nižšími atomovými čísly, často vede na vznik jader v základním stavu, což znemožňuje analýzu tohoto procesu prostřednictvím gama spektrometrické aparatury. S rostoucím atomovým číslem však přibývá produktů alfa přeměny v excitovaném stavu. Beta přeměna vede na vznik dceřiných jader v základním stavu spíše výjimečně [41].

Energetické spektrum představuje závislost intenzity gama záření na energii. Gama foton je elektricky neutrální částice, a tudíž nevyvolává primární ionizaci. Při detekci tohoto záření se zaznamenávají sekundární nabité částice, typicky elektrony uvolněné při interakci fotonů s hmotou. Detektory gama záření pro účely spektrometrie jsou zpravidla na bázi velmi čistých polovodičů, například germania (HPGe = high purity germanium). Pro gama fotony s nízkou energií v řádu desítek či nižších stovek keV je typickou interakcí fotoelektrický jev, kdy foton předá veškerou svou energii elektronu vázanému v atomovém obalu. Elektron je následně vyražen z atomového obalu a získá kinetickou energii odpovídající energii gama fotonu sníženou o vazebnou energii elektronu v obalu, která je ale obvykle velmi malá ve srovnání s energií gama fotonu. Při fotoelektrickém jevu odevzdá foton v citlivém objemu detektoru veškerou svou energii, čímž ve spektru přispívá k píku úplného pohlcení, který se též nazývá fotopíkem. Pro energie fotonů v rozmezí vyšších stovek keV až jednotek MeV převládá Comptonův rozptyl. Jedná se o pružný nekoherentní rozptyl fotonu na elektronu. Odražený elektron odnáší pouze část celkové energie fotonu. Pokud rozptýlený foton následně vyvolá fotoelektrický jev, přispěje tato série interakcí k píku úplného pohlcení. V případě, kdy rozptýlený foton opustí citlivý objem detektoru, přispívá v energetickém spektru ke spojité oblasti (tzv. Comptonovu kontinuu) rozprostírající se od tzv. comptonovské hrany směrem k nižším energiím. Pro energie v řádu jednotek MeV a vyšší začíná být významná interakce, při které dojde k přeměně fotonu na elektron pozitronový pár (tzv. tvorba párů). Předají-li obě vzniklé částice veškerou svou energii v citlivém objemu detektoru, přispívá tato interakce k píku úplného pohlcení. Struktura energetických hladin jádra je diskrétní, tudíž i spektrum vyzařovaných fotonů musí být diskrétní. V nekonečně velikém detektoru, kde by každý foton odevzdal veškerou svou energii, by se ve spektru vyskytovaly pouze píky úplného pohlcení. Na předávání energie by se podílely všechny tři popsané mechanismy, ale výsledek by byl vždy stejný. V reálném detektoru však mohou fotony z detektoru uniknout, což ve spektru vede na vznik Comptonova kontinua a celé řady dalších píku. Obsáhlejší přehledný úvod do problematiky interakce gama záření s hmotou a popisu energetických spekter gama záření lze nalézt v bakalářské práci [42], další informace pak v odborné literatuře [34, 41], odkud bylo také čerpáno.

3.2 Odvození rovnice pro výpočet výtěžku reakce

Když je aktivační detektor vystaven svazku neutronů, dochází v jeho objemu k produkci radionuklidů. Nechť je předmětem zájmu jeden konkrétní radionuklid, jež je produkován rychlostí P(t), která je obecně funkcí času t. Jako u všech nestabilních jader zároveň dochází k samovolnému rozpadu sledovaného radionuklidu. Bilanci pro případ, kdy se aktivační detektor nachází v poli neutronů lze popsat diferenciální rovnicí:

$$\frac{\mathrm{d}N(t)}{\mathrm{d}t} = P(t) - \lambda N(t), \qquad (3-1)$$

kde N je počet jader sledovaného radionuklidu a λ představuje rozpadovou konstantu. Pokud se pole neutronů nemění s časem, lze P považovat za konstantu. S tímto předpokladem lze výše uvedenou rovnici (3-1) snadno vyřešit. Při řešení je využita počáteční podmínka N(t = 0) = 0, což odpovídá situaci, kdy aktivační detektor před vložením do pole neutronů neobsahuje žádná jádra sledovaného radionuklidu. Řešením je pak vztah:

$$N(t) = \frac{P}{\lambda} \left(1 - e^{-\lambda t} \right).$$
(3-2)

Nechť expozice neutronovému poli trvá po dobu t_{irr} . Počet jader sledovaného radionuklidu v aktivačním detektoru v okamžiku vypnutí svazku neutronů označený N_0 lze pak vypočítat podle (3-2):

$$N_0 = N(t = t_{\rm irr}) = \frac{P}{\lambda} \left(1 - e^{-\lambda t_{\rm irr}} \right).$$
(3-3)

Po ukončení ozařování už dochází pouze k rozpadu sledovaného radionuklidu. Bilance (3-1) se tedy zjednoduší:

$$\frac{\mathrm{d}N(t)}{\mathrm{d}t} = -\lambda N(t). \tag{3-4}$$

S využitím počáteční podmínky, že v okamžiku ukončení ozařování se v aktivačním detektoru nachází právě N_0 jader sledovaného radionuklidu, je řešením rovnice (3-4) vztah:

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t}.$$
(3-5)

Pojmem výtěžek reakce, který byl definován již v úvodu této kapitoly, představuje počet jader vyprodukovaných sledovanou reakcí za celou dobu ozařování. S ohledem na další používané veličiny lze tuto definici přepsat jako součin konstantní rychlosti produkce sledovaného radionuklidu P a doby ozařování t_{irr} :

$$N_{\rm výtěžek} = P t_{\rm irr}.$$
(3-6)

Za neznámou konstantu P lze dosadit ze vztahu (3-3), potom:

$$N_{\rm výtěžek} = N_0 \, \frac{\lambda \, t_{\rm irr}}{1 - e^{-\lambda \, t_{\rm irr}}}.$$
(3-7)

Nechť t_0 představuje dobu od ukončení ozařování do začátku měření. Skutečný čas měření je označen t_{real} . Počet jader sledovaného radionuklidu, které se rozpadly během analýzy aktivačního detektoru pomocí gama spektrometrické soustavy označený ΔN lze s využitím (3-5) vypočítat jako:

$$\Delta N = N(t_0) - N(t_0 + t_{\text{real}}) = N_0 \left(e^{-\lambda t_0} - e^{-\lambda (t_0 + t_{\text{real}})} \right).$$
(3-8)

Dosazením tohoto vztahu do rovnice pro výtěžek (3-7) a následnými algebraickými úpravami lze odvodit vztah:

$$N_{\text{výtěžek}} = \Delta N \, \frac{e^{\lambda t_0}}{1 - e^{-\lambda t_{\text{real}}}} \, \frac{\lambda t_{\text{irr}}}{1 - e^{-\lambda t_{\text{irr}}}}.$$
(3-9)

Uvedené ΔN , tedy počet jader sledovaného radionuklidu, které se rozpadly během měření na HPGe detektoru, lze určit analýzou získaného gama spektra. Tato problematika je detailně diskutována v následující sekci.

3.3 Analýza energetického spektra gama záření

Celá metodika gama spektrometrie spočívá na dvou základních pilířích. Tím prvním je jedinečnost energií emitovaných gama fotonů, které jsou specifické pro daný přechod mezi dvěma konkrétními energetickými hladinami sledovaného radionuklidu. Druhým je pak možnost velmi přesně měřit energie těchto fotonů, aby bylo možné v získaném gama spektru rozlišit příspěvky jednotlivých přechodů. V následujících sekcích je vysvětlen význam obou uvedených podmínek, jsou nastíněny základní kroky při analýze gama spektra ozářeného aktivačního detektoru a standardní spektrometrické korekce, které je nezbytné aplikovat pro co nejpřesnější určení výtěžku sledované reakce.

3.3.1 Plocha píku příslušné gama linky $S_{pík}$

Ozářený aktivační detektor je umístěn do určité vzdálenosti od HPGe detektoru. Následně je po dostatečně dlouhou dobu měřeno energetické spektrum emitovaných gama fotonů. Ve spektru se typicky objeví celá řada poměrně výrazných píků. V současné době existují obsáhlé databáze údajů o struktuře jader a jejich gama přechodech, například [43]. Zmíněné databáze lze použít dvěma způsoby. Pro radionuklidy, jejichž přítomnost ve vzorku je očekávána, lze identifikovat energie gama fotonů, které při své přeměně emitují. Případně lze využít opačný přístup. Je-li detekováno značné množství gama fotonů o určité energii, lze zjistit, jaký radionuklid je může emitovat. Energie odečtená ze zmíněné databáze odpovídá v energetickém spektru gama záření píku úplného pohlcení, kdy foton odevzdal v detektoru veškerou svou energii. Právě tyto píky je třeba analyzovat. K tomu slouží specializované výpočetní programy. V rámci této práce byl využit *Deimos*, jehož autorem je J. Frána z OJS ÚJF AV ČR. Jedná se o program, který umožňuje proložit vybraný pík normálním rozložením a určit tak jeho plochu včetně nejistoty. V úvodu tohoto odstavce je uvedeno, že měření gama spektra by mělo probíhat po dostatečně dlouhou dobu, což je poměrně obecný údaj, který je vhodné trochu specifikovat. Pokud je to možné, tak by měření mělo trvat tak dlouho, aby plocha píku byla alespoň 10⁴ impulzů, potažmo tedy nejistota plochy píku byla menší než jedno procento. Nejistota určení plochy píku se při vyhodnocování experimentální části této práce obvykle pohybovala řádově v rozmezí desetin až jednotek procenta.

3.3.2 Intenzita příslušné gama linky I_{γ}

Při přechodu jádra mezi dvěma energetickými hladinami je vyzářen foton s typickou energií. K deexcitaci jádra může zpravidla docházet různými přechody či jejich sériemi. Pravděpodobnost, že při deexcitaci nastane sledovaný přechod, tedy že bude vyzářen foton se sledovanou energií, se označuje jako intenzita gama přechodu I_{γ} . Hodnoty I_{γ} včetně nejistot lze opět nalézt například v již zmíněné databázi [43]. Uváděné nejistoty se typicky pohybují v řádu desetin procenta, v některých případech až v řádu jednotek procent.

3.3.3 Píková účinnost detektoru $\epsilon_{\rm p}$

Do citlivého objemu detektoru zpravidla dopadá pouze část z celkového množství gama fotonů emitovaných zářičem do celého prostoru. O jakou část se jedná je dáno zejména velikostí a tvarem detektoru i zářiče a jejich vzájemnou polohou. Píková účinnost detektoru ϵ_p je definována jako četnost detekovaných gama fotonů přispívajících k píku úplného pohlcení dělená četností gama fotonů emitovaných zdrojem do celého prostoru [41]. Při zohlednění impulzů detekovaných nejen v oblasti píku úplného pohlcení, ale kdekoliv ve spektru, se výše uvedený poměr nazývá celkovou účinností detektoru. Kromě zřejmé geometrické závislosti je ϵ_p poměrně komplikovaným způsobem závislé i na energii dopadajícího záření. Pro ilustraci těchto závislostí jsou na Obr. 3.1 a Obr. 3.2 uvedeny kalibrační křivky HPGe detektoru Canberra GC3018 na OJS ÚJF, který byl v rámci této práce používán ke spektrometrii gama záření. Detailně zpracovaná kalibrace účinnosti tohoto detektoru byla převzata od kolegů z OJS. Podrobnosti o kalibraci lze nalézt v [38]. Autoři doporučují uvažovat nejistotu 2%.


Obr. 3.1: Závislost píkové účinnosti HPGe detektoru Canberra GC3018 na energii gama záření a vzdálenosti zářiče od citlivého objemu detektoru. Upraveno z [44].



Obr. 3.2: Závislost totální účinnosti HPGe detektoru Canberra GC3018 na energii gama záření a vzdálenosti zářiče od citlivého objemu detektoru. Upraveno z [44].

3.3.4 Korekce na vliv samoabsorpce C_{abs}

Pojmem samoabsorpce je označováno pohlcení emitovaného gama fotonu ve vlastním objemu zářiče. Pro výpočet korekce na tento jev v případě zářiče ve formě tenké homogenně aktivované fólie lze použít vztah [34]:

$$C_{\rm abs}(E_{\gamma}) = \frac{\mu_{\rm T}(E_{\gamma})\,\rho\,D}{1 - \exp(-\mu_{\rm T}(E_{\gamma})\,\rho\,D)},\tag{3-10}$$

kde $\mu_{\rm T}$ je absolutní koeficient zeslabení, ρ hustota materiálu fólie a D její tloušťka. Součinitel $C_{\rm abs}$ tedy závisí na energii gama fotonu E_{γ} , materiálu a tloušťce ozářené fólie. Hodnoty $\mu_{\rm T}$ byly převzaty z online databáze [45] včetně údajů o nejistotách, které se v rozsahu energií řádově stovek keV až jednotek MeV pohybují do 3%. Hodnoty hustoty byly převzaty z literatury [34] s nejistotami v řádu setin procenta. Tloušťka fólie je garantována výrobcem a byla ověřena pomocí digitálního posuvného měřítka. Pro některé vzorky byla počítána ze znalosti hustoty, hmotnosti a plochy. Nejistota tloušťky fólie se pohybuje v řádu desetin procenta. Podle zákona šíření nejistot je při uvážení používaného rozsahu dílčích veličin celková nejistota $C_{\rm abs}$ typicky v řádu desetin procenta.

3.3.5 Korekce na vliv pravých kaskádních koincidencí C_{COI}

Doba života excitovaného stavu jádra bývá obvykle velmi krátká. U jader s komplikovanějšími rozpadovými schématy excitovaných stavů může dojít k emisi několika gama či rentgenovských fotonů ve velmi rychlém sledu a existuje jistá pravděpodobnost, že do detektoru vletí více než jeden foton a zařízení je nerozliší. V takovém případě mohou být dva různé fotony z rozpadové kaskády téhož jádra mylně interpretovány jako jediný foton s energií odpovídající jejich součtu. Tento jev se nazývá pravé kaskádní koincidence. Vhodný ilustrativní případ je smyšlené jádro se třemi energetickými hladinami a třemi možnými gama přechody A, B a C. Nechť deexcitace jádra může proběhnou emisí jediného fotonu A, nebo kaskádou fotonů B a C. Může nastat situace, kdy jsou fotony B a C mylně interpretovány jako jediný foton s energií odpovídající svému součtu, tedy A. Z pohledu píku úplného pohlcení fotonů A se jedná o takzvanou koincidenční sumaci, protože dochází k jeho umělému nadhodnocení. Z pohledu píků úplného pohlcení fotonů B a C se jedná o koincidenční ztrátu. Vliv kaskádních koincidencí výrazně klesá s rostoucí vzdáleností vzorku a detektoru. Pro výpočet kaskádních koincidencí při vyhodnocování experimentální části této práce byl použit program TrueCoinc [46]. Program bohužel neuvádí nejistoty těchto výpočtů, ani v průvodní dokumentaci nejsou nijak komentovány, což znemožňuje jejich přesnou kvantifikaci. Program při výpočtu používá vlastní databázi jaderných dat. Zadává se pouze kalibrace účinnosti detektoru. Nejistotu $C_{\rm COI}$ lze tedy přibližně odhadnou nejistotou zmíněné kalibrace, která odpovídá 2%.

3.3.6 Korekce na vliv nestability svazku C_{stab}

Při řešení diferenciální rovnice (3-1) popisující bilanci jader radionuklidu při ozařování se předpokládá konstantní rychlost produkce P sledovaného radionuklidu po celou dobu ozařování. Ovšem vlivem různých nestabilit při provozu urychlovače dochází k odchylkám svazku nabitých částic od zadaných parametrů. Kvůli tomu fluktuuje i neutronové pole urychlovačem řízeného zdroje a P(t) je funkcí času. Tento jev lze pozorovat na záznamu proudu svazku nabitých částic uvedeném na Obr. 4.1. Řešením rovnice (3-1) je pak místo jednoduché funkce (3-2) integrální vztah:

$$N(t) = e^{-\lambda t} \int_0^t e^{\lambda t'} P(t') \,\mathrm{d}t'.$$
 (3-11)

Pokud lze průběh ozařování rozdělit na časové intervaly $[t_i, t_{i+1}]$ tak, že během každého intervalu je rychlost produkce sledovaného radionuklidu P_i konstantní, lze výše uvedený integrál (3-11) aproximovat sumou:

$$N(t) = \frac{e^{-\lambda t}}{\lambda} \sum_{\forall i} P_i \left(e^{-\lambda t_{i+1}} - e^{-\lambda t_i} \right).$$
(3-12)

Podle [47] lze korekci na vliv nestability svazku během ozařování C_{stab} vypočítat jako podíl počtu vyprodukovaných radionuklidů N(t) za předpokladu P = konst. podle (3-2) k N(t) vypočítaného pomocí (3-12):

$$C_{\text{stab}} = \frac{\frac{P}{\lambda} \left(1 - e^{-\lambda t_{\text{irr}}}\right)}{\frac{e^{-\lambda t}}{\lambda} \sum_{\forall i} P_i \left(e^{-\lambda t_{i+1}} - e^{-\lambda t_i}\right)}.$$
(3-13)

Vzhledem k faktu, že P je úměrné počtu protonů urychlených za daný časový interval, lze vztah (3-13) přepsat do tvaru:

$$C_{\text{stab}} = \frac{1 - e^{-\lambda t_{\text{irr}}}}{t_{\text{irr}} \sum_{\forall i} \left[\frac{W(i)}{t_{i+1} - t_i} e^{-\lambda (t_{\text{irr}} - t_{i+1})} \left(1 - e^{-\lambda (t_{i+1} - t_i)}\right) \right]},$$
(3-14)

kde W(i) představuje poměr počtu protonů urychlených během *i*-tého intervalu k počtu protonů urychlených během celého ozařování. Použití součinitele C_{stab} umožňuje při odvození rovnice pro výpočet výtěžku vycházet z předpokladu P = konst. a zároveň zohlednit vliv fluktuací svazku, které mohou zejména u radionuklidů s krátkým poločasem rozpadu mít nezanedbatelný vliv. Výpočet součinitele C_{stab} a zejména určení nejistoty je však poměrně problematické. Výpočet byl proveden pro různá rozdělení ozařování na intervaly podle záznamu časové závislosti proudu svazku protonů. Z takto určených C_{stab} byla vypočítána střední hodnota a směrodatná odchylka, která představuje odhad nejistoty určení C_{stab} .

3.3.7 Korekce na vliv plošného zářiče C_{plocha}

Kalibrace účinnosti používaného HPGe detektoru Canberra GC3018 byla provedena pomocí malých etalonů, které lze považovat za bodové zářiče. Ozářené aktivační detektory ve formě tenkých fólií se od použitých etalonů co do tvaru značně liší. Tato odlišnost může do jisté míry způsobit omezenou platnost experimentálně určené kalibrace účinnosti detektoru. Míru odlišnosti kalibrace účinnosti pro plošný a bodový zářič lze popsat součinitelem:

$$C_{\text{plocha}} = \frac{\epsilon_{\text{p}}(\text{plošný zářič})}{\epsilon_{\text{p}}(\text{bodový zářič})}.$$
(3-15)

Na OJS nejsou k dispozici plošné etalony požadované velikosti, které by bylo možné použít k experimentálnímu určení kalibrace účinnosti pro plošné zářiče. Proto byla provedena simulace pomocí výpočetního kódu MCNPX [48]. Pro tento účel byl využit částečně přepracovaný model zmíněného detektoru, jehož původním autorem je kolega z OJS P. Chudoba [44]. Pro všechny sledované gama linky a každou používanou vzdálenost vzorku od detektoru byla pomocí MCNPX určena hodnota $\epsilon_{\rm p}$ jak pro model plošného zářiče, tak i pro model kalibračního etalonu. Za účelem validace výsledků simulace byly srovnány vypočítané hodnoty $\epsilon_{\rm p}$ pro malé etalony s expe rimentálně určenými hodnotami. Pro ilustraci tohoto srovnání je zařazen Obr. 3.3. Ve většině případů je rozdíl mezi oběma přístupy ke kalibraci menší než 2%, což odpovídá nejistotě experimentálně určené kalibrace. Zmíněný rozdíl je ve všech případech menší než 5 %. Tím je potvrzena věrohodnost simulovaných hodnot. Při vyhodnocování experimentu byla používána experimentálně určená kalibrace účinnosti detektoru a vliv odlišnosti tvaru aktivačního detektoru od kalibračního etalonu byl zohledněn součinitelem C_{plocha} určeném na základě dat z MCNPX. Nejistota určení tohoto součinitele byla s ohledem na výše popsaného srovnání simulace a experimentu konzervativně odhadnuta 5 %. Závislost C_{plocha} na konkrétní energii gama záření a vzdálenosti zářiče a detektoru je ukázána na Obr. 3.4.



Obr. 3.3: Poměr kalibrace účinnosti detektoru určené experimentálně k výsledkům simulace pomocí kódu MCNPX pro "bodové" etalony [35].



Obr. 3.4: Závislost velikosti součinitele C_{plocha} na vzdálenosti zářič-detektor pro několik sledovaných gama linek a fólii $25 \times 25 \text{ mm}$ [35].

3.3.8 Korekce na vliv mrtvé doby detektoru

Pojem mrtvá doba detektoru je používán pro označení časového intervalu počínajícího zaregistrováním částice, během něhož detektor nemůže další částice zaznamenat [3]. Gama fotony dopadající do citlivého objemu detektoru během mrtvé doby nejsou správně detekovány, což vede na snižování detekční účinnosti. Mrtvou dobu určuje přímo gama spektrometrická aparatura, která udává jak skutečný čas měření t_{real} , tak čas měření s odečtením celkové mrtvé doby t_{live} . Korekci na vliv mrtvé doby pak lze vyjádřit jako poměr časů $t_{\text{real}} \ge t_{\text{live}}$.

3.4 Finální tvar rovnice pro výpočet výtěžku

Rovnice pro výpočet výtěžku reakce (3-9), odvozená v sekci 3.2, může být nyní blíže specifikována díky zavedení potřebných spektrometrických korekcí. Výsledný vztah má podobu:

$$N_{\text{výtěžek}} = \frac{S_{\text{pík}} C_{\text{abs}} C_{\text{stab}}}{I_{\gamma} \epsilon_{\text{P}} C_{\text{COI}} C_{\text{plocha}}} \frac{t_{\text{real}}}{t_{\text{live}}} \frac{e^{\lambda t_0}}{1 - e^{-\lambda t_{\text{real}}}} \frac{\lambda t_{\text{irr}}}{1 - e^{-\lambda t_{\text{irr}}}}.$$
 (3-16)

Pomocí této rovnice je určen výtěžek pro každé naměřené gama spektrum. Pro každý zkoumaný aktivační detektor je však typicky měřeno několik gama spekter v různých časech po ukončení ozařování, často se jedná o desítky různých měření. Pro další výpočty je nezbytné vypočítat střední hodnotu výtěžku $\overline{N_{výtěžek}}$. K tomu lze přistupovat různými způsoby. Pro účely této práce byl zvolen vztah [49]:

$$\overline{N_{\text{výtěžek}}} = \frac{1}{w} \left(\sum_{i=1}^{k} w(i) \, N_{\text{výtěžek}}(i) \right), \tag{3-17}$$

kde k je počet dílčích vypočítaných výtěžků a w(i), respektive w představují váhové funkce. Tyto funkce jsou definovány předpisy:

$$w(i) = \frac{1}{\left(\Delta N_{\text{výtěžek}}(i)\right)^2},\tag{3-18}$$

$$w = \sum_{i=1}^{k} w(i), \tag{3-19}$$

kde $\Delta N_{výtěžek}(i)$ je nejistota *i*-tého vypočítaného výtěžku $N_{výtěžek}(i)$. Výslednou celkovou nejistotu $\Delta \overline{N_{výtěžek}}$ střední hodnoty výtěžku $\overline{N_{výtěžek}}$ lze vypočítat podle vztahu:

$$\Delta \overline{N_{\text{výtěžek}}} = \frac{1}{\sqrt{w}}.$$
(3-20)

Nabírání a následná analýza každého gama spektra představuje nezávislé měření. Pro ověření, zda některý z vypočítaných výtěžků není zatížen hrubou chybou, je vhodné použít například χ^2 test:

$$\frac{\chi^2}{k-1} = \frac{1}{k-1} \left(\sum_{i=1}^k w(i) \left(N_{\text{výtěžek}}(i) - \overline{N_{\text{výtěžek}}} \right)^2 \right).$$
(3-21)

Distribuce hodnot $N_{v ext{yte ilde{z}ek}}(i)$ by totiž měla odpovídat normálnímu rozdělení. Pro každé $N_{v ilde{yte ilde{z}ek}}(i)$ mohou na základě tohoto testu nastat tři situace [50]:

a) Výraz $\frac{\chi^2}{k-1}$ je menší či roven jedné.

 \Rightarrow Vypočítanou střední hodnotu výtěžku včetně nejistoty lze akceptovat.

b) Výraz $\frac{\chi^2}{k-1}$ je mírně větší něž jedna.

⇒ Vypočítanou střední hodnotu výtěžku lze akceptovat, avšak její nejistotu je nutné zvětšit vynásobením $\frac{\chi^2}{k-1}$.

- c) Výraz $\frac{\chi^2}{k-1}$ je výrazně větší než jedna.
 - ⇒ Je nezbytné zkontrolovat naměřená data, znovu zanalyzovat měření velmi vzdálená od střední hodnoty, najít a opravit případný zdroj hrubých chyb, popřípadě tato měření vyloučit z další analýzy.

4 Průběh experimentu v ÚJF AV ČR v.v.i.

Experimentální část této práce byla realizována na pracovištích ÚJF AV ČR v Řeži. Navazuje na experimenty provedené v rámci bakalářské práce [42] a výzkumného úkolu [35]. V této kapitole je uveden stručný popis zmíněných experimentů a jejich odlišností, také je nastíněn vztah ozařovaných materiálů k pokročilým jaderným technologiím. Následuje detailní popis postupů a činností prováděných v každé fázi experimentu. Je uveden i souhrn klíčových parametrů charakterizujících průběh ozařování.

4.1 Výběr terčových materiálů

V rámci experimentu byly ozářeny vzorky Al, Au, Bi, Co, F, Na a Y. Oproti dřívějším ozařováním byly přidány vzorky Co, F a Na. Všechny zvolené prvky mají do jisté míry vazbu na pokročilé jaderné systémy a zkoumané reakce mohou hrát svou roli při návrhu těchto systémů. Hliník byl vybrán proto, že se jedná o hojně používaný konstrukční materiál, který má svá uplatnění i v jaderném průmyslu. Zlato má v jaderné fyzice roli jistého standardu a mnohé jeho reakce jsou dobře proměřeny. Porovnání nově získaných účinných průřezů s dostatečným množstvím jiných experimentálních hodnot umožňuje validovat použitý postup měření a vyhodnocování celého experimentu. V případě dobré shody mezi výsledky experimentu a údaji z knihovny EXFOR pro referenční reakce na zlatě je pravděpodobné, že budou věrohodné i údaje pro reakce s nedostatkem experimentálních dat pro relevantní srovnání. K tomuto účelu mohou sloužit i některé dobře známé reakce na hliníku. Přestože je zlato v praxi hojně využíváno, slouží často právě jen jako standard a některé jeho reakce s neutrony (např. produkce ^{196m2}Au) doposud nejsou příliš dobře proměřeny. Eutektikum olova a bismutu (LBE) je zvažovaným chladivem pro některé pokročilé jaderné systémy včetně ADS. Bismut je navíc používán v celé řadě slitin jako legující prvek. Fluor, respektive fluoridové soli, by v určitých systémech mohli plnit roli chladiva. Některé koncepce reaktorů s roztavenými solemi jsou zvažovány i s tekutým palivem taktéž ve formě fluoridových solí. Sodík je opět chladivem některých rychlých reaktorů. Yttrium nachází svá uplatnění jako příměs v různých konstrukčních materiálech, například v ocelích disperzně zpevněných oxidickými částicemi (ODS steel), které se díky značné teplotní odolnosti zvažují jako konstrukční materiály pro některé pokročilé jaderné systémy.

Studium (n, xn) reakcí nejen na palivu, ale i na celé řadě konstrukčních materiálů a potenciálně vhodných chladiv je důležité zejména pro účely návrhu ADS. Ve štěpném reaktoru je příspěvek neutronů produkovaných v (n, xn) reakcích k celkové neutronové bilanci prakticky zanedbatelný, protože uvedené reakce mají typicky příliš vysoké prahové energie, než aby mohly být vyvolány neutrony ze štěpení. V poli spalačního zdroje neutronů však tyto reakce hrají velmi důležitou roli a významně ovlivňují celkovou neutronovou bilanci v ADS. Aby bylo možné provoz ADS přesněji modelovat, je nutné zpřesnit a doplnit jaderná data pro mnohé (n, xn) reakce a to v širokém rozsahu energií [51].

Kromě zmíněných přímých aplikací v pokročilých jaderných systémech jsou mnohé z uvedených materiálů vhodné k dozimetrii pole rychlých neutronů. Optimálním materiálem pro tyto účely je prvek, u kterého se v přírodě vyskytuje pouze jediný stabilní izotop, má vysoké prahové energie vybraných reakcí a produkty těchto reakcí mají vhodné poločasy rozpadu, energie a intenzity emitovaných gama fotonů tak, aby byla jejich analýza na gama spektrometrické soustavě co možná nejjednodušší a nejpřesnější. Tyto předpoklady do jisté míry splňují všechny zkoumané materiály. Vybrané reakce na každém ze zmíněných materiálů jsou také součástí knihovny IRDFF a je tedy zájem o jejich účinné průřezy i pro vyšší energie. Pro účely dozimetrie v oblasti desítek MeV je perspektivní zejména yttrium. Produkty (n, xn) reakcí na yttriu mají obvykle vhodné poločasy rozpadu a výrazné gama linky. Možnost sledovat několik produktů prahových reakcí s různě vysokými prahy je vhodná zejména pro účely spektrometrie pole rychlých neutronů [52]. Jak bylo zmíněno již v sekci 1.6, mnohé ze zkoumaných reakcí se navíc nachází na *High priority request list* NEA OECD.

4.2 Příprava vzorků před ozářením

Ozařované materiály měly podobu tenkých čtvercových fólií s délkou strany 25,0 mm. Jedinou výjimkou byl fluorid sodný, který byl použit ve formě prášku. Prášek byl umístěn v polyethylenovém pouzdře tvaru válce s průměrem podstavy 16,0 mm a výškou 2,0 mm. Všechny vzorky mají vysokou čistotu, obvykle odpovídající 99,9 %, která je garantována výrobcem. Navíc každý zkoumaný prvek má v přírodě pouze jeden stabilní izotop. Díky tomu hmotnost vzorku přesně odpovídá hmotnosti sledovaného nuklidu. Výjimku opět tvoří NaF, u kterého je nezbytné z poměru atomových hmotností určit, jaká část celkové hmotnosti vzorku připadá na sodík a jaká na fluor. V případě použití vzorků, které již byly v minulosti ozařovány, je nutné před jejich opětovným použitím jejich důkladná analýza na gama spektrometrické soustavě. Tyto vzorky mohou potenciálně obsahovat dlouhožijící radionuklidy z předchozích ozařování, které by mohly ovlivnit výsledky nového experimentu. Analýza gama spektra vzorku umožní vyloučit přítomnost nevhodných radionuklidů, případně určit jejich množství před začátkem ozařování a vypočítat tak vhodnou korekci. Důležitý je také stručný rozbor zdrojů nejistot spojených s touto fází experimentu. Vzorky byly zváženy na laboratorních vahách, jejichž přesnost je 10^{-5} g. Hmotnosti vzorků se pohybují v řádu desetin až jednotek gramů. Uvedeným hodnotám odpovídají relativní nejistoty hmotnosti vzorků řádově 10^{-3} až 10^{-2} %. Délka strany fólie i její tlouštka jsou také garantovány výrobcem. Všechny rozměry byly pro kontrolu ověřeny digitálním posuvným měřítkem s přesností 0,01 mm. Relativní nejistota určení plochy fólie je tedy v řádu 10^{-3} až 10^{-2} %, u tloušťky fólie se jedná typicky o desetiny procenta.

Před ozařováním byl každý vzorek zabalen do obálky z papíru a polyethylenové lepící pásky. Obálky slouží zejména jako ochranná bariéra, aby při manipulaci s ozářeným vzorkem nedošlo ke kontaminaci HPGe detektoru nebo jiného vybavení. Obzvlášť pečlivě musí být zabalen vzorek se sypkým NaF.

Významné parametry všech ozařovaných fólií jsou shrnuty v Tab. 1. Pojmem ozařovací pozice se rozumí přibližná vzdálenost středu ozařovaného vzorku od středu lithiového terče.

Vzorek	Hmotnost (mg)	Rozměry (mm)	Ozařovací pozice (mm)
Y	1443,86	$25,0 \times 25,0 \times 0,50$	97
Au	$1512,\!41$	$25,0{\times}25,0{\times}0,10$	98
Al	348,78	$25,0 \times 25,0 \times 0,20$	99
Co	$2977,\!80$	$25,0{\times}25,0{\times}0,50$	100
Bi	$3067,\!24$	$25,0 \times 25,0 \times 0,50$	101
NaF	979,70	$25,0 \times 25,0 \times 2,0$	104

Tab. 1: Parametry ozařovaných vzorků.

Při experimentu na kvazimonoenergetickém urychlovačem řízeném zdroji neutronů je dopředu známá přibližná hodnota energie píku neutronů. Před samotným ozařováním je vhodné provést rozsáhlou rešerši, které reakce mohou ve zvoleném aktivačním detektoru vzhledem ke svým prahovým energiím probíhat, a mají-li produkty těchto reakcí dostatečně dlouhý poločas rozpadu a vhodné gama linky, aby byla umožněna jejich detekce. Zmíněná rešerše umožní zvolit optimální harmonogram analýzy ozářených vzorků pomocí gama spektrometrické aparatury, což je klíčové zejména pro získání dostatečného množství dat pro radionuklidy s krátkými poločasy rozpadu.

4.3 Průběh ozařování

Ozařování probíhalo dne 7. 10. 2020 od 13:04 do 22:30 pomocí urychlovačem řízeného neutronového zdroje NG-2 s připojenou lithiovou terčovou stanicí. Svazek protonů dodávaný cyklotronem U-120M měl energii přibližně 20,4 MeV. Svazek měl gaussovskou distribuci s pološířkou 200 až 300 keV, nejistota určení jeho energie odpovídá 1,5% [53]. Proud protonového svazku představuje sumu náboje protonů urychlených za jednotku času. Jeho velikost během ozařování kolísala okolo $5,5 \,\mu\text{A}$, jak je patrné ze záznamu na Obr. 4.1. Podle dokumentace měřícího přístroje odpovídá nejistota měření proudu hodnotě 5%. Tloušťka použitého lithiového terče, který zajišťuje produkci neutronů, je 2 mm s tolerancí 5 % [54]. Balíček ozařovaných fólií byl pomocí lepící pásky připevněn k hliníkovému držáku vzorků, který po připojení k lithiové terčové stanici zaručuje fixní pozici vzorků po celou dobu ozařování. Vzorky byly umístěné ve vzdálenostech přibližně 97 až 106 mm od Li terče. Pořadí vzorků při ozařování bylo následující: Y, Au, Al, Co, Bi, NaF, přičemž Y bylo nejblíže zdroji. Ze zkušenosti pracovníků OJR ÚJF vyplývá, že nejistotu vzdálenosti ozařovaného vzorku od Li terče je vhodné uvažovat 2%. Tloušťka balíčku ozařovaných vzorků byla významně zvětšena použitím papírových ochranných obálek, odpovídala 9,4 mm. Změna hustoty toku neutronů v okolí dané ozařovací pozice je v rozmezí 1 až 2% na milimetr. Rozdíl v hustotě toku neutronů mezi prvním a posledním ozařovaným vzorkem tedy může být až 20%. Proto je nezbytné pečlivě zaznamenat přesnou pozici každého vzorku a pro každý zvlášť určit příslušnou hustotu toku neutronů. Je zřejmé, že spektrometrie lithiové terčové stanice a přesný popis prostorové závislosti produkovaného neutronového pole jsou zcela klíčové pro výpočet účinných průřezů. Proto je uvedené problematice věnována celá kapitola 7.

4.4 Analýza ozářených vzorků

Po ukončení ozařování bylo nutné několik minut počkat, než klimatizační systém vyměnil vzduch v cyklotronové hale, aby se snížilo množství plynných radionuklidů. Po dozimetrické kontrole byly vzorky umístěny do přepravního kontejneru a přeneseny do laboratoře na pracovišti OJS. Zde byl každý vzorek opakovaně podrobován analýze na gama spektrometrické soustavě. Měření probíhala po dobu sedmi měsíců, v případě vymření sledovaného radionuklidu v kratším čase byla ukončena dříve. Celkem bylo v rámci tohoto experimentu naměřeno a následně analyzováno přes sto gama spekter. Používán byl HPGe detektor Canberra GC3018 s relativní účinností 35%. Kalibrace účinnosti detektoru byla převzata od kolegů z OJS M. Fi-krleho a P. Chudoby. Při měření bylo používáno sedm různých vzdáleností vzorku od detektoru v rozmezí 3 až 17 cm. Nejistoty spojené s gama spektrometrickou analýzou jsou detailně diskutovány v kapitole 3. Přehled všech zkoumaných reakcí, použítá jaderná data a výsledky experimentu jsou shrnuty v kapitole 9.



Obr. 4.1: Průběh proudu svazku protonů během ozařování.

4.5 Účel a porovnání dosavadních experimentů

Primárním cílem všech tří provedených experimentů je přispět k doplnění a zpřesnění jaderných dat u vybraných reakcí, z nichž některé by mohly být potenciálně důležité pro pokročilé jaderné systémy. Je snaha výsledky experimentů publikovat a přispět tak k rozšíření knihovny experimentálních jaderných dat EXFOR.

Všechna popsaná ozařování probíhala na neutronovém zdroji řízeném řežským cyklotronem U-120M. První experiment byl uskutečněn a detailně popsán v rámci bakalářské práce [42]. Byly ozářeny vzorky bismutu, hliníku, yttria a zlata. Následně byly stanoveny účinné průřezy jedenácti sledovaných reakcí s těmito materiály pro energii neutronů 27,5(7) MeV. Při dalším experimentu, který je detailně popsán ve výzkumném úkolu [35], byly ozářeny fólie ze stejných prvků, avšak při energii neutronů 19,8(9) MeV. Kvůli nižší energii neutronů se podařilo sledovat pouze osm reakcí, tři dříve sledované reakce mají vyšší prahové energie než zmíněných 19,8(9) MeV. Druhý experiment byl kromě měření účinných průřezů navržen i na ověření charakteristik neutronového pole lithiové terčové stanice. Vzorky hliníku a zlata byly ozářeny ve třech různých vzdálenostech od zdroje neutronů. Detaily o této studii jsou uvedeny v sekci 7.5. Při třetím experimentu byly kromě čtyř již zmíněných materiálů navíc zkoumány i vzorky kobaltu a fluoridu sodného (NaF). Ozařování probíhalo při energii neutronů 17,5(10) MeV. Analýza některých reakcí na Co i NaF byla značně komplikovaná a vedla k nutnosti netradičního využití gama spektrometrické soustavy, což je detailně popsáno v následujících kapitolách 5 a 6.

5 Kaskádní rozpad

Rovnice (3-16) pro výpočet výtěžku byla odvozena na základě předpokladu, že sledovaný radionuklid vzniká pouze prostřednictvím přímé reakce s neutrony emitovanými externím zdrojem. Tento předpoklad však není splněn v případě, kdy se sledovaný radionuklid nachází v rozpadové řadě jiného ve vzorku též produkovaného radionuklidu. Při studiu (n, *x*n) reakcí s materiálem, který je velmi čistý a obsahuje prakticky jediný nuklid, dochází k porušení uvedeného předpokladu ve významné míře jen v případě, kdy při ozařování sledovaný radionuklid vzniká nejen v základním, ale i v izomerním stavu. Izomerní jádra se deexcitují na jádra v základním stavu, čímž zvyšují jejich počet. Tento efekt je nezbytné zohlednit při výpočtu výtěžku a je nutné použít komplexnější vztahy. V následujících odstavcích je nastíněno odvození zmíněných vztahů a problematika kaskádního rozpadu je ukázána na konkrétních příkladech podložených experimentálními daty.

5.1 Rovnice kaskádního rozpadu

Nechť při ozařování vzniká sledovaný radionuklid jak v základním, tak i právě v jednom izomerním stavu. Označení indexem g (z anglického ground) znamená základní stav sledovaného radionuklidu a označení indexem m (z anglického metastable) stav izomerní. Výtěžek kýžené reakce lze také chápat jako součin počtu jader produkovaných touto reakcí v okamžiku ukončení ozařování N_0 a vhodného korekčního součinitele $C_{\rm irr}$ zohledňujícího rozpad zmíněných jader během samotného ozařování:

$$N_{\rm výtěžek} = N_0 C_{\rm irr}.$$
(5-1)

Formulace (5-1) je užitečná při odvozování rovnic kaskádního rozpadu.

5.1.1 Bilance během ozařování

Za předpokladu, že jádra v základním stavu vznikají jako produkt sledované (n, xn) reakce a také deexcitací izomeru, lze časovou závislost počtu těchto jader $N_{\rm g}(t)$ popsat diferenciální rovnicí:

$$\frac{\mathrm{d}N_{\mathrm{g}}(t)}{\mathrm{d}t} = P_{\mathrm{g}} - \lambda_{\mathrm{g}} N_{\mathrm{g}}(t) + p_{\gamma} \lambda_{\mathrm{m}} N_{\mathrm{m}}(t), \qquad (5-2)$$

kde P představuje rychlost produkce radionuklidu, λ rozpadovou konstantu. Deexcitace izomeru probíhá s pravděpodobností p_{γ} emisí gama záření za vzniku základního stavu, ale může probíhat i jinými způsoby, například čistě beta rozpadem. Časovou závislost počtu jader izomeru $N_{\rm m}(t)$ lze analogicky popsat rovnicí:

$$\frac{\mathrm{d}N_{\mathrm{m}}(t)}{\mathrm{d}t} = P_{\mathrm{m}} - \lambda_{\mathrm{m}}N_{\mathrm{m}}.$$
(5-3)

Při výpočtech se využívá předpokladu konstantní rychlosti produkce jader P během ozařování. Řešením soustavy diferenciálních rovnic (5-2) a (5-3) s počátečními podmínkami $N_{\rm g}(t=0) = 0$, resp. $N_{\rm m}(t=0) = 0$ lze získat vztah:

$$N_{\rm g}(t) = \frac{p_{\gamma} P_{\rm m} + P_{\rm g}}{\lambda_{\rm g}} \left(1 - e^{-\lambda_{\rm g} t}\right) + \frac{p_{\gamma} P_{\rm m}}{\lambda_{\rm g} - \lambda_{\rm m}} \left(e^{-\lambda_{\rm g} t} - e^{-\lambda_{\rm m} t}\right).$$
(5-4)

Ze vztahu (5-1) je možné vyjádřit doposud neznámý korekčního součinitele $C_{\rm irr,g}$ zohledňujícího rozpad jader v základním stavu během samotného ozařování:

$$C_{\rm irr,g} = \frac{N_{\rm výtěžek,g}}{N_{\rm g}(t=t_{\rm irr})} = \frac{P_{\rm g} t_{\rm irr}}{N_{0,\rm g}}.$$
(5-5)

Dosazením $N_{\rm g}(t = t_{\rm irr}) = N_{0,\rm g}$ určeného na základě vztahu (5-4) do rovnice (5-1) lze neznámý koeficient $C_{\rm irr,g}$ vyjádřit pomocí veličin, které lze určit na základě měření:

$$C_{\rm irr,g} = \frac{P_{\rm g} t_{\rm irr}}{N_{0,\rm g}} = \frac{\lambda_{\rm g} t_{\rm irr}}{1 - e^{-\lambda_{\rm g} t_{\rm irr}}} - \frac{p_{\gamma} N_{\rm výtěžek,m}}{N_{0,\rm g} \left(1 - e^{-\lambda_{\rm g} t_{\rm irr}}\right)} \left(1 - \frac{\lambda_{\rm m} e^{-\lambda_{\rm g} t_{\rm irr}} - \lambda_{\rm g} e^{-\lambda_{\rm m} t_{\rm irr}}}{\lambda_{\rm m} - \lambda_{\rm g}}\right),\tag{5-6}$$

kde $N_{\text{výtěžek,m}} = P_{\text{m}} t_{\text{irr}}.$

5.1.2 Bilance po ukončení ozařování

Po ukončení ozařování jsou rychlosti produkce $P_{\rm g}$ i $P_{\rm m}$ rovny nule. Tím se zjednoduší diferenciální rovnice (5-2) a (5-3) do tvaru:

$$\frac{\mathrm{d}N_{\mathrm{g}}(t)}{\mathrm{d}t} = -\lambda_{\mathrm{g}} N_{\mathrm{g}}(t) + p_{\gamma} \lambda_{\mathrm{m}} N_{\mathrm{m}}(t), \qquad (5-7)$$

$$\frac{\mathrm{d}N_{\mathrm{m}}(t)}{\mathrm{d}t} = -\lambda_{\mathrm{m}}N_{\mathrm{m}}(t).$$
(5-8)

Řešením této nové soustavy s počátečními podmínkami $N_{\rm g}(t=0) = N_{0,\rm g}$, resp. $N_{\rm m}(t=0) = N_{0,\rm m}$ lze odvodit vztah:

$$N_{\rm g}(t) = \frac{p_{\gamma} \,\lambda_{\rm m} \,N_{0,\rm m}}{\lambda_{\rm g} - \lambda_{\rm m}} \left(e^{-\lambda_{\rm m} t} - e^{-\lambda_{\rm g} t}\right) + N_{0,\rm g} \,e^{-\lambda_{\rm g} t}.$$
(5-9)

Vyjádřením $N_{0,g}$ ze vztahu (5-9), rozepsáním $N_g(t)$ pomocí standardních spektrometrických korekcí (viz. kapitola 3) a přeznačením t na t_0 je odvozen vztah pro počet jader v základním stavu v okamžiku ukončení ozařování:

$$N_{0,g} = \frac{S_{\text{pik}} C_{\text{abs}} C_{\text{stab}}}{I_{\gamma} \epsilon_{\text{P}} C_{\text{COI}} C_{\text{plocha}}} \frac{t_{\text{real}}}{t_{\text{live}}} \frac{e^{\lambda_{\text{g}} t_{0}}}{1 - e^{-\lambda_{\text{g}} t_{\text{real}}}} + \frac{p_{\gamma} \lambda_{\text{m}} N_{0,\text{m}}}{\lambda_{\text{g}} - \lambda_{\text{m}}} \left(1 - e^{(\lambda_{\text{g}} - \lambda_{\text{m}}) t_{0}}\right).$$
(5-10)

5.1.3 Výpočet výtěžku při kaskádním rozpadu

Výtěžek radionuklidu v základním stavu $N_{výtěžek,g}$ lze na základě vztahu (5-1) vypočítat jako:

$$N_{\rm výtěžek,g} = C_{\rm irr,g} N_{0,g}, \tag{5-11}$$

kde $C_{\rm irr,g}$ je korekční koeficient na rozpad jader v základním stavu během ozařování definovaný vztahem (5-6), $N_{0,g}$ je počet jader v základním stavu v okamžiku ukončení ozařování definovaný vztahem (5-10). Výtěžek jader v izomerním stavu lze určit pomocí klasické rovnice (3-16) pro výpočet výtěžku bez ohledu na kaskádní rozpad.

5.2 Kaskádní rozpad u yttria

Z hlediska měření účinných průřezů metodou offline vyhodnocování aktivačních detektorů lze vliv izomeru rozdělit na dva případy. Za prvé se jedná o situaci, kdy je poločas rozpadu izomeru příliš krátký, než aby mohla být deexcitace po ukončení ozařování detekována. V tomto případě nelze rozlišit výtěžky reakcí vedoucích čistě na vznik jader v základním, respektive izomerním stavu, nýbrž pouze jejich součet. Kvůli tomu získaný účinný průřez analogicky představuje součet účinných průřezů obou zmíněných reakcí. V druhém případě, kdy je poločas rozpadu izomeru dostatečně dlouhý, lze pomocí analýzy na gama spektrometrické soustavě určit výtěžky, potažmo tedy účinné průřezy obou reakcí samostatně. Oba zmíněné případy lze ilustrovat na následujícím experimentu, který byl uskutečněn v rámci bakalářské práce. Podařilo se sledovat tyto reakce:

⁸⁹
$$Y(n, 2n)^{88g+m}Y$$
, ⁸⁹ $Y(n, 3n)^{87g}Y$ a ⁸⁹ $Y(n, 3n)^{87m}Y$.

Poločas rozpadu ^{88m}Y je pouze 14 ms [43], což znemožňuje následnou detekci tohoto radionuklidu po ukončení ozařování. Odlišná situace nastává u ^{87m}Y, jehož poločas rozpadu je 13,37 hodiny [43]. Díky značnému počtu uskutečněných měření je možné sestavit podrobné rozpadové křivky ^{87m}Y i ^{87g}Y, které jsou ukázány na Obr. 5.1 a Obr. 5.2. Je zde patrný významný nárůst počtu jader v základním stavu po ukončení ozařování, který je dán právě rozpadem izomeru. Každý bod ve zmíněných obrázcích představuje jedno měření včetně nejistoty počtu jader. Ovšem tyto nejistoty jsou ve srovnání s prezentovaným rozsahem počtu jader dosahujícího několika řádů tak malé, že je zejména při použití logaritmického měřítka prakticky nelze vizuálně odlišit. Spojité křivky představují proložení experimentálních dat exponenciálním rozpadovým zákonem (3-5) v případě izomeru a výše odvozenou rovnicí kaskádního rozpadu (5-9) pro jádra v základním stavu.



Obr. 5.1: Rozpadové křivky $^{87\mathrm{m}}\mathrm{Y}$
a $^{87\mathrm{g}}\mathrm{Y}.$ Upraveno z [42].



Obr. 5.2: Rozpadové křivky $^{87\mathrm{m}}\mathrm{Y}$ a $^{87\mathrm{g}}\mathrm{Y}.$ Upraveno z [42].

5.3 Kaskádní rozpad u zlata

Podobně jako u yttria se podařilo kaskádní rozpad sledovat i v případě nuklidu ¹⁹⁶Au, který při ozařování vznikal jak v základním stavu ^{196g}Au, tak dokonce dvou izomerních stavech ^{196m1}Au a ^{196m2}Au. Poločas rozpadu ^{196g}Au je přibližně 6,2 dne, v případě ^{196m1}Au pak 8,1 sekundy a pro ^{196m2}Au se jedná o 9,6 hodiny [43]. Izomerní stav ^{196m1}Au má příliš krátký poločas rozpadu a prakticky všechna vzniklá jádra se deexcitují před začátkem měření. Podařilo se tedy odlišit reakce:

197
Au(n, 2n) $^{196g+m1}$ Au a 197 Au(n, 2n) 196m2 Au.

Rozpadové křivky jsou uvedeny na Obr. 5.3.



Obr. 5.3: Rozpadové křivky ^{196m2}Au a ^{196g+m1}Au.

5.4 Kaskádní rozpad u kobaltu

Při ozařování kobaltu vzniká také jak základní stav ^{58g}Co, tak izomer ^{58m}Co. Poločas rozpadu ^{58g}Co je přibližně 70,9 dne, u izomeru se jedná o 9,1 hodiny [43]. Je zde však jedna významná odlišnost oproti výše popsaným kaskádním rozpadům na yttriu a zlatě. Rozpad izomerního stavu je charakterizován pouze jedinou gama linkou, která má navíc značně nízkou energii 24,9 keV a velice malou intenzitu odpovídající přibližně 0,04 % [43]. Na gama spektrometrické aparatuře, která je na OJS k dispozici, proto nelze přeměnu izomerního stavu přímo sledovat. Je však možné pozorovat nepřímý projev deexcitace izomeru, kterým je nárůst počtu jader v základním stavu. Přeměna ^{58g}Co již má vhodnou gama linku a může být tudíž studována. K popsané situaci lze přistupovat dvěma způsoby. První možnost je počkat, dokud nedojde k deexcitaci prakticky všech izomerních jader. Potom lze zahájit měření jader v základním stavu a určit tak účinný průřez reakce:

$${}^{59}Co(n, 2n){}^{58g+m}Co.$$

Existuje však ještě druhý způsob přístupu k analýze, který navíc umožní rozlišit jednotlivé reakce:

59
Co(n, 2n) 58g Co a 59 Co(n, 2n) 58m Co.

Pokud je dobře proměřena časová závislost počtu jader v základním stavu (dále v textu také nazývána jako rozpadová křivka jader v základním stavu), lze tato experimentální data proložit teoretickým vztahem pro kaskádní rozpad po ukončení ozařování (5-9). Neznámými parametry zmíněného vztahu jsou konstanty $N_{0,g}$ a $N_{0,m}$, tedy počet jader v základním, resp. izomerním stavu, v okamžiku ukončení ozařování. Právě tyto hodnoty lze při prokládání experimentálních dat vhodným softwarem určit. K tomuto účelu byl využit program GNUplot [55]. Výtěžky jednotlivých reakcí pak lze s využitím vztahů (3-7), (5-6) a (5-11) vypočítat jako:

$$N_{\rm výtěžek,g} = N_{0,g} \left[\frac{\lambda_{\rm g} t_{\rm irr}}{1 - e^{-\lambda_{\rm g} t_{\rm irr}}} - \frac{p_{\gamma} N_{\rm výtěžek,m}}{N_{0,g} \left(1 - e^{-\lambda_{\rm g} t_{\rm irr}}\right)} \left(1 - \frac{\lambda_{\rm m} e^{-\lambda_{\rm g} t_{\rm irr}} - \lambda_{\rm g} e^{-\lambda_{\rm m} t_{\rm irr}}}{\lambda_{\rm m} - \lambda_{\rm g}} \right) \right],$$

$$N_{\rm výtěžek,m} = N_{0,m} \frac{\lambda t_{\rm irr}}{1 - e^{-\lambda t_{\rm irr}}}.$$
(5-13)

Při dřívějších experimentech, kdy byl studován kaskádní rozpad u ¹⁹⁶Au a ⁸⁷Y, byly dobře proměřeny rozpadové křivky jak základního, tak izomerního stavu. Toho lze s výhodou využít k ověření přesnosti prokládání dat v podobných situacích. Konstanty $N_{0,g}$ a $N_{0,m}$ byly pro oba nuklidy určeny jak standardním postupem na základě analýzy příslušné gama linky, tak pomocí výše popsaného proložení rozpadových křivek. Získané výsledky jsou shrnuty v Tab. 2. Ukazuje se, že v rámci nejistot je mezi oběma přístupy k určení $N_{0,g}$ a $N_{0,m}$ výborná shoda. Tím je částečně ověřena věrohodnost výsledků získaných pomocí proložení rozpadové křivky pro ⁵⁸Co, které

nelze určit standardním postupem vyhodnocování. Tyto výsledky jsou taktéž uvedeny v Tab. 2. Rozpadová křivka ^{58g}Co včetně proložení je k nahlédnutí na Obr. 5.4, resp. Obr. 5.5, kde je navíc uvedena i teoretická rozpadová křivka pro izomerní stav.

Celkový počet jader v okamžiku ukončení ozařovaní N_0 (⁵⁸Co) lze určit dvěma způsoby. Zaprvé jako součet počtu jader v základním a izomerním stavu určený na základě proložení rozpadové křivky:

$$N_0 \left({}^{58}\text{Co} \right) = N_{0,\text{g}} + N_{0,\text{m}} = 2,94(4) \cdot 10^{10}.$$
 (5-14)

Zadruhé lze počkat, až se všechna izomerní jádra deexcitují. Poté se rozpad jader v základním stavu řídí čistě exponenciálním rozpadovým zákonem. Extrapolací těchto měření do okamžiku ukončení ozařování lze určit přímo hodnotu:

$$N_0 \left({}^{58}\text{Co} \right) = 2,96(5) \cdot 10^{10}.$$
 (5-15)

Výborná shoda v rámci nejistot mezi oběma přístupy je dalším příspěvkem k částečné validaci požitého postupu.

Tab. 2: Srovnání počtu jader v základním stavu v okamžiku ukončení ozařování $N_{0,g}$, resp. v izomerním stavu $N_{0,m}$.

Počet jader v okamžiku ukončení ozařování	¹⁹⁶ Au	⁸⁷ Y	$^{58}\mathrm{Co}$
$N_{0,\mathrm{g}}$ na základě měření	$1,609(8) \cdot 10^{10}$	$5,427(27) \cdot 10^9$	
$N_{0,g}$ na základě proložení experimentálních dat	$1,597(8) \cdot 10^{10}$	$5,452(26) \cdot 10^9$	$1,65(4) \cdot 10^{10}$
$N_{0,\mathrm{m}}$ na základě měření	$1,121(6) \cdot 10^9$	$8,153(24) \cdot 10^9$	
$N_{0,\mathrm{m}}$ na základě proložení experimentálních dat	$1,19(10)\cdot 10^9$	$8,140(30) \cdot 10^9$	$1,29(4) \cdot 10^{10}$



Obr. 5.4: Rozpadová křivka ⁵⁸co.



Obr. 5.5: Rozpadové křivky $^{\rm 58m}{\rm Co}$ a $^{\rm 58g}{\rm Co}.$

6 Možnosti gama spektrometrické analýzy čistého pozitronového zářiče

Čistým beta zářičem je nazýván radionuklid, jehož dceřiné jádro vzniklé při beta přeměně je v základním stavu. V takovém případě není beta přeměna doprovázena emisí gama záření, protože nedochází k deexcitaci dceřiného jádra. Běžným postupem při analýze čistého beta zářiče ve směsi radionuklidů je snaha o určitý stupeň chemické separace sledovaného radionuklidu následovaná měřením beta záření typicky pomocí kapalných scintilátorů nebo plynových detektorů [41]. Jedná se však o značně komplikovanou analýzu vyžadující speciální vybavení. Dílčím cílem této práce je prozkoumat možnosti analýzy čistých beta zářičů pomocí gama spektrometrické aparatury za jistých specifických okolností.

6.1 Vliv beta zářiče na energetické spektrum gama záření

Pokud se jedná o čistý beta zářič podléhající beta mínus přeměně, není daný radionuklid prakticky možné na gama spektrometrické aparatuře blíže analyzovat. Významně odlišná situace nastává pro radionuklid podléhající beta plus přeměně, při které dochází k emisi pozitronu. Doba života pozitronu je poměrně krátká, vlivem ionizačních ztrát při pohybu této nabité částice hmotou dochází k jeho rychlému zpomalení. Pozitron s velmi nízkou energií se nevyhnutelně dříve či později ocitne v blízkosti elektronu, své antičástice, a následně anihilují. K anihilaci dominantně dochází po zastavení pozitronu, tedy v klidu. Pozitron i elektron zaniknou a dojde k uvolnění dvou gama fotonů, které jsou také nazývány anihilačními. Každý anihilační foton má energii blízkou klidové hmotnosti elektronu, tj. 511 keV. Pokud je pozitronový zářič analyzován na gama spektrometrické aparatuře, je v energetickém spektru gama záření patrný tzv. anihilační pík, jehož energie odpovídá právě zmíněným 511 keV. Pološířka anihilačního píku je vždy větší ve srovnání s píky, které odpovídají gama záření přímo emitovanému jádry. Zmíněné rozšíření má svůj původ v nenulové rychlosti elektronu a pozitronu, při anihilaci nemusí být úplně v klidu. Ze zákonů zachování pak vyplývá, že vznikající fotony nemusí mít energii přesně 511 keV. Avšak součet energií obou vznikajících fotonů je velmi blízký hodnotě $2 \cdot 511 = 1022 \text{ keV}$. Aby byla zachována hybnost, pohybují se vzniklé fotony po přímce v opačných směrech. Proto do citlivého objemu detektoru typicky dorazí nejvýše jeden anihilační foton z vzniklého páru². Vzhledem k tomu, že některé fotony dorazí s mírně vyšší, jiné s mírně nižší energií než 511 keV, dochází k rozšíření anihilačního píku [41].

 $^{^2 \}rm Oba fotony mohou být registrovány pouze v situaci, kdy k anihilaci dojde přímo v citlivém objemu detektoru. V tom případě existuje určitá pravděpodobnost, že budou vyhodnoceny jako jediný foton s energií 1022 keV, a tudíž stejně nepřispějí k píku 511 keV.$

6.2 Experimentální studium čistého pozitronového zářiče

Za účelem experimentálního ověření možností analýzy čistého pozitronového zářiče pomocí gama spektrometrické aparatury byl při experimentu popsaném v kapitole 4 ozářen vzorek fluoridu sodného. Fluor má v přírodě pouze jeden stabilní izotop ¹⁹F. Při vystavení poli rychlých neutronů dochází prostřednictvím reakce ¹⁹F(n, 2n)¹⁸F k produkci čistého pozitronového zářiče ¹⁸F, jehož poločas rozpadu 109,8 minut [43] je pro podobný experiment velmi vhodný. Další nespornou výhodou této soli je přítomnost jader sodíku, který má také pouze jeden stabilní izotop ²³Na. Reakce ²³Na(n, 2n)²²Na totiž vede na vznik radionuklidu ²²Na s poločasem rozpadu 2,6 let [43], který při své přeměně emituje gama záření s vhodnou energií a intenzitou. Radionuklid ²²Na ovšem také podléhá beta plus přeměně, což znamená, že jeho rozpad též přispívá k anihilačnímu píku. Ovšem vzhledem k velkému rozdílu v poločasech rozpadu ¹⁸F a ²²Na je ovlivnění anihilačního píku rozpadem ²²Na velmi malé. Navíc lze vypočítat vhodnou korekci na úplné odstranění tohoto vlivu.

Ve vzorcích ozářených při experimentu lze nalézt i další radionuklidy, které podléhají beta plus přeměně, respektive elektronovému záchytu, který ovšem u většiny z nich zastává dominantní roli. Podařilo se identifikovat tři radionuklidy, při jejichž přeměně je emitováno dostatečné množství pozitronů, aby bylo dobře patrné ovlivnění anihilačního píku. Jedná se o ¹⁸F, ²²Na a ⁵⁸Co. Důležité parametry pozitronových spekter těchto radionuklidů jsou shrnuty v Tab. 3 a jejich vizualizace je uvedena na Obr. 6.1.



Obr. 6.1: Srovnání energetických spekter pozitronů emitovaných radionuklidy ¹⁸F, ²²Na a ⁵⁸Co, převzato z [56].

Radionuklid	Typ přeměny	Podíl β + přeměny (%)	Podíl záchytu elektronu (%)	Střední energie spektra pozitronů (keV)
¹⁸ F	$100\% \beta + \check{c}i EC$	96,7	3,3	249,8
22 Na	$100\%~\beta+$ či EC	90,3	9,7	$215,\! 6$
58 Co	$100~\%~\beta+$ či EC	14,9	85,1	201,1

Tab. 3: Důležité parametry pozitronových spekter vybraných radionuklidů [43]. Zkratka EC znamená záchyt neutronu (z anglického *electron capture*).

6.3 Simulace účinnosti detektoru v kódu MCNPX

Pro určení kalibrace účinnosti HPGe detektoru Canberra GC3018 byl použit modifikovaný model tohoto detektoru vytvořený původně kolegou z OJS P. Chudobou v kódu MCNPX. Vizualizace zmíněného modelu je uvedena na Obr. 6.2. Ozářený vzorek fluoridu sodného byl definován jako pozitronový zářič emitující spojité spektrum pozitronů, které bylo převzato z [56]. K reprezentaci tohoto spektra byl využit zápis v podobě histogramu. Co se týče geometrie, vzorek fluoridu sodného byl definován jako izotropní zdroj válcového tvar s průměrem podstavy 16 mm a výškou 2 mm. Okolo vzorku byla vytvořena dvě tenká uhlíková pouzdra, která představují vrstvy obalových materiálů (papír, polyethylenový sáček, lepící páska). První pouzdro těsně obklopuje objem prášku, druhé reprezentuje volnější čtvercovou papírovou obálku. Je snaha o co nejpřesnější reprezentaci vzorku a jeho okolí, protože lze očekávat, že mnohé z emitovaných pozitronů mohou anihilovat již v obalových vrstvách či v plastovém držáku, na kterém je zářič při analýze umístěn. Za účelem potvrzení či vyvrácení tohoto očekávání byla provedena ještě další sada simulací, kdy byl vzorek NaF definován přímo jako zdroj gama záření s energií 511 keV, což právě odpovídá situaci, kdy k anihilaci dojde už v rámci vzorku. Je zde však ještě jedna významná odlišnost, kterou je třeba vzít v úvahu. Při anihilaci dojde k emisi dvou gama fotonů pohybujících se po přímce v opačných směrech. Při jednom rozpadu tedy dojde k emisi jednoho pozitronu, ale prakticky dvou fotonů. Nechť je vnitřek stínícího boxu obklopujícího detektor rozdělen na dvě části dělící rovinou kolmou na osu detektor-vzorek a navíc procházející samotným vzorkem. Letí-li jeden z emitovaných anihilačních fotonů do poloprostoru obsahujícího citlivý objem detektoru, letí zákonitě druhý anihilační foton do druhého poloprostoru. Při jediném rozpadu tedy dojde k emisi fotonů do obou poloprostorů. Je-li však vzorek definován jako zdroj gama fotonů, dojde při jednom rozpadu k emisi vždy jen do jednoho ze zmíněných poloprostorů. Vynásobením faktorem dva každého bodu kalibrační křivky pro vzorek jako zdroj jednoho gama fotonu na jeden rozpad lze přibližně dostat kalibraci pro vzorek jako zdroj dvou gama fotonů na jeden rozpad. Srovnání zmíněných kalibrací je uvedeno na Obr. 6.3. Kalibrační křivky pro vzorek jako zdroj pozitronů a vzorek jako zdroj dvou gama fotonů na jeden rozpad vykazují poměrně dobrou shodu, čímž je ověřeno, že většina pozitronů anihiluje velmi blízko vzorku. Zároveň je na Obr. 6.3 ukázáno, že kalibrace pro vzorek jako zdroj jednoho gama fotonu

na jeden rozpad je ve velmi dobré shodě s experimentálně určenou kalibrací HPGe detektoru. To potvrzuje věrohodnost použitého MCNPX modelu. Výsledná kalibrace účinnosti HPGe detektoru pro případ pozitronového zdroje ¹⁸F je uvedena na Obr. 6.3. Analogickým způsobem byla určena kalibrace i pro zbývající dva vybrané radionuklidy ²²Na a ⁵⁸Co.





Obr. 6.2: Vizualizace modelu HPGe detektoru Canberra GC3018 vytvořeného v kódu MCNPX vytvořená pomocí programu The Visual Editor [57].



Obr. 6.3: Srovnání různých přístupů ke kalibraci účinnosti HPG
e detektoru v případě radionuklidu $^{18}{\rm F}$. Křivky vynesené přerušovanou čarou nemají fyzikální význam, slouží jen k zlepšení přehlednosti obrázku.

6.4 Výpočet výtěžku na základě analýzy anihilačního píku

Po ukončení ozařování byly vzorky NaF a Co opakovaně podrobovány analýze na gama spektrometrické aparatuře s cílem studovat anihilační pík, který při použitém vybavení představuje prakticky jediný zdroj informací o čistém pozitronovém zářiči. Ve vzorku kobaltu byl jako jediný významný zdroj pozitronů určen rozpad ⁵⁸Co. U fluoridu sodného byla situace složitější, protože k anihilačnímu píku přispívá jak přeměna ¹⁸F, tak ²²Na. Příspěvky těchto radionuklidů lze rozlišit díky rozdílným poločasům rozpadu. Po rozpadu všech jader ¹⁸F je jediným významným zdrojem pozitronů v tomto vzorku ²²Na, jehož množství lze určit. Díky tomu je možné odlišit příspěvky ¹⁸F a ²²Na i v situaci, kdy jsou přítomny oba radionuklidy najednou. U všech vzorků byla také provedena korekce na příspěvek radiačního pozadí v laboratoři k anihilačnímu píku.

U vzorku NaF je vhodné krátce zmínit ještě jeden zdroj pozitronů. V průběhu ozařování vzniká kvůli reakci ²³Na (n, γ) ²⁴Na silný gama zářič ²⁴Na, který při své přeměně emituje gama fotony s vysokou energií. Zmíněné fotony mohou interagovat prostřednictvím tvorby elektron pozitronových páru a přispívat tak k anihilačnímu píku. Pro kvantifikaci uvedeného jevu byla s výhodou využita podrobná analýza jiného ozářeného vzorku, konkrétně hliníku. Ozářený vzorek Al obsahuje prakticky jediný významný radionuklid a to právě ²⁴Na z reakce ²⁷Al (n, α) ²⁴Na. Pro několik gama spekter vzorku Al byl určen vždy poměr plochy anihilačního píku (po odečtení vlivu pozadí v laboratoři) k ploše píku úplného pohlcení linky 1368,63 keV [43] charakterizující přeměnu ²⁴Na. Tím bylo určeno, jaký je průměrný příspěvek přeměny jednoho jádra ²⁴Na k anihilačnímu píku. Totéž bylo řešeno pro různé vzdálenosti zkoumaného vzorku od detektoru. Je zřejmé, že při použití téhož detektoru k analýze NaF, musí být příspěvek přeměny ²⁴Na k anihilačnímu píku analogický. Podařilo se prokázat, že vliv přeměny ²⁴Na na anihilační pík je zpravidla o několik řádů nižší než příspěvek přeměny ¹⁸F. První relevantní měření s cílem studovat ²²Na probíhají až po uplynutí více než deseti poločasů rozpadu ²⁴Na. Z uvedených důvodů lze vliv ²⁴Na na anihilační pík v obou diskutovaných případech zanedbat.

V situaci, kdy je na základě analýzy gama spektra určena plocha anihilačního píku $S_{pík,511}$ a je známa kalibrace účinnosti použitého detektoru pro zkoumaný pozitronový zářič $\epsilon_{P,511}$, lze vypočítat výtěžek pomocí modifikace dříve uvedeného standardního vzorce (3-16):

$$N_{\text{výtěžek}} = \frac{S_{\text{pík},511} C_{\text{abs}} C_{\text{stab}}}{\epsilon_{\text{P},511} I_{\beta+}} \frac{t_{\text{real}}}{t_{\text{live}}} \frac{e^{\lambda t_0}}{1 - e^{-\lambda t_{\text{real}}}} \frac{\lambda t_{\text{irr}}}{1 - e^{-\lambda t_{\text{irr}}}}.$$
(6-1)

Mezi zmíněné modifikace patří zahrnutí korekce na plochu zářiče C_{plocha} přímo do kalibrace účinnosti a nahrazení intenzity gama linky I_{γ} , která zde pozbývá smyslu, veličinou $I_{\beta+}$ zohledňující procentuální zastoupení beta plus přeměny vůči ostatním možným kanálům rozpadu (zejména pak vůči záchytu elektronu).

Je vhodné připomenout, že jediným zkoumaným čistým pozitronovým zářičem je ¹⁸F, zbylé dva radionuklidy při své přeměně emitují pozitrony i gama záření. Díky tomu je možné určit výtěžek jak standardním způsobem na základě příslušné gama linky, tak i pomocí analýzy anihilačního píku. Srovnání výsledků získaných na základě obou přístupů je shrnuto v Tab. 4. Z uvedených dat je zřejmé, že pro zkoumané nuklidy, v případě kdy lze provést srovnání, je v rámci nejistot velmi dobrá shoda mezi oběma přístupy. Tím je částečně validován netradiční způsob určení výtěžku na základě analýzy anihilačního píku. Lze tedy předpokládat, že údaj získaný pro ¹⁸F je věrohodný.

Tab. 4: Srovnání výtěžků vybraných reakcí získaných na základě analýzy příslušné gama linky a na základě analýzy anihilačního píku.

Radionuklid	Výtěžek na základě gama linky (-)	Výtěžek na základě anihilačního píku (-)	Rozdíl mezi oběma přístupy (%)
²² Na	$1,46(5) \cdot 10^9$	$1,51(4) \cdot 10^9$	-3,3
58 Co	$2,96(8) \cdot 10^{10}$	$2,86(4) \cdot 10^{10}$	+3,4
$^{18}\mathrm{F}$		$1,\!65(3)\cdot 10^9$	

Výpočet nejistoty výtěžku určeného na základě analýzy anihilačního píku je v podstatě téměř shodný jako v případě gama záření. Jedinou významnější odlišností je jiná nejistota kalibrace účinnosti detektoru $\epsilon_{P,511}$, která je odhadnuta na 5%, zatímco v případě experimentálně určené kalibrace pro gama záření je počítáno se 2%. Důvodem pro odhad nejistoty $\epsilon_{P,511}$ právě hodnotou pět procent je zkušenost s kalibrací účinnosti detektoru pro gama záření, kdy se ukazuje, že rozdíl mezi experimentálními hodnotami a výstupy téhož modelu v kódu MCNPX (jen pro jiný zářič) ve zkoumaných případech nikdy nepřevyšuje 5%. Díky tomu je do jisté míry oprávněné předpokládat, že v případě pozitronového zářiče tomu nebude významně jinak.

7 Spektrometrie urychlovačem řízeného zdroje neutronů

Klíčovou charakteristikou každého zdroje neutronů je energetické spektrum emitovaných částic. V následujícím textu je uveden přehled základních metod používaných při spektrometrii urychlovačem řízených neutronových zdrojů. Cílem je ukázat zejména praktické použití těchto metod při popisu kvazimonoenergetického neutronového spektra lithiové terčové stanice v ÚJF.

7.1 Určení spektra neutronů z doby letu

Metoda určení kinetické energie z doby letu spočívá v měření času, který neutron potřebuje k průletu mezi dvěma pevnými body se známou vzdáleností. V obecném pohledu ji lze samozřejmě aplikovat nejen na neutrony, ale prakticky na libovolný objekt, ať už se jedná o jiné částice, nebo i objekty z makrosvěta. Dále v textu je tato metoda označována zkratkou ToF (z anglického *time-of-flight*).

Obecný princip metody ToF

Pohyb emitovaného rychlého neutronu ve vzduchu lze považovat za rovnoměrný přímočarý. Jeho rychlost v lze tedy určit na základě znalosti přímé vzdálenosti s citlivého objemu detektoru od zdroje neutronů a času t potřebného k jejímu překonání podle vztahu:

$$v = \frac{s}{t}.\tag{7-1}$$

Výpočet kinetické energie E_k pak vychází z relativistického vztahu [3]:

$$E_{\rm k} = m_0 c^2 \left(\frac{1}{\sqrt{1 - \frac{v^2}{c^2}}} - 1 \right), \tag{7-2}$$

kde m_0 je klidová hmotnost neutronu a c rychlost světla.

ToF spektrometrie urychlovačem řízeného zdroje neutronů

Metoda ToF je principiálně velmi jednoduchá, ovšem její realizace při spektrometrii neutronových zdrojů naráží na mnohá úskalí. V první řadě je nezbytné zajistit periodický režim provozu tohoto zdroje, kdy je každá emise krátkého neutronového svazku následována určitým časovým intervalem, během nějž nejsou emitovány žádné částice. Toho lze docílit provozem urychlovače v pulzním režimu, nebo pravidelným přerušováním svazku pomocí mechanického separátoru (v angličtině

označovaného "chopper"), který je obvykle realizován jako rotující disk s několika radiálními štěrbinami umístěný kolmo k ose svazku. V případě urychlovačem řízených zdrojů je typický provoz v pulzním režimu. Při interakci svazku nabitých částic s terčem je kromě neutronů různých energií uvolněno i značné množství gama fotonů. Za předpokladu, že všechny částice uvolněné v rámci jednoho pulzu vniknou v témže okamžiku, a poté po nějaký čas nedochází k produkci dalších částic, dojde na cestě k detektoru k rozvrstvení částic podle rychlosti. Gama fotony se pohybují rychlostí světla v daném prostředí a proto dorazí do citlivého objemu detektoru všechny najednou a s jistým časovým předstihem před nejrychlejšími neutrony. To umožňuje spolehlivě odlišit odezvu detektoru na gama záření a zajistit vhodnou diskriminaci. Poté postupně do detektoru dorazí i neutrony, navíc seřazené od nejrychlejších po nejpomalejší, což umožní určit jejich energetické spektrum. V reálném případě však všechny produkované částice nevzniknou v jednom okamžiku, ale vznikají po celou dobu interakce svazku nabitých částic s terčem. Další idealizovanou situací je myšlenka, že před začátkem nového pulzu již všechny částice z předchozího pulzu dorazily do detektoru. Zpravidla je časové okno mezi jednotlivými pulzy příliš krátké a do detektoru dříve než nejpomalejší neutrony dorazí nejrychlejší neutrony z následujícího pulzu. Při zpracování odezvy detektoru je na tento jev nutné spočítat příslušnou korekci. Tím je dána i limita na minimální detekovatelnou energii neutronů. Pro účely metody ToF je vhodné, aby čas interakce pulzu nabitých částic s terčem byl co nejkratší, a následné okno, během nějž nejsou na terč přiváděny nabité částice, trvalo co nejdéle. Důležité je také zvolit optimální vzdálenost detektoru od zdroje neutronů. Dlouhá vzdálenost letu způsobí větší roztažení neutronového pulzu a umožní lepší energetické rozlišení. Na druhou stranu fakt, že let zejména pomalejších neutronů do detektoru trvá významně déle, zvyšuje překryv po sobě jdoucích pulzů, čímž roste minimální detekovatelná energie neutronů [58, 54].

Použití metody ToF na pracovištích ÚJF

V sekci 2.2.1 je stručně nastíněn princip činnosti cyklotronu. Je zřejmé, že tento typ urychlovače pracuje vždy v pulzním režimu, kdy poskytuje svazky nabitých částic v pravidelných intervalech daných cyklotronovou frekvencí. Při realizaci ToF spektrometrie terčových stanic řízených urychlovačem U-120M je do osy svazku ve vzdálenosti obvykle 3 až 5 m od terče umístěna scintilační sonda NE-213, jejíž signál je koaxiálními kabely veden mimo cyklotronovou halu do laboratoře vybavené digitizérem a počítačem. Z velínu je do téže laboratoře přiváděn sinusový signál cyklotronové frekvence, jejíž synchronizace se signálem z detektoru je nezbytná pro určení doby letu produkovaných částic. Cyklotron bývá typicky provozován s frekvencí 20 až 25 MHz, čemuž odpovídá perioda v rozmezí 40 až 50 ns. Doba trvání interakce svazku nabitých částic s terčem bývá v řádu nižších jednotek nanosekund. Většina detekovaného gama záření má původ v degradaci protonového svazku v uhlíkovém zhášeči. Jedná se zejména o fotony s energií 4,43 MeV pocházející z rozpadu prvního

excitovaného stavu jader ¹²C [54]. Podrobnosti k používání ToF na pracovištích ÚJF lze nalézt v akademických pracích [59, 60]. Energetické spektrum neutronového pole lithiové terčové stanice určené kolegy z OJR pomocí metody ToF při experimentu ze dne 7. 10. 2020 je k nahlédnutí na Obr. 7.1. Tomuto spektru neutronů byly vystaveny vzorky ozařované v rámci experimentální části této práce, viz. kapitola 4. Na Obr. 7.2 je fotografie detektoru NE-213 umístěného v ose svazku neutronů před zahájením ToF spektrometrie.



Obr. 7.1: Energetické spektrum neutronového pole lithiové terčové stanice určené pomocí metody ToF.

7.2 Určení spektra neutronů pomocí výpočetních kódů

Při spektrometrii neutronových zdrojů je v ÚJF používán stochastický výpočetní kód MCNPX. Vizualizace používaného modelu lithiové terčové stanice je uvedena na Obr. 7.3. Model obsahuje lithiový terč tvaru válce (průměr 30 mm, tloušťka 2 mm), válcový uhlíkový zhášeč svazku nabitých částic (průměr 20 mm, tloušťka 10 mm), 6 mm tlustou vrstvu ethanolu zajišťujícího chlazení, hliníkový držák vzorků a ocelové těleso stanice. Svazek protonů poskytovaných urychlovačem je popsán gaussovským píkem s pološířkou přibližně 200 až 300 keV [53]. Účinné průřezy reakcí rychlých protonů s terčovými materiály (⁷Li, ¹²C) jsou brány z knihoven LA-150h [61] a JENDL 4.0/HE [11]. Jaderná data pro ostatní relevantní reakce pak z knihovny FENDL 3.0 [62]. Produkované neutrony jsou rozděleny do grup po 0,25 MeV. Energetické spektrum neutronového pole lithiové terčové stanice určené kolegy z OJR pomocí výpočetního kódu MCNPX pro týž experiment jako v předchozím odstavci je k nahlédnutí na Obr. 7.4.



Obr. 7.2: ToF spektrometrie v ÚJF. Foto autor práce.



Obr. 7.3: Vizualizace modelu Li terčové stanice v kódu MCNPX [47].



Obr. 7.4: Energetické spektrum neutronového pole lithiové terčové stanice určené pomocí výpočetního kódu MCNPX.

7.3 Ověření parametrů spektra analýzou Li terče

Jak již bylo zmíněno v sekci 2.5 zaměřené na popis produkce neutronů na lithiovém terči, k výraznému píku v kvazimonoenergetickém neutronovém spektru přispívají pouze reakce ⁷Li(p, n)⁷Be vedoucí na vznik ⁷Be v základním a prvním excitovaném stavu (souhrnně označeno ^{7g+m1}Be). Žádná jiná reakce k výraznému píku významně nepřispívá. Je-li ozářený terč posléze podroben gama spektrometrické analýze, lze určit výtěžek jader ^{7g+m1}Be, který tím pádem musí odpovídat počtu neutronů příslušných monoenergetickému píku emitovaných do celého prostoru. V terči samozřejmě také probíhají reakce vedoucí na vznik vyšších excitovaných stavů ⁷Be, ovšem deexcitace těchto jader probíhá vždy emisí těžké částice (p, ³He, α), tudíž je lze při gama spektrometrické analýze odlišit. Neutronové pole lithiové terčové stanice je významně anizotropní, dopředný směr je silně preferován. Počet neutronů odpovídajících výraznému píku určený gama spektrometrickou analýzou lithiového terče však odpovídá emisi do celého prostoru. Aby bylo možné tyto výsledky použít k popisu neutronového spektra v oblasti ozařovacích pozic, je nezbytné určit zastoupení dopředně emitovaných neutronů. Uvedená problematika je detailně popsána v článku Y. Uwamina [63], který prováděl experimenty na zařízení CYRIC (Japonsko) s velmi podobnou terčovou stanicí, proto lze některé jeho poznatky aplikovat i na experimenty v Řeži. Poměr dopředně emitovaných neutronů příslušných výraznému píku k celkové emisi do celého prostoru je podle zmíněného článku pro energie protonů $E_{\rm p}$ v rozmezí 20 až 40 MeV popsán hladkou funkcí [63]:

$$R = -5,155 \cdot 10^{-13} E_{\rm p}^4 + 4,409 \cdot 10^{-9} E_{\rm p}^3 + 2,483 \cdot 10^{-5} E_{\rm p}^2 + 6,521 \cdot 10^{-2} E_{\rm p} - 0,8636.$$
(7-3)

Oprávněnost použití této rovnice v řežských podmínkách byla několikrát ověřena, jak je uvedeno například v [54].

7.4 Výsledné spektrum neutronů emitovaných Li terčovou stanicí

K určení neutronového spektra lithiové terčové stanice se v ÚJF používá kombinace všech tří výše popsaných přístupů ke spektrometrii. Měření metodou ToF nelze principiálně provádět přímo v místě ozařovaných vzorků. Detektor je typicky umístěn ve vzdálenosti několika metrů od terče. Extrapolace neutronového spektra do ozařovacích pozic je však značně problematická. Lithiový terč nelze považovat za bodový zdroj, tudíž není možné extrapolaci provádět pouze škálováním faktorem $1/r^2$, kde r je vzdálenost detektoru od zdroje. Měření ToF však umožňuje určit hustotu toku neutronů příslušejících výraznému píku, které terčová stanice emituje na jednotku prostorového úhlu v dopředném směru. Tutéž veličinu lze zjisti i gama spektrometrickou analýzou lithiového terče. Porovnání obou hodnot téže veličiny získaných zcela odlišnými postupy umožňuje ověřit správnost získaných výsledků. Shoda mezi oběma přístupy je obvykle velmi dobrá, jedná se o rozdíly maximálně v řádu nižších jednotek procent. Pro určení spektra neutronů přímo v ozařovací pozici se používá výpočetní kód MCNPX. Díky znalosti hustotu toku neutronů příslušejících výraznému píku, které terčová stanice emituje na jednotku prostorového úhlu v dopředném směru, lze výsledky simulací normovat tak, aby odpovídaly realitě. Neutronové spektrum používané při vyhodnocení experimentu uskutečněného v rámci této práce bylo určeno výše popsaným způsobem kolegou M. Majerlem z OJR.

7.5 Ověření popisu neutronového pole pomocí aktivačních detektorů

Aktivační detektory lze k analýze neutronového pole využít několika způsoby. V rámci této práce i při předchozích experimentech posloužili k důležitému nezávislému ověření výše popsaných přístupů ke spektrometrii používaných na OJR.

Ověření prostorové závislosti spektra neutronů

V rámci výzkumného úkolu [35] byl proveden experiment na ověření prostorového rozložení neutronového pole lithiové terčové stanice. Za tímto účelem byly ozářeny tři identické sady aktivačních detektorů ve třech různých vzdálenostech od lithiového terče. Každá sada obsahovala dvě zlaté fólie tvaru čtverce s délkou strany 12 mm, resp. 25 mm a dvě hliníkové fólie tvaru čtverce s délkou strany 18 mm, resp. 25 mm. Tlouštky fólií z téhož materiálu byly vždy stejné. Pro jednotlivé vzorky se lišil i čas ozařování $t_{\rm irr}$, proto není vhodné srovnávat výtěžky reakcí u jednotlivých vzorků. Je účelné zavést veličinu nazvanou plošná hustota reakční rychlosti $\rho_{\rm RR}$, která představuje počet sledovaných reakcí v daném aktivačním detektoru na jednotku plochy za jednotku času:

$$\rho_{\rm RR} = \frac{N_{\rm výtěžek}}{S t_{\rm irr}},\tag{7-4}$$

kde *S* je plocha aktivačního detektoru. Plošná hustota reakční rychlosti je přímo úměrná hustotě toku neutronů. Navíc k jejímu určení není třeba znát žádné údaje o neutronovém poli, lze ji vypočítat čistě na základě gama spektrometrické analýzy zmíněných aktivačních detektorů. Zajímavé je zejména srovnání relativního poklesu této veličiny s relativním poklesem hustoty toku neutronů určené pomocí kódu MC-NPX. Zmíněné srovnání je uvedeno v Tab. 5. Obě veličiny jsou normovány vůči svým hodnotám v ozařovací pozici 86 mm. Plošné hustoty reakční rychlosti byly určeny pro dvě reakce na zlatě a dvě reakce na hliníku. Po převodu na bezrozměrný tvar byl vypočítán průměr a směrodatná odchylka takto získaných hodnot a prezentovány jsou pouze tyto výsledky. V rámci nejistot se podařilo prokázat výbornou shodu mezi oběma přístupy, což potvrzuje správnost výpočetního modelu a oprávněnost použití kódu MCNPX k popisu neutronového spektra lithiové terčové stanice.

Tab.	5:	Srovnání	relativni	í hustoty	toku	neutronů	určené	pomocí	kódu	MCNPX
a rela	ativ	ní plošné	hustoty	reakční :	rychlos	sti v různý	ých vzda	álenostec	h od	lithiového
terče										

Ozařovací pozice (mm)	Relativní hustota toku neutronů podle MCNPX (%)	Relativní plošná hustota reakční rychlosti (%)
86	100,00	100,0
106	67,91(5)	66,8(12)
127	48,89(4)	47,4(24)

Ověření správnosti neutronového spektra pomocí známé reakce

Při měření účinných průřezů pomocí aktivačních detektorů je mezi ozařované materiály vždy zařazen i prvek s velmi dobře proměřenými účinnými průřezy pro vybranou reakci, například zlato. Jestliže je experimentálně určený účinný průřez vybrané dobře proměřené reakce v dobré shodě s údaji dostupnými v knihovnách jaderných dat, je pravděpodobné, že postup vyhodnocování experimentu je v pořádku. Tím je částečně ověřena i správnost určení neutronového spektra.

8 Výpočet účinných průřezů

Při měření účinných průřezů pomocí aktivačních detektorů je nezbytné znát experimentální data ze tří oblastí. Jedná se o znalost materiálových a fyzikálních parametrů ozařovaného aktivačního detektoru, o výtěžek sledované reakce a o detailní informace o neutronovém spektru použitého zdroje. Před samotným výpočtem účinných průřezů je však nezbytné zohlednit ještě jeden významný jev. Tím je vliv neutronů příslušných spojitému pozadí na výtěžek reakce. Zároveň je vhodné zavést pojem "excitační funkce", kterým je v celé práci označována spojitá závislost míry pravděpodobnosti uskutečnění sledované reakce reprezentované mikroskopickým účinným průřezem na energii nalétávající částice.

8.1 Vliv spojitého neutronového pozadí na výtěžek reakce

Pojem výtěžek reakce byl zaveden jako počet jader vyprodukovaných sledovanou reakcí za celou dobu ozařování. Zároveň je nutné připomenout, že neutronové pole lithiové terčové stanice není v oblasti desítek MeV čistě monoenergetické, nýbrž se jedná o tzv. kvazimonoenergetické spektrum s výrazným neutronovým píkem a nezanedbatelným spojitým pozadím, jehož vliv roste směrem k nižším energiím neutronů. Je zřejmé, že sledovaná reakce nemusí být iniciována pouze neutrony odpovídajícími výraznému píku s přesně definovanou energií, ale může být vyvolána libovolným neutronem, jehož energie je vyšší než prahová energie příslušné reakce. Pro ilustraci této problematiky je zařazen Obr. 8.1, který ukazuje překryv excitačních funkcí vybraných reakcí s kvazimonoenergetickým neutronovým spektrem. Spektrum i všechny excitační funkce jsou normovány tak, že maximum každé křivky odpovídá jedné. Je patrné, že reakce s nižšími prahovými energiemi jsou spojitým pozadím ovlivněny významně více. Vliv spojitého neutronového pozadí na výtěžek reakce lze zohlednit vhodnou korekcí $C_{\rm brg}$. V rámci této práce byl výpočet korekčního součinitele $C_{\rm brg}$ realizován jako konvoluce excitační funkce a neutronového spektra [50]:

$$C_{\rm bgr} = \frac{\int \sigma(E_{\rm n}) N(E_{\rm n}) \, \mathrm{d}E_{\rm n}}{\int \int \sigma(E_{\rm n}) N(E_{\rm n}) \, \mathrm{d}E_{\rm n}},\tag{8-1}$$

kde $N(E_n)$ je počet neutronů s energií E_n a $\sigma(E_n)$ účinný průřez příslušný této energii. Zřejmou nevýhodou tohoto přístupu je, že pro výpočet C_{brg} je vyžadována znalost excitační funkce sledované reakce. Avšak právě omezené znalosti zmíněné excitační funkce jsou hlavním důvodem, proč je tato reakce proměřována.



Obr. 8.1: Ukázka překryvu neutronového spektra lithiové terčové stanice s excitačními funkcemi vybraných reakcí.

8.2 Výpočetní kód TALYS

Deterministický výpočetní kód TALYS [64] představuje nástroj, který je schopen simulovat různé jaderné reakce v širokém rozsahu energií interagujících částic 1 keV až 200 MeV díky možnostem kombinovat různé jaderné modely. Byl vytvořen v NRG Petten (Nizozemsko) a CEA Bruyéres-le-Châtel (Francie) v roce 1998. Kód TALYS po precizním odladění parametrů modelů na základě dostupných experimentálních hodnot umožňuje vytvořit jaderná data pro všechny otevřené kanály reakce v uživatelem zvoleném rozsahu energií. Při predikci účinných průřezů jaderných reakcí TALYS využívá rozličné statistické modely, jejichž konkrétní podobu lze do značné míry ovlivnit volbou celé řady parametrů. Navzdory velké variabilitě a širokému spektru možných nastavení se jedná o uživatelsky přívětivý kód. Všechny povinné parametry modelů mají nastavené výchozí hodnoty, tudíž se uživatel může zaměřit pouze na vybranou sadu parametrů klíčových pro oblast jeho zájmu. V případě predikce účinných průřezů jaderných reakcí hraje klíčovou roli především volba modelu hustoty energetických hladin jádra (z anglického *level density*) [65]. Zejména pro vyšší excitační energie bývá totiž významný nedostatek experimentálních údajů. Kód TALYS nabízí celkem šest modelů pro popis hustoty energetických hladin jader.

Volbu modelu pro sledovaný nuklid lze učinit pomocí karty ldmodel:

ldmodel 1	Model s konstantní teplotou + model Fermiho plynu
ldmodel 2	Model Fermiho plynu se zpětným posunem
ldmodel 3	Zobecněný supratekutý model
ldmodel 4	Mikroskopické hustoty hladin podle Gorielyho tabulek
ldmodel 5	Mikroskopické hustoty hladin podle Hilaireho tabulek
ldmodel 6	Mikroskopické hustoty hladin podle Hilaireho tabulek s přihlédnutím k výpočtům Hartree-Fock-Bogolyubova

Pro účely této práce byl kód TALYS využit k predikci excitačních funkcí všech sledovaných reakcí, jejichž znalost je nezbytná pro výpočet korekce $C_{\rm bgr}$ na vliv spojitého neutronového pozadí na výtěžek každé reakce. Takto určené excitační funkce byly též použity k porovnání s hodnotami účinných průřezů určených v rámci experimentální části této práce, viz. příloha A. Pro účely srovnání byly použity výsledky získané na základě prvního uvedeného modelu hustoty energetických hladin jádra (Model s konstantní teplotou + model Fermiho plynu), který je v kódu TALYS nastaven jako výchozí. Pro všechny výpočty byla používána nejnovější dostupná verze tohoto kódu, tj. TALYS 1.95.

8.3 Korekce na vliv spojitého neutronového pozadí na výtěžek reakce

Kvazimonoenergetické neutronové spektrum lithiové terčové stanice bylo určeno postupem popsaným v sekci 7.4. Neutrony jsou v tomto spektru rozděleny do energetických grup po 0,25 MeV. Pro každou tuto grupu byly pomocí kódu TALYS určeny účinné průřezy všech sledovaných reakcí. Díky tomu je možné v rovnici (8-1) pro výpočet $C_{\rm bgr}$ nahradit integrály prostým součtem diskrétních hodnot odpovídajících jednotlivým grupám:

$$C_{\rm bgr} = \frac{\int\limits_{\rm pik} \sigma(E_{\rm n}) N(E_{\rm n}) \, \mathrm{d}E_{\rm n}}{\int\limits_{\rm spektrum} \sigma(E_{\rm n}) N(E_{\rm n}) \, \mathrm{d}E_{\rm n}} \longrightarrow C_{\rm bgr} = \frac{\sum\limits_{i \in \rm pik} \sigma(i) N(i)}{\sum\limits_{i \in \rm spektrum} \sigma(i) N(i)}.$$
 (8-2)

Odhad nejistoty součinitele C_{bgr} je velmi komplikovanou záležitostí hned z několika důvodů. Za prvé se jedná o používání jaderných dat predikovaných kódem TALYS, pro která nejenže nejsou definovány nejistoty, ale jejichž průběh je v mnohých případech významně ovlivně volbou parametrů výpočetního modelu. Druhým důvodem je neznalost přesného tvaru energetického spektra neutronů. K predikci každé excitační
funkce bylo použito šest různých modelů hustoty energetických hladin jádra změnami karty *ldmodel*. U mnoha reakcí byla mezi jednotlivými modely dobrá shoda, v některých případech se v určitém rozsahu energií však projevily i významné odchylky v řádu nižších desítek procent. Markantní rozdíly ve tvaru energetického spektra neutronů pak způsobí volba používané knihovny jaderných dat a to zejména v oblasti nižších energií. To dokládá Obr. 8.2, kde je uvedeno srovnání tvaru neutronového spektra určeného různými přístupy. S cílem zvolit optimální hodnotu součinitele C_{bgr} pro výpočet účinného průřezu a provést alespoň velmi přibližný odhad nejistoty vnášené touto korekcí do výpočtu byl zvolen následující postup. Pro každou z možných kombinací šesti excitačních funkcí a obou tvarů energetického spektra neutronů podle MCNPX byla vypočítána jedna hodnota C_{bgr} , celkem se tedy pro každou reakci jedná o 12 hodnot. Z nich byla následně vypočítána střední hodnota a směrodatná odchylka, které byly zvoleny jako optimální hodnota C_{bgr} a její nejistota při zohlednění všech použitých přístupů ke spektrometrii i predikci jaderných dat. Pro ilustraci závislosti C_{bgr} na přístupu k spektrometrii neutronového pole i způsobu predikce jaderných dat prostřednictvím kódu TALYS je zařazen Obr. 8.3, kde je pro každou reakci vyneseno všech 12 vypočítaných hodnot tohoto součinitele.



Obr. 8.2: Srovnání tvaru neutronového spektra lithiové terčové stanice určené výpočtem v kódu MCNPX na základě jaderných dat z různých zhodnocených knihoven a metodou ToF.



Obr. 8.3: Srovnání hodnot součinitele C_{bgr} pro různé přístupy k spektrometrii neutronového pole i způsobu predikce jaderných dat pomocí kódu TALYS.

8.4 Rovnice pro výpočet účinných průřezů

Rovnici pro výpočet účinného průřezu lze odvodit na základě následující úvahy. Nechť svazek monoenergetických neutronů dopadá na tenkou fólii tvořenou jediným nuklidem, jejíž větší ploch
a ${\cal S}$ je kolmá na osu svazku. Nechť je svazkem rovnoměrně ozařována celá plocha fólie. Za celou dobu ozařování na fólii dopadne $N_{\rm n}$ neutronů. Většina z nich projde fólií bez interakce, ovšem některé vyvolají reakci, která je předmětem studia. Počet produktů sledované reakce za celou dobu ozařování je nazýván výtěžkem reakce $N_{v \neq t e zek}$. Pravděpodobnost, že neutron dopadající na fólii vyvolá sledovanou reakci, je pak zřejmě dána podílem $N_{\rm výtěžek}$ k $N_{\rm n}.$ Účinný průřez σ lze chápat jako jistou efektivní plochu jednoho terčového jádra z pohledu dopadající částice. V situaci, kdy je ozařovaná fólie tenkým terčem, tedy významně neovlivní hustotu toku dopadajících neutronů, dochází k velmi malému počtu interakcí. Díky tomu prakticky nedochází k překryvu jednotlivých efektivních plošek interagujících jader. Pravděpodobnost, že neutron dopadající na fólii vyvolá sledovanou reakci lze vyjádřit jako podíl sumy efektivních plošek všech jader terče k celkové ploše terče. To už je druhý způsob vyjádření téže pravděpodobnosti. Porovnáním obou vyjádření lze získat vztah:

$$\frac{N_{\rm výtěžek}}{N_{\rm n}} = \frac{\sigma N_{\rm j}}{S},\tag{8-3}$$

kde N_j odpovídá počtu jader terče. Pro lepší představu o popisované situaci je zařazen Obr. 8.4. Zelený čtverec představuje tenkou ozařovanou fólii, červená kolečka pak efektivní plošky interagujících jader odpovídající účinným průřezům. Zmiňovanou pravděpodobnost lze za předpokladu, že se červené plošky nepřekrývají, vyjádřit jako podíl součtu červených plošek k ploše zeleného čtverce.



Obr. 8.4: Grafické znázornění problematiky účinných průřezů na tenkém terči. Zelený čtverec představuje tenkou ozařovanou fólii, červená kolečka pak efektivní plošky interagujících jader.

V případě neutronového svazku popsaného kvazimonoenergetickým spektrem je nezbytné odlišit vliv neutronů příslušných spojitému pozadí na výtěžek reakce pomocí korekce C_{bgr} . Na základě záznamu proudu svazku protonů interagujících s lithiovým terčem, vypočítaného kvazimonoenergetického neutronového spektra pro danou ozařovací pozici a plochy ozařované fólie lze určit, kolik neutronů příslušných výraznému píku ve spektru dopadlo za celou dobu ozařování na zkoumanou fólii (odpovídá již dříve zavedenému N_n). Počet jader terče N_j lze vyjádřit pomocí hmotnosti terče m, molární hmotnosti M a Avogadrovy konstanty N_A . Aplikací těchto úvah na vztah (8-3) a následnými algebraickými úpravami lze odvodit výslednou podobu rovnice pro výpočet účinného průřezu:

$$\sigma = \frac{\overline{N_{\text{výtěžek}}} C_{\text{bgr}} S M}{N_{\text{n}} N_{\text{A}} m},$$
(8-4)

kde $\overline{N_{\text{výtěžek}}}$ je střední hodnota výtěžku reakce, C_{bgr} korekce na vliv neutronů ze spojitého pozadí, S je plocha aktivačního detektoru kolmá na osu svazku při ozařování, M molární hmotnost, N_{n} počet neutronů příslušných výraznému píku v kvazimonoenergetickém neutronovém spektru za celou dobu ozařování, N_{A} Avogadrova konstanta a m hmotnost aktivačního detektoru.

9 Zhodnocení nejistot a výsledky měření

Při popisu jednotlivých fází experimentu v předchozích kapitolách byly vždy zmíněny i dílčí nejistoty zkoumaných veličin. Před uvedením výsledných hodnot účinných průřezů je vhodné dosavadní poznatky o nejistotách shrnout a zhodnotit. To umožní přehledně identifikovat, které nejistoty mají majoritní vliv a které lze naopak prakticky zcela zanedbat.

9.1 Nejistota účinného průřezu

Z rovnice (8-4) pro výpočet účinného průřezu je zřejmé, že na výslednou nejistotu této veličiny mají vliv dílčí nejistoty výtěžku, korekce na vliv neutronů ze spojitého pozadí, počtu neutronů příslušejících výraznému píku v neutronovém spektru a materiálových parametrů aktivačního detektoru.

Nejistota výtěžku reakce

Přehled veličin a součinitelů používaných při výpočtu výtěžku reakce, odhady jejich nejistot a rozsahy hodnot, ve kterých se tyto veličiny pohybují shrnuje Tab. 6. Podrobnosti ohledně výpočtu a odhadu nejistot jsou uvedeny v kapitole 3. Majoritní vliv na nejistotu výtěžku má kalibrace účinnosti detektoru a s ní spojené korekční součinitele (C_{COI} , C_{plocha}). U radionuklidů s velmi dlouhými poločasy rozpadu či s nízkou intenzitou I_{γ} sledované gama linky může být významná i nejistota plochy píku $S_{\text{pík}}$. V Tab. 6 nejsou uváděny žádné z měřených časů (t_0, t_{real} atd.). To proto, že jejich nejistota je zanedbatelně malá. Výsledná hodnota nejistoty výtěžku reakce se typicky pohybuje v rozmezí 5 až 10%. Pro každý zkoumaný vzorek jsou provedeny jednotky až desítky měření energetického spektra gama záření, přičemž z každého takového měření je určena jedna hodnota výtěžku s příslušnou nejistotou. Výpočet střední hodnoty výtěžku a způsob zacházení s dílčími nejistotami je shrnut v sekci 3.4. Díky několikanásobnému opakování měření téhož výtěžku lze výslednou nejistotu střední hodnoty výtěžku významně snížit oproti typickému rozmezí pro jedno měření.

Nejistota korekce na vliv neutronů ze spojitého pozadí

Specifický přístup k odhadu nejistoty korekčního součinitele C_{bgr} je detailně popsán v sekci 8.3. Do jisté míry zohledňuje nejistotu určení tvaru neutronového spektra i neznalost přesného průběhu excitačních funkcí sledovaných reakcí. Nejistota tohoto součinitele je silně závislá zejména na prahové energii konkrétní reakce. Obvykle platí, že s rostoucí prahovou energií velikost nejistoty klesá. Výsledná hodnota nejistoty součinitele C_{bgr} se pohybuje v rozmezí 1 až 15%.

Veličina či součinitel	Nejistota	Rozsah hodnot
$S_{ m pík}$	desetiny až jednotky %	alespo ň 10^3
$\dot{C_{ m abs}}$	deset iny $\%$	1,00 - 1,35
$C_{ m stab}$	deset iny $\%$	1,000 - 1,008
I_{γ}	desetiny % až 1 $\%$	0,008 - 1,000
$\epsilon_{ m p}$	2%	$10^{-4} - 10^{-1}$
$C_{ m COI}$	2%	$0,\!61 - 1,\!00$
$C_{ m plocha}$	5%	0,922 - 1,000
λ	setiny až desetiny $\%$	$10^{-10} - 10^{-3}$

Tab. 6: Přehled veličin a součinitelů používaných při výpočtu výtěžku reakce $N_{vytežek}$.

Nejistota počtu neutronů příslušejících výraznému píku

Kromě tvaru neutronového spektra je problematické přesně určit i absolutní hodnotu hustoty toku neutronů v ozařovací pozici. Zdrojem nejistot jsou zde vybrané parametry lithiové terčové stanice popsané v sekci 2.5, činnosti související s umístěním vzorků do ozařovací pozice a samotný průběh ozařování (viz. sekce 4.3). Významný vliv má samozřejmě také spektrometrie neutronového pole lithiové terčové stanice popsaná v kapitole 7. Pro připomenutí se jedná zejména o následující nejistoty [53]:

- nejistota tloušťky lithiového terče (5%),
- nejistota měření náboje na lithiovém terči (5 %),
- nejistota určení energie protonového svazku (1,5%),
- nejistota umístění vzorku při ozařování (2%).

Co se týče spektrometrie, významnou nejistotu vnáší rozdíly ve tvaru výrazného píku při použití různých knihoven jaderných dat. Prakticky zanedbatelný vliv pak mají statistické nejistoty spojené s využitím výpočetního kódu MCNPX při spektrometrii. Výsledná hodnota nejistoty počtu neutronů příslušejících výraznému píku $N_{\rm n}$ je typicky v rozmezí 7 až 8%.

Nejistota materiálových parametrů aktivačního detektoru

Materiálové parametry aktivačního detektoru, kam lze zařadit jeho hmotnost, čistotu, fyzické rozměry a molární hmotnost, jsou také zatíženy nejistotami. Ovšem jak je zmíněno již v kapitole 3, nejistoty uváděných veličin jsou typicky řádově menší v porovnání s nejistotami doprovázejícími určení výtěžku či neutronového spektra. Proto lze jejich vliv prakticky zanedbat.

Shrnutí

Výsledné hodnoty nejistot účinných průřezů se typicky pohybují v okolí 10 %, spíše výjimečně se mohou přiblížit hodnotě 20 %, která však nebyla u žádné ze zkoumaných reakcí významně překročena. Majoritní vliv mají systematické nejistoty provázející různé fáze experimentu. Statistické nejistoty se v součtu pohybují v řádu desetin, nejvýše nižších jednotek procent. Shrnutí nejistot dílčích veličin je uvedeno v Tab. 7.

Veličina či součinitel	Označení	Nejistota	Rozsah hodnot
Výtěžek reakce	$N_{ m v ymes t ext{e} ext{x}}$	5 až 10%	10^8 až 10^{10}
Střední hodnota výtěžku reakce	$\overline{N_{\mathrm{v\acute{y}t\check{e}\check{z}ek}}}$	5 až 7 $\%$	10^8 až 10^{10}
Korekce na vliv spojitého neutronového pozadí	$C_{ m bgr}$	1až $15%$	0,10 až $0,99$
Počet neutronů příslušejících výraznému píku	$N_{ m n}$	7 až 8%	10^{12} až 10^{13}
Účinný průřez	σ	8 až 20%	10 až 1500 milibarn

Tab. 7: Přehled veličin používaných při výpočtu účinného průřezu reakce.

9.2 Nejistota určení energie

Všechny doposud diskutované nejistoty byly spojeny s určením hodnoty účinného průřezu pro konkrétní reakce. Pro správnou interpretaci získaného účinného průřezu je však nezbytná přesná znalost energie neutronů, které tuto reakci vyvolaly. Výrazný pík v kvazimonoenergetickém neutronovém spektru lithiové terčové stanice má nezanedbatelnou pološířku. Odhad střední hodnoty neutronů v tomto píku i její nejistoty vychází z proložení zmíněného píku normálním rozdělením:

$$f(x) = \frac{1}{\overline{\sigma}\sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{(x-\mu)^2}{2\,\overline{\sigma}^2}\right],\tag{9-1}$$

kde $\overline{\sigma}$ reprezentuje směrodatnou odchylku a μ střední hodnotu. Ve výsledku je tedy uvažováno, že naměřené účinné průřezy odpovídají energii interagujících neutronů μ s nejistotou $\overline{\sigma}$. Nejistota určení energie je typicky menší než 5%. S klesající energií výrazného píku v kvazimonoenergetickém neutronovém spektru lithiové terčové stanice roste pološířka tohoto píku a tím i nejistota určení energie, viz. Obr. 9.1.



Obr. 9.1: Srovnání tvaru kvazimonoenergetických neutronových spekter lithiové terčové stanice pro tři různé energie výrazného píku dle MCNPX.

9.3 Výsledné hodnoty účinných průřezů

Následující tabulky (Tab. 8 až Tab. 12) představují shrnutí výsledných hodnot účinných průřezů určených při všech experimentech prováděných v rámci bakalářské práce [42], výzkumného úkolu [35] i této práce. U každé reakce jsou také uvedena jaderná data používaná při výpočtech. Označení E_{γ} reprezentuje energii zkoumaného gama záření, které je emitováno při přeměně daného radionuklidu, označení I_{γ} pak příslušnou intenzitu. Zmíněné údaje byly převzaty z [43]. Hodnoty prahových energií $E_{\rm thr}$ byly určeny pomocí aplikace [37]. Reakce s kobaltem, fluorem a sodíkem byly zkoumány až při třetím experimentu, kdy byla energie neutronů $E_{\rm n}$ rovna 17,5(10) MeV, proto nejsou údaje pro zbylé dvě hodnoty $E_{\rm n}$ k dispozici. Při některých experimentech také nebylo možné sledovat vybrané reakce, jejichž prahová energie byla vyšší než energie produkovaných neutronů $(E_{thr}>E_n)$. Způsob analýzy reakce 19 F(n, 2n) 18 F je odlišný od ostatních reakcí, viz. sekce 6.2, proto i výsledky jsou uvedeny v samostatné tabulce (Tab. 12). Zápis hodnoty s nejistotou 17,5(10) MeV odpovídá v jiném formalismu $(17,5\pm1,0)$ MeV. Při zaokrouhlování výsledků je brána v potaz první platná číslice nejistoty v případě, že její hodnota je větší či rovna třem. Jinak jsou zohledněny první dvě platné číslice nejistoty. Zaokrouhlování převzatých jaderných dat je zachováno jako v původním zdroji.

Tab. 8: Přehled experimentálně určených účinných průřezů pro sledované reakce na bismutu a hliníku. Uváděná jaderná data používaná při výpočtech byla převzata z [37, 43].

Terčový nuklid	²⁰⁹ Bi		²⁷ Al	
Reakce	(n, 3n)	(n, 4n)	(n, p)	(n, α)
Produkt	²⁰⁷ Bi	²⁰⁶ Bi	$^{27}\mathrm{Mg}$	²⁴ Na
Poločas rozpadu	31,55(4) r	6,243(3) d	$9,458(12) {\rm m}$	14,997(12) h
$E_{\gamma} \; (\text{keV})$	569,698(2) 1063,656(3)	516,18(4) 803,10(5) 881,01(5)	$843,76(10) \\1014,52(10)$	1368,626(5)
$I_\gamma~(\%)$	$97,75(3) \\ 74,5(3)$	$ \begin{array}{r} 40,8(6) \\ 99,0(14) \\ 66,2(10) \end{array} $	$71,80(2) \\ 28,20(2)$	99,9936(15)
$E_{\rm thr} \ ({\rm MeV})$	$E_{\rm thr} ({\rm MeV})$ 14,42 2		1,90	3,25
$E_{\rm n} ({\rm MeV})$	Účinný průřez (milibarn)			
17,5(10)	480(40)	$E_{\rm thr} > E_{\rm n}$	26(3)	66(6)
19,8(9)	1490(120)	$E_{\rm thr} > E_{\rm n}$	19(3)	39,1(22)

Tab. 9: Přehled experimentálně určených účinných průřezů pro sledované reakce na yttriu a sodíku. Uváděná jaderná data používaná při výpočtech byla převzata z [37, 43].

430(30)

12,9(21)

12,7(18)

1380(150)

27,5(7)

Terčový nuklid	⁸⁹ Y			²³ Na
Reakce	(n, 2n)	(n, 3n)	(n, 3n)	(n, 2n)
Produkt	⁸⁸ Y	$^{87\mathrm{g}}\mathrm{Y}$	$^{87\mathrm{m}}\mathrm{Y}$	²² Na
Poločas rozpadu	$106,\!626(21)~{\rm d}$	79,8(3) h	13,37(3) h	2,6018(22)r
$E_{\gamma} \; (\text{keV})$	898,042(3) 1836,063(12)	484,805(5)	380,79(7)	1274,537(7)
I_{γ} (%)	$93,7(3) \\99,2(3)$	89,8(9)	78,05(8)	99,940 14
$E_{\rm thr}$ (MeV)	11,61	$21,\!07$	$21,\!46$	12,96
	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·			
$E_{\rm n}~({\rm MeV})$	Účinný průřez (milibarn)			
17,5(10)	1080(80)	$E_{\rm thr} > E_{\rm n}$	$E_{\rm thr} > E_{\rm n}$	98(8)
19,8(9)	1130(100)	$E_{\rm thr} > E_{\rm n}$	$E_{\rm thr} > E_{\rm n}$	
27,5(7)	580(90)	113(8)	321(23)	

Terčový nuklid	¹⁹⁷ Au			
Reakce	(n, 2n)	(n, 2n)	(n, 3n)	(n, 4n)
Produkt	$^{196g+m1}Au$	$^{196\mathrm{m}2}\mathrm{Au}$	$^{195}\mathrm{Au}$	$^{194}\mathrm{Au}$
Poločas rozpadu	6,1669(6) d	9,6(1) h	186,01(6) d	38,02(10) h
$E_{\gamma} \; (\mathrm{keV})$	355,73(5)	$147,81(2) \\188,27(3)$	129,735(10)	328,464(6)
I_{γ} (%)	87(3)	$ \begin{array}{r} 43(1) \\ 34,0(5) \end{array} $	0,84(3)	60,4(8)
$E_{\rm thr} ({\rm MeV})$	8,11	8,71	14,79	23,21
$E_{\rm n} ({\rm MeV})$	Účinný průřez (milibarn)			
17,5(10)	1550(140)	217(16)	320(30)	$E_{\rm thr} > E_{\rm n}$
19,8(9)	770(120)	160(17)	1560(140)	$E_{\rm thr} > E_{\rm n}$
27,5(7)	340(50)	67(12)	1530(150)	280(20)

Tab. 10: Přehled experimentálně určených účinných průřezů pro sledované reakce na zlatě. Uváděná jaderná data používaná při výpočtech byla převzata z [37, 43].

Tab. 11: Přehled experimentálně určených účinných průřezů pro sledované reakce na kobaltu. Uváděná jaderná data používaná při výpočtech byla převzata z [37, 43].

Terčový nuklid	⁵⁹ Co			
Reakce	(n, 2n)	(n, 2n)	(n, p)	(n, α)
Produkt	^{58g} Co	58m1 Co	59 Fe	^{56}Mn
Poločas rozpadu	70,86(6) d	9,10(9) h	44,490(9) d	2,5789(1) h
$E_{\gamma} \; (\text{keV})$	810,7593(20)		$1099,245(3) \\1291,590(6)$	846,7638(19)
I_{γ} (%)	99,450(10)		$56,5(9) \\ 43,2(9)$	98,85(3)
$E_{\rm thr} ({\rm MeV})$	10,63	10,66	0,80	0,00
$E_{\rm n} ({\rm MeV})$	Účinný průřez (milibarn)			
17,5(10)	316(23)	450(30)	29,4(25)	20,6(18)

Tab. 12: Přehled experimentálně určených účinných průřezů pro sledované reakce na fluoru. Uváděná jaderná data používaná při výpočtech byla převzata z [37, 43].

Terčový nuklid	Reakce	Produkt	Poločas rozpadu	$E_{\rm thr}$ (keV)	$E_{\rm n}$ (MeV)	Účinný průřez (milibarn)
$^{19}\mathrm{F}$	(n, 2n)	$^{18}\mathrm{F}$	109,77(5) m	10,99	17,5(10)	107(8)

9.4 Diskuze

Podobně jako v bakalářské práci [42] a výzkumném úkolu [35] byl proveden v pořadí již třetí experiment zaměřený na určování účinných průřezů vybraných reakcí rychlých neutronů s několika materiály pomocí aktivační metody. Díky tomu se podařilo získat bohaté zkušenosti s přípravou, realizací a analýzou těchto experimentů. V případě bakalářské práce se jednalo zejména o seznámení se s danou problematikou a získání prvních předběžných výsledků. V rámci výzkumného úkolu byla významně zlepšena metodika vyhodnocování získaných dat a detailně prozkoumány zdroje nejistot a propagace jejich vlivu při výpočtech. Zároveň se podařilo zlepšit přesnost popisu neutronového pole lithiové terčové stanice, která sloužila při všech experimentech jako zdroj rychlých neutronů. Bylo provedeno i experimentální ověření oprávněnosti použití výpočetního kódu MCNPX při modelování zmíněného pole neutronů. Díky propracované metodice vyhodnocování získaných dat mohl být experiment uskutečněný v rámci diplomové práce rozšířen o několik nových vzorků ozařovaných materiálů. Došlo také k optimalizaci zhodnocení nejistot měření a zpřesnění některých dílčích postupů. Nad rámec dosavadních experimentů byla zkoumána některá netradiční využití gama spektrometrie ke studiu reakcí, které by nebylo standardními postupy možné analyzovat.

Měření mohou být potenciálně ovlivněna různými systematickými efekty, které by případně mohly vést k ovlivnění získaných výsledků. Za účelem analýzy případné existence těchto jevů v různých fázích experimentu byla provedena celá řada ověření používaných postupů. Už v rámci výzkumného úkolu se podařilo analýzou několika identických sad aktivačních detektorů ozářených v různých vzdálenostech od zdroje neutronů prokázat, že získané účinné průřezy nejsou měřitelně ovlivněny umístěním vzorku při ozařování, což potvrzuje správnost popisu neutronového spektra použitého zdroje, viz. sekce 7.5. Také se podařilo vyloučit případné ovlivnění výsledků volbou velikosti aktivačního detektoru a to pro vzorky s rozměrem až 25×25 mm. Při analýze naměřených vzorků je používán stále jeden HPGe detektor, avšak vzorky jsou proměřovány v různých vzdálenostech od citlivého objemu. Podařilo se prokázat, že výtěžky sledované reakce získané analýzou téhož vzorku nejsou ovlivněny volbou vzdálenosti vzorku od detektoru. Kalibrace účinnosti detektoru byla navíc provedena jak experimentálně, tak pomocí modelu v kódu MCNPX a mezi oběma přístupy je dobrá shoda. Mnohé faktory, které by mohly potenciálně ovlivňovat získané výsledky byly tedy prověřeny a ve všech případech se prokázala oprávněnost používaných postupů.

Detailní rozbor nejistot, kterými jsou prováděná měření zatížena, je uveden v kapitole 9, avšak i zde je vhodné uvést krátké shrnutí této problematiky. Majoritní vliv na celkovou nejistotu účinného průřezu mají zejména systematické nejistoty. Jejich analýza je velmi obtížná a často se nepodaří podchytit všechny zdroje těchto nejistot. Jedná se především o nejistoty spjaté s popisem neutronového spektra. Ty jsou u některých reakcí až desetinásobné oproti nejistotám vyplývajícím z gama spektrometrické analýzy ozářených vzorků. U mnohých reakcí je přesto výsledná nejistota účinného průřezu pod hodnotou 10 %, což je velmi dobrý výsledek. Ovšem zejména u reakcí s nižšími prahovými energiemi bývají nejistoty zpravidla vyšší. V žádném ze zkoumaných případů však nejistota nepřekročila hranici 20 %. Neméně důležitá je nejistota určení energie, které naměřené hodnoty účinných průřezů odpovídají. Její nejistota je typicky v okolí 5 %.

Při ozařování mnohdy vzniká radionuklid jak v základním, tak izomerním stavu. Izomerní jádra se typicky přeměňují na jádra v základním stavu a sytí tak jejich počet. Aby mohly být rozlišeny účinné průřezy reakcí vedoucích na vznik základního, resp. izomerního stavu, je nutné mít možnost sledovat rozpad obou typů jader. Mnohdy je poločas rozpadu izomeru příliš krátký, než aby tato jádra mohla být analyzována po ukončení ozařování. V takovém případě nelze jednotlivé účinné průřezy rozlišit a je možné určit pouze jejich součet na základě studia rozpadu jader v základním stavu. Další nepříznivá situace nastává, když je možné sledovat rozpad jader v základním stavu, avšak při rozpadu izomeru nedochází k emisi gama záření s vhodnou energií a intenzitou, aby mohlo být detekováno. A právě tato situace nastává při analýze ⁵⁸Co, resp. reakcí ${}^{59}Co(n, 2n){}^{58g}Co$ a ${}^{59}Co(n, 2n){}^{58m}Co$. Běžným postupem v nastíněné situaci by bylo počkat, dokud se všechna izomerní jádra nerozpadnou na základní stav a následně určit účinný průřez reakce ⁵⁹Co(n, 2n)^{58g+m}Co, který odpovídá součtu účinných průřezů obou dříve uvedených reakcí. V rámci této práce byl však použit trochu netradiční přístup k určení výtěžku. Podařilo se detailně proměřit časovou závislost počtu jader ⁵⁸co po ukončení ozařování. Ta je významně ovlivněna i rozpadem ^{58m}Co. Po proložení takto získaných dat teoretickými rovnicemi kaskádního rozpadu se podařilo učit počty jader jak základního tak izomerního stavu. Díky tomu bylo možné určit i výtěžek reakce vedoucí na vznik ^{58m}Co, přestože přímé projevy rozpadu těchto jader nejsou s použitou gama spektrometrickou aparaturou detekovatelné. Podařilo se prokázat, že použitý způsob vyhodnocení poskytuje důvěryhodné výsledky u několika podobných reakcí, kde lze navíc získaná data ověřit i standardním způsobem. Lze tedy očekávat, že získané výsledky jsou spolehlivé. Více informací o této problematice se nachází v sekci 5.4.

Druhým netradičním využitím gama spektrometrie je analýza rozpadu čistého pozitronového zářiče ¹⁸F, který při své přeměně neemituje žádné gama záření. Při použitém vybavení je tedy jediným zdrojem informací o tomto radionuklidu anihilační pík v energetickém spektru gama záření. K tomuto píku však přispívají všechny radionuklidy podléhající beta plus rozpadu, které se ve vzorku nacházejí. V mnohých případech je nezanedbatelný i příspěvek přirozeného pozadí. Je tedy nezbytné určit, jaké beta plus zářiče mohou při ozařování ve vzorku vzniknout. Existuje-li ve vzorku pouze jediný radionuklid podléhající beta plus přeměně, lze po odečtení vlivu pozadí považovat anihilační pík čistě za nepřímý projev jeho rozpadu. Nacházíli se ve vzorku více beta plus zářičů najednou, lze anihilační pík tímto způsobem využít pouze v situaci, kdy je možné určit výtěžky všech zmíněních radionuklidů kromě jednoho na základě příslušných gama linek a následně odečíst jejich vliv na plochu anihilačního píku. Vzorek fluoridu sodného obsahoval po ozáření při experimentu v rámci této práce dva významné beta plus zářiče a to ¹⁸F a ²²Na. Radionuklid ¹⁸F je čistým pozitronovým zářičem, avšak přeměna ²²Na je doprovázena emisí gama fotonu a lze tak odečíst jeho vliv na anihilační pík. Díky velkému nepoměru v poločasech rozpadu těchto radionuklidů je navíc aktivita ¹⁸F v prvních hodinách po ukončení ozařování významně vyšší oproti ²²Na. Díky vhodně určené kalibraci účinnosti HPGe detektoru se podařilo určit výtěžek ¹⁸F, přestože se jedná o čistý pozitronový zářič. Analogicky byla určena kalibrace i pro další dva beta plus zářiče ⁵⁸Co a ²²Na, které zároveň mají výrazné gama linky a výtěžek tak mohl být určen jak z analýzy příslušného píku úplného pohlcení, tak z analýzy anihilačního píku. Podařilo se prokázat výbornou shodu v rámci nejistot mezi oběma přístupy k výpočtu výtěžku jak u ⁵⁸Co, tak u ²²Na. Díky tomu je alespoň částečně validována metodika určení výtěžku beta plus zářiče na základě analýzy anihilačního píku.

Aby mohla být plocha anihilačního píku využita pro určení výtěžku beta plus zářiče, bylo nezbytné určit vhodnou kalibraci účinnosti HPGe detektoru. K tomuto účelu byl využit model použitého detektoru v MCNPX, který byl již v rámci výzkumného úkolu validován pro určení kalibrace účinnosti pro gama zářiče. Díky tomu lze očekávat, že i kalibrace pro pozitronový zářič by mohla odpovídat realitě. Ani pro nejkratší vzdálenost vzorku od detektoru (3 cm) není v naměřeném spektru gama záření patrný pík s energií 1022 keV, který by odpovídal situaci, kdy pozitron anihiluje až v citlivém objemu detektoru a oba anihilační fotony jsou detekovány. Taktéž při výpočtu v MCNPX není v okolí 1022 keV patrný žádný pík. Zdá se tedy, že většina pozitronů anihiluje ve vzdálenosti kratší než 3 cm od vzorku. Pokud by docházelo k anihilaci většinou v rámci vzorku a jeho obalových vrstev, choval by se v podstatě jako malý plošný zdroj emitující gama záření s energií 511 keV. Pomocí MCNPX se podařilo prokázat, že vzorek s identickou geometrií definovaný jednou jako zdroj pozitronů, podruhé jako zdroj gama záření s energií 511 keV, má velmi podobnou křivku popisující závislost účinnosti detektoru, což je ukázáno v sekci 6.3. K anihilaci pozitronů tedy s největší pravděpodobností opravdu dochází zejména v samotném objemu vzorku a jeho těsném okolí.

V následujícím textu jsou pojmem "nová experimentální data" označovány účinné průřezy získané v rámci této práce. Pro každou ze sledovaných reakcí je v příloze A uvedeno srovnání nových experimentálních dat s excitačních funkcemi převzatými z knihoven zhodnocených jaderných dat, experimentálními údaji dostupnými v knihovně EXFOR a výstupy kódu TALYS. Zmíněné srovnání je velmi přínosné hned z několika důvodů. Ilustruje nedostatek dat u mnohých reakcí, navíc ukazuje časté rozpory mezi hodnotami uváděnými v různých knihovnách. Zajímavé je také srovnání s excitačními funkcemi vypočítanými pomocí kódu TALYS. Ukazuje se, že tento nástroj je ve většině případů velmi vhodný k predikci jaderných dat, protože jeho výsledky jsou ve výborné shodě s dostupnými experimentálními údaji. U některých studovaných reakcí, například ¹⁹F(n, 2n)¹⁸F, se však výstupy tohoto kódu po-

měrně významně odchylují³. Potvrzuje se tím, že se stále nejedná o plně univerzální model vhodný k predikci excitačních funkcí libovolných reakcí. Srovnání jaderných dat z různých zdrojů má klíčový význam zejména pro validaci nových experimentálních dat. Ukazuje se, že u reakcí, kde jsou dostupná jiná experimentální jaderná data, jsou výsledky získané v rámci této práce ve výborné shodě s údaji z knihoven. Proto lze předpokládat, že i pro málo proměřené oblasti energií, kde nejsou k dispozici relevantní data pro srovnání, jsou získané údaje spolehlivé. V oblastech, kde jsou rozpory v dřívějších datech, mají měření provedená v rámci této práce potenciál přispět k řešení oněch rozporů. Typickým příkladem reakce, kde jsou pro data uváděná v knihovně EXFOR značné rozpory mezi měřeními jednotlivých přispěvatelů, je ²³Na(n, 2n)²²Na. V případě uvedené reakce ukazují nová experimentální data na věrohodnost spíše nižších hodnot ze všech uváděných v knihovně EXFOR. V situacích, kdy nastává rozpor mezi údaji získanými pomocí kódu TALYS a daty z knihovny EXFOR, potvrzují nová experimentální data dříve provedená měření. Co se týče srovnání se zhodnocenými knihovnami jaderných dat, tak zde není patrný žádný výrazný trend. U většiny zhodnocených knihoven lze pozorovat, že pro některé reakce z dané knihovny nastává dobrá shoda s novými experimentálními daty, pro některé reakce z téže knihovny se zhodnocená data zdají být mírně nadhodnocena, pro další zase mírně podhodnocena.

³Změnou vybraných parametrů používaného modelu lze dosáhnout lepší shody s experimentálními daty i u zmíněné reakce na fluoru. Pro účely srovnání uváděného v příloze A je však vždy použito výchozí nastavení všech volitelných parametrů kódu TALYS 1.95.

Závěr

Pro účely rozvoje průmyslových technologií využívajících jaderné reakce i pro zpřesňování teoretických modelů těchto interakcí je nezbytné získávat stále nové experimentálně určené hodnoty účinných průřezů vybraných reakcí. Zejména pro vyšší energie neutronů v řádu desítek MeV je pro většinu reakcí velmi málo experimentálních dat. Přitom i tato oblast energií je velmi důležitá při návrhu vybraných pokročilých jaderných systémů, zejména těch využívajících urychlovače nabitých částic.

Činnosti experimentátorů zabývajících se měřením účinných průřezů a odborníků provádějících zhodnocení experimentálních dat je vhodné koordinovat tak, aby jejich úsilí co nejvíce reflektovalo aktuální požadavky výzkumu a vývoje pokročilých jaderných technologií. Za tímto účelem byla zřízena databáze požadavků na zpřesnění a doplnění jaderných dat (*High Priority Request List*, HPRL) [15, 16], která je pod správou Agentury pro atomovou energii v rámci Organizace pro hospodářskou spolupráci a rozvoj (Nuclear Energy Agency within the framework of The Organisation for Economic Co-operation and Development, NEA OECD). Díky tomu lze při přípravě experimentu s cílem měřit nová jaderná data zohlednit aktuální potřeby odborníků využívajících jaderná data. Databáze HPRL hrála důležitou roli i při návrhu experimentů uskutečněných v rámci bakalářské práce, výzkumného úkolu i této práce a do značné míry ovlivnila volbu ozařovaných materiálů i zkoumaných reakcí. Celkem se podařilo experimentálně určit účinné průřezy devatenácti reakcí rychlých neutronů pro sedm materiálů využitelných jako aktivační detektory neutronů či konstrukční materiály pokročilých jaderných systémů. Mnohé z těchto reakcí byly proměřeny pro tři různé energie neutronů. Ve výsledku se jedná o desítky nově získaných hodnot s nejistotami obvykle nižšími než deset procent, což je jeden z běžných požadavků v HPRL. U reakcí, kde existuje značné množství dostupných experimentálních údajů v knihovně EXFOR, se podařilo prokázat velmi dobrou shodu mezi stávajícími a nově určenými účinnými průřezy. Díky tomu lze předpokládat, že v oblastech, kde je významný nedostatek experimentálních dat, případně nejsou k dispozici žádná relevantní data, představují výsledky získané v rámci těchto prací důvěryhodné hodnoty. Mezi údaji uváděnými v knihovně EXFOR jsou v mnohých případech velmi významné rozpory. Nově získaná data však mají vysoký potenciál přispět k řešení těchto rozporů. V současné době probíhají intenzivní snahy o publikování článku shrnujícího použité metodiky a získané výsledky, aby účinné průřezy určené při zmíněných experimentech mohly přispět k rozšíření knihovny EXFOR.

Kromě standardního způsobu určení výtěžku sledované reakce na základě studia příslušných gama linek charakterizujících rozpad daného radionuklidu se podařilo vypracovat (a pro několik případů i ověřit) zajímavou metodiku využití anihilačního píku k určení výtěžku. Díky tomu bylo možné pomocí gama spektrometrické aparatury analyzovat i radionuklid podléhající čisté beta plus přeměně, která není doprovázena emisí gama záření.

Seznam obrázků

2.1	Izochronní cyklotron U-120M s připojenou lithiovou terčovou stanicí.	24
2.2	Ukázka energetického spektra neutronů produkovaných při reakcích	
	nabitých částic s tlustým terčem z deuteria.	25
2.3	Ukázka energetického spektra neutronů produkovaných při reakcích	
	nabitých částic s tlustým terčem z beryllia	27
2.4	Ukázka energetického spektra neutronů produkovaných při reakcích	
	nabitých částic s tlustým terčem z lithia.	28
2.5	Ukázka energetického spektra neutronů produkovaných při reakcích	
	protonů s tenkým terčem z lithia.	28
2.6	Li terčová stanice	30
2.7	Držák se vzorky k ozáření připojený k Li terčové stanici.	30
2.8	Srovnání neutronových spekter tepelného štěpného zdroje a spalač-	
	ního zdroje p (800 MeV) +W	31
3.1	Závislost píkové účinnosti HPGe detektoru Canberra GC3018 na ener-	
	gii gama záření a vzdálenosti zářiče od citlivého objemu detektoru $% \left[{{\left[{{{\left[{{\left[{{\left[{{\left[{{\left[{{\left[$	37
3.2	Závislost totální účinnosti HPG e detektoru Canberra GC3018 na ener-	
	gii gama záření a vzdálenosti zářiče od citlivého objemu detektoru $% \left[{{\left[{{{\left[{{\left[{{\left[{{\left[{{\left[{{\left[$	37
3.3	Poměr kalibrace účinnosti detektoru určené experimentálně k výsled-	
	kům simulace pomocí kódu MCNPX pro "bodové" etalony	41
3.4	Závislost velikosti součinitel e $C_{\rm plocha}$ na vzdálenosti zářič-detektor pro	
	několik sledovaných gama linek a fóli i $25\times25\mathrm{mm.}$	41
4.1	Průběh proudu svazku protonů během ozařování	48
5.1	Rozpadové křivky ^{87m} Y a ^{87g} Y	52
5.2	Rozpadové křivky ^{87m} Y a ^{87g} Y	52
5.3	Rozpadové křivky ^{196m2} Au a ^{196g+m1} Au	53
5.4	Rozpadová křivka ⁵⁸ co	56
5.5	Rozpadové křivky ^{58m} Co a ^{58g} Co	56
6.1	Srovnání energetických spekter pozitronů emitovaných radionuklidy	
	$^{18}\mathrm{F},~^{22}\mathrm{Na}$ a $^{58}\mathrm{Co.}$	58
6.2	Vizualizace modelu HPGe detektoru Canberra GC3018 vytvořeného	
	v kódu MCNPX vytvořená pomocí programu The Visual Editor	60
6.3	Srovnání různých přístupů ke kalibraci účinnosti HPGe detektoru	
	v případě radionuklidu ¹⁸ F. Křivky vynesené přerušovanou čarou ne-	
	mají fyzikální význam, slouží jen k zlepšení přehlednosti obrázku. $% f(x)=f(x)$.	60
7.1	Energetické spektrum neutronového pole lithiové terčové stanice ur-	
	čené pomocí metody ToF	65

7.2	ToF spektrometrie v ÚJF	66
7.3	Vizualizace modelu Li terčové stanice v kódu MCNPX	66
7.4	Energetické spektrum neutronového pole lithiové terčové stanice ur-	
	čené pomocí výpočetního kódu MCNPX	66
8.1	Ukázka překryvu neutronového spektra lithiové terčové stanice s ex-	
	citačními funkcemi vybraných reakcí	71
8.2	Srovnání tvaru neutronového spektra lithi ové terčové stanice určené \ensuremath{v}	
	výpočtem v kódu MCNPX na základě jaderných dat z různých zhod-	
	nocených knihoven a metodou ToF	73
8.3	Srovnání hodnot součinitel e $C_{\rm bgr}$ pro různé přístupy k spektrometrii	
	neutronového pole i způsobu predikce jaderných dat pomocí kódu	
	TALYS. <td>74</td>	74
8.4	Grafické znázornění problematiky účinných průřezů na tenkém terči	75
9.1	Srovnání tvaru kvazimono energetických neutronových spekter lithi-	
	ové terčové stanice pro tři různé energie výrazného píku dle MCNPX.	79
A.1	Excitační funkce reakce ${}^{209}\text{Bi}(n, 3n){}^{207}\text{Bi}$.	95
A.2	Excitační funkce reakce ${}^{209}\text{Bi}(n,4n){}^{206}\text{Bi}$	95
A.3	Excitační funkce reakce ${}^{197}Au(n,2n){}^{196}Au$.	96
A.4	Excitační funkce reakce ${}^{197}Au(n,2n){}^{196m2}Au$	96
A.5	Excitační funkce reakce ${}^{197}Au(n, 3n){}^{195}Au$.	97
A.6	Excitační funkce reakce ${}^{197}Au(n, 4n){}^{194}Au$.	97
A.7	Excitační funkce reakce ${}^{89}Y(n,2n){}^{88}Y$	98
A.8	Excitační funkce reakce ${}^{89}Y(n,3n){}^{87}Y$.	98
A.9	Excitační funkce reakce ${}^{89}Y(n,3n){}^{87g}Y.$	99
A.10	Excitační funkce reakce ${}^{89}Y(n,3n){}^{87m}Y$	99
A.11	Excitační funkce reakce ${}^{27}Al(n,p){}^{27}Mg$.	100
A.12	Excitační funkce reakce 27 Al $(n, \alpha)^{24}$ Na.	100
A.13	Excitační funkce reakce ${}^{59}Co(n, 2n){}^{58g}Co.$	101
A.14	Excitační funkce reakce ${}^{59}Co(n, 2n){}^{58m}Co.$	101
A.15	Excitační funkce reakce 59 Co $(n, 2n)$ 58 Co	102
A.16	Excitační funkce reakce ${}^{59}Co(n,p){}^{59}Fe.$	102
A.17	Excitační funkce reakce ${}^{59}Co(n, \alpha){}^{56}Mn$.	103
A.18	Excitační funkce reakce 23 Na $(n, 2n)$ 22 Na	103
A.19	Excitační funkce reakce ${}^{19}F(n,2n){}^{18}F.$	104

Seznam tabulek

1	Parametry ozařovaných vzorků.	46	
2	Srovnání počtu jader v základním stavu v okamžiku ukončení ozařo-		
	vání $N_{0,g}$, resp. v izomerním stavu $N_{0,m}$	55	
3	Důležité parametry pozitronových spekter vybraných radionuklidů.	59	
4	Srovnání výtěžků vybraných reakcí získaných na základě analýzy pří-		
	slušné gama linky a na základě analýzy anihilačního píku.	62	
5	Srovnání relativní hustoty toku neutronů určené pomocí kódu MC-		
	NPX a relativní plošné hustoty reakční rychlosti v různých vzdále-		
	nostech od lithiového terče.	69	
6	Přehled veličin a součinitelů používaných při výpočtu výtěžku reakce		
	$N_{ m výtežek}$	77	
7	Přehled veličin používaných při výpočtu účinného průřezu reakce	78	
8	Přehled experimentálně určených účinných průřezů pro sledované re-		
	akce na bismutu a hliníku	80	
9	Přehled experimentálně určených účinných průřezů pro sledované re-		
	akce na yttriu a sodíku.	80	
10	Přehled experimentálně určených účinných průřezů pro sledované re-		
	akce na zlatě	81	
11	Přehled experimentálně určených účinných průřezů pro sledované re-		
	akce na kobaltu	81	
12	Přehled experimentálně určených účinných průřezů pro sledované re-		
	akce na fluoru	81	

Seznam zkratek

ADS	Urychlovačem řízené systémy (Accelerator driven systems)
AV ČR	Akademie věd České republiky (The Academy of Sciences of the Czech Republic)
CEA	Francouzská výzkumná instituce v Bruyéres (French research facility in Bruyéres)
CINDA	Knihovna bibliografických neutronových dat (Computer Index of Neutron Data)
CYRIC	Cyklotronové a radioizotopové centrum v Tohoku (Cyclotron and Radioisotope Center at Tohoku)
ČVUT	České vysoké učení technické v Praze (Czech Technical University)
EAF	Evropská aktivační knihovna (The European Activation File)
EC	Záchyt elektronu (Electron capture)
ENDF-6	Formát zhodnocených dat popisujících jaderné reakce (Evaluated Nuclear Data File 6)
ENDF/B	Knihovna zhodnocených jaderných dat, USA (Evaluated Nuclear Data File B)
ENSDF	Formát zhodnocených dat popisujících strukturu jader (Evaluated Nuclear Structure Data File)
eV	Elektronvolt (Electronvolt)
EXFOR	Knihovna experimentálních jaderných dat (Experimental Nuclear Reaction Data)
FENDL	Knihovna zhodnocených jaderných dat pro účely fúze (Fusion Evaluated Nuclear Data Library)

FJFI	Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská (Faculty of Nuclear Sciences and Physical Engineering)
FWHM	Pološířka (Full Width at Half Maximum)
Gen. IV	Čtvrtá generace jaderných reaktorů (The Fourth Generation of Nuclear Reactors)
HPGe	Germánium s vysokou čistotou (High Purity Germanium)
HPRL	Databáze požadavků na zpřesnění jaderných dat (High Priority Request List)
IAEA	Mezinárodní agentura pro atomovou energii (International Atomic Energy Agency)
IFMIF	Mezinárodní zařízení pro testování materiálů pro fúzi (The International Fusion Materials Irradiation Facility)
IRDFF	Mezinárodní knihovna reaktorové dozimetrie a fúzních dat (International Reactor Dosimetry and Fusion File)
JEFF	Společná zhodnocená knihovna jaderných dat (Join Evaluated Fission and Fusion File)
JENDL	Japonská knihovna zhodnocených neutronových dat (Japanese Evaluated Neutron Data Library)
LA150h	Knihovna zhodnocených dat z Los Alamos (Los Alamos Evaluated Data Library)
LDMODEL	Model hustoty excitovaných stavů v kódu TALYS (Level Density Models in TALYS)
LBE	Eutektikum olova a bismutu (Lead Bismuth Eutectic)
MCNPX	Rozšířený Monte Carlo N-částicový transportní kód (Monte Carlo N-Particle eXtended transport code)
MOX	Palivo tvořené směsí oxidů uranu a plutonia (Mixed OXide fuel)

NaF	Fluorid sodný (Sodium Fluoride)
NE-213	Organická scintilační sonda (Organic Scintillator Detector)
NEA	Agentura pro atomovou energii (Nuclear Energy Agency)
NG-2	Neutronový generátor č. 2 (Neutron Generator no. 2)
NRG Petten	Jaderná výzkumná a poradenská skupina v Pettenu (Nuclear Research and Consultancy Group in Petten)
\mathbf{NSR}	Reference jaderných dat (Nuclear Science References)
OECD	Organizace pro hospodářskou spolupráci a rozvoj (The Organization for Economic Co-operation and Development)
ODS	Oceli disperzně zpevněné oxidickými částicemi (Oxide Dispersion Strengthened Alloys)
OJR	Oddělení jaderných reakcí ÚJF AV ČR (Department of Nuclear Reactions NPI CAS)
OJS	Oddělení jaderné spektroskopie ÚJF AV ČR (Department of Nuclear Spectroscopy NPI CAS)
SÚJV Dubna	Spojený ústav jaderných výzkumů Dubna (The Joint Institute for Nuclear Research Dubna)
ToF	Určení energie z doby letu (Time-of-flight method)
U-120M	Cyklotron na pracovišti ÚJF v Řeži (Cyclotrone at NPI Řež)
ÚJF	Ústav jaderné fyziky (Nuclear Physics Institute)
v.v.i.	Veřejná výzkumná instituce (Public Research Institution)

Seznam veličin

В	Magnetická indukce (T)
С	Rychlost světla $(m \cdot s^{-1})$
$C_{\rm abs}$	Korekční součinitel na vliv samoabsorpce ve vzorku (-)
$C_{ m bgr}$	Korekční součinitel na vliv neutronů ze spojitého pozadí (-)
$C_{\rm COI}$	Korekční součinitel na vliv kaskádních koincidencí (-)
$C_{\rm irr}$	Korekční součinitel na rozpad během ozařování (-)
$C_{\rm irr,g}$	Korekční součinitel na rozpad během ozařování (základní stav) (-)
$C_{\rm plocha}$	Korekční součinitel na plochu zářiče (-)
C_{stab}	Korekční součinitel na stabilitu svazku (-)
D	Tlouštka (mm)
ΔN	Počet jader rozpadnuvších se během času $t_{\rm real}$ (-)
$\Delta N_{\rm výtěžek}$	Nejistota výtěžku reakce (-)
$\Delta \overline{N_{\rm výtěžek}}$	Nejistota střední hodnoty výtěžku reakce (-)
E_{γ}	Energie fotonu gama (eV)
$E_{\mathbf{k}}$	Kinetická energie (eV)
$E_{\rm n}$	Energie neutronů (eV)
$E_{\rm p}$	Energie protonů (eV)
$\epsilon_{ m P}$	Píková účinnost detektoru (-)
$\epsilon_{\mathrm{P,511}}$	Píková účinnost detektoru pro pozitrony (-)
$E_{\rm thr}$	Prahová energie reakce (eV)
f	Funkce (-)
Φ	Tok neutronů $(cm^{-2} \cdot C^{-1})$
I_{γ}	Intenzita gama linky $(\%)$
$I_{\beta+}$	Pravděpodobnost $\beta+$ přeměny vůči ostatním kanálům rozpadu (%)
k	Počet měření (-)
λ	Rozpadová konstanta (s^{-1})
$\lambda_{ m g}$	Rozpadová konstanta nuklidu v základním stavu $({\rm s}^{-1})$
$\lambda_{ m m}$	Rozpadová konstanta nuklidu v izomerním stavu $({\rm s}^{-1})$
M	Molární hmotnost $(\mathbf{g} \cdot \mathbf{mol}^{-1})$
m	Hmotnost (g)
m_0	Klidová hmotnost (g)
μ	Střední hodnota normálního rozdělení (-)
μ_T	Totální lineární ko eficient zeslabení $({\rm cm}^{-1})$
N	Počet jader (-)
N_0	Počet jader v čase $t = 0$ (-)
$N_{0,\mathrm{g}}$	Počet jader v základním stavu v čase $t = 0$ (-)

$N_{0,\mathrm{m}}$	Počet jader v metastabilním stavu v čase $t = 0$ (-)
$N_{\rm A}$	Avogadrova konstanta (mol^{-1})
$N_{\rm g}$	Počet jader v základním stavu (-)
$N_{\rm j}$	Počet jader terče (-)
$N_{\rm m}$	Počet jader v metastabilním stavu (-)
$N_{\rm n}$	Počet neutronů příslušných výraznému píku (-)
$N_{\rm výtěžek}$	Výtěžek reakce (-)
$\overline{N_{\mathrm{v\acute{y}t\check{e}\check{z}ek}}}$	Střední hodnota výtěžku reakce (-)
$N_{\rm výtěžek,g}$	Výtěžek reakce (základní stav) (-)
$N_{\rm výtěžek,m}$	Výtěžek reakce (izomerní stav) (-)
Р	Rychlost vzniku radioaktivních jader (s^{-1})
p_{γ}	Pravděpodobnost emise gama záření (-)
$P_{\rm g}$	Rychlost vzniku radioaktivních jader v základním stavu (s^{-1})
P_i	Rychlost vzniku jader v <i>i</i> -tém časovém intervalu (s ⁻¹)
$P_{\rm m}$	Rychlost vzniku radioaktivních jader v izomerním stavu (s^{-1})
q	Náboj (C)
R	Funkce popisující spektrum neutronů p+Li reakce v dopředném směru (-)
r	Vzdálenost detektoru od zdroje neutronů (m)
ρ	Hustota $(g \cdot cm^{-3})$
$ ho_{ m RR}$	Plošná hustota reakční rychlosti $(\mathrm{cm}^{-2}\cdot\mathrm{s}^{-1})$
S	Plocha zářiče (cm^2)
s	Dráha (m)
σ	Mikroskopický účinný průřez (b)
$\overline{\sigma}$	Směrodatná odchylka normálního rozdělení (-)
$S_{\rm pík}$	Plocha píku (-)
$S_{ m pík,511}$	Plocha anihilačního píku (-)
t	$\operatorname{\check{C}as}(s)$
t'	$\operatorname{\check{C}as}(s)$
t_0	Čas od ukončení ozařování do začátku měření (s)
$T_{1/2}$	Poločas rozpadu (s)
t_i	Začátek i -tého časového intervalu (s)
$t_{ m irr}$	Čas ozařování (s)
$t_{\rm live}$	Čas měření s korekcí na mrtvou dobu (s)
$t_{\rm real}$	Skutečný čas měření (s)
v	Rychlost $(m \cdot s^{-1})$
$\omega_{ m c}$	Cyklotronová frekvence (Hz)
W	Počet H $^-$ urychlených v $i-tém intervalu ku celkovému počtu H^- (-)$
w_i	Váhová funkce (-)

Příloha

2,0 Experimenty 1,8 ENDF/B-VIII.0 TENDL-2019 1,6 Účinný průřez (barn) TALYS 1.95 1,4 EAF-2010 **IRDFF-II** 1,2 JEFF-3.3 1,0 EXFOR 0,8 0,6 0,4 0,2 0 15 20 25 30 35 40 45 Energie neutronů (MeV)

A Excitační funkce sledovaných reakcí

Obr. A.1: Excitační funkce reakce ${}^{209}Bi(n, 3n){}^{207}Bi$. EXFOR [54, 66, 67].



Obr. A.2: Excitační funkce reakce ${}^{209}\text{Bi}(n, 4n){}^{206}\text{Bi}$. EXFOR [54, 66, 68].



Obr. A.3: Excitační funkce reakce $^{197}{\rm Au}({\rm n},2{\rm n})^{196}{\rm Au}.$ EXFOR [54, 63, 66, 69].



Obr. A.4: Excitační funkce reakce ${}^{197}Au(n, 2n){}^{196m2}Au$. EXFOR [36, 54, 69].



Obr. A.5: Excitační funkce reakce ${}^{197}Au(n, 3n){}^{195}Au$. EXFOR [54, 69, 70].



Obr. A.6: Excitační funkce reakce $^{197}{\rm Au}({\rm n},4{\rm n})^{194}{\rm Au}.$ EXFOR [36, 54, 69, 70, 71].



Obr. A.7: Excitační funkce reakce ${}^{89}Y(n, 2n){}^{88}Y$. EXFOR [36, 69, 70, 72].



Obr. A.8: Excitační funkce reakce ${}^{89}Y(n, 3n){}^{87}Y$. EXFOR [67, 69, 70, 72].



Obr. A.9: Excitační funkce reakce $^{89}\mathrm{Y}(\mathrm{n},3\mathrm{n})^{87\mathrm{g}}\mathrm{Y}.$ EXFOR [36, 72].



Obr. A.10: Excitační funkce reakce ${}^{89}Y(n, 3n){}^{87m}Y$. EXFOR [36, 69, 72].



Obr. A.11: Excitační funkce reakce 27 Al(n, p) 27 Mg. EXFOR [66, 73, 74, 75].



Obr. A.12: Excitační funkce reakce $^{27}\mathrm{Al}(\mathrm{n},\alpha)^{24}\mathrm{Na.}$ EXFOR [69, 71, 76].



Obr. A.13: Excitační funkce reakce ${}^{59}Co(n, 2n){}^{58g}Co.$ EXFOR [77, 78, 79].



Obr. A.14: Excitační funkce reakce $^{59}\mathrm{Co}(\mathrm{n},2\mathrm{n})^{58\mathrm{m}}\mathrm{Co.}$ EXFOR [77, 78, 80].



Obr. A.15: Excitační funkce reakce 59 Co(n, 2n) 58 Co. EXFOR [54, 77, 78, 81].



Obr. A.16: Excitační funkce reakce ${}^{59}Co(n, p){}^{59}Fe$. EXFOR [54, 69, 78, 80].



Obr. A.17: Excitační funkce reakce ${}^{59}Co(n, \alpha){}^{56}Mn$. EXFOR [75, 77, 81, 82].



Obr. A.18: Excitační funkce reakce 23 Na $(n, 2n)^{22}$ Na. EXFOR [71, 83, 84, 85, 86].



Obr. A.19: Excitační funkce reakce ${}^{19}F(n, 2n){}^{18}F$. EXFOR [77, 83, 84, 87, 88].

Reference

- WEINTROUB, S. The Fermi Chicago Pile. *Nature*. 1963, **197**(4866), s. 439-439. ISSN 0028-0836. DOI:10.1038/197439a0.
- [2] SOOD, D. D., P. OBLOŽINSKÝ, M. HERMAN a O. SCHWERER. Nuclear data for applications. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 243(1), s. 227-233. DOI: 10.1023/A:1006712607567. ISSN 02365731.
- [3] ULEHLA, Ivan et al. Atomy, jádra, částice: celostátní vysokoškolská učebnice pro studenty matematicko-fyzikálních a přírodovědných fakult. Academia, 1990. ISBN 80-200-0135-2.
- [4] CAMPBELL, John. Rutherford's legacy. *Physics World.* 2019, **32**(6), s. 21. ISSN 0953-8585. DOI:10.1088/2058-7058/32/6/27.
- [5] KODELI, I. Sensitivity analysis and uncertainty propagation from basic nuclear data to reactor physics and safety relevant parameters. Zpráva NEA OEC, 2007. Dostupné také z: https://www.oecd-nea.org/nsd/reports/2007/nea6053/ Session-II-Methods-for-Uncertainty-Assessment/Paper-5_kodeli.pdf.
- [6] A strategic view on nuclear data needs. Zpráva NEA OECD, Paříž, 1993. Dostupné také z: https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/ _Public/25/048/25048123.pdf.
- [7] Experimental Nuclear Reaction Data (EXFOR) [online]. [cit. 2020-02-10]. Dostupné z: https://www-nds.iaea.org/exfor/.
- [8] EXFOR Library Statistics [online]. [cit. 2020-02-20]. Dostupné z: https://www-nds.iaea.org/exfor/x4stat/exfor_stat.htm.
- [9] ENDF/B-VIII.0 Evaluated Nuclear Data Library [online]. [cit. 2020-02-10]. Dostupné z: https://www.nndc.bnl.gov/endf/b8.0/.
- [10] JEFF-3.3 Evaluated Nuclear Data Library [online]. [cit. 2020-02-10]. Dostupné z: https://www.oecd-nea.org/dbdata/jeff/jeff33/index.html.
- [11] KUNIEDA, S. et al. Overview of JENDL-4.0/HE and benchmark calculation [online]. 2016 [cit. 2019-11-02]. Dostupné z: https://wwwndc.jaea.go.jp/ ftpnd/jendl/jendl40he.html.
- [12] TRKOV, A. et al. IRDFF-II: A New Neutron Metrology Library. Nuclear Data Sheets. 2020, 163, 1-108. ISSN 00903752. DOI:10.1016/j.nds.2019.12.001.
- [13] SUBLET, J. et al. The European Activation File: EAF-2010 neutron-induced cross section library. 2010. CCFE-R (10) 05. Dostupné také z: https://t2. lanl.gov/nis/data/jeff/EAF2010.pdf.

- [14] Computer Index of Nuclear Reaction Data (CINDA) [online]. [cit. 2020-02-10].
 Dostupné z: https://www-nds.iaea.org/exfor/cinda.htm.
- [15] SMITH, D. et al. The OECD Nuclear Energy Agency Request List for Nuclear Data. AIP Conference Proceedings 769. 2005, s. 545-548. ISSN 0094243X. DOI: 10.1063/1.1945067.
- [16] PLOMEN, A. et al. The NEA High Priority Nuclear Data Request List for future needs, International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Nice, Francie, 2007, EDP Sciences, s. 765-768, DOI: 10.1051/ndata:07419.
- [17] High Priority Nuclear Data Request List [online]. [cit. 2020-10-30]. Dostupné z: https://www.oecd-nea.org/dbdata/hprl/index.html.
- [18] PLOMEN, A. J. M. et al. Neutron activation cross-section measurements from threshold to 20 MeV for the validation of nuclear models and their parameters Zpráva NEA OECD, 2005. ISBN 92-64-01070-X. Dostupné také z: https:// oecd-nea.org/download/wpec/volume19/volume19.pdf.
- [19] SALVATORES, M. et al. Uncertainty and target accuracy assessment for innovative systems using recent covariance data evaluations Zpráva NEA OECD, 2008. ISBN 978-92-64-99053-1. Dostupné také z: https://oecd-nea.org/ download/wpec/volume26/volume26.pdf.
- [20] HARADA, Hideo et al. Meeting Nuclear Data Needs for Advanced Reactor Systems. Zpráva NEA OECD, NEA/NSC/WPEC/DOC(2014)446, 2014. Dostupné také z: https://oecd-nea.org/download/wpec/volume31/volume31.pdf.
- [21] KONING, A. J., M. C. DUIJVESTIJN, S. C. VAN DER MARCK, R. Klein MEULEKAMP a A. HOGENBIRK. New Nuclear Data Libraries for Lead and Bismuth and Their Impact on Accelerator-Driven Systems Design. *Nuclear Science and Engineering.* 2017, **156**(3), s. 357-390. ISSN 0029-5639. DOI:10.13182/NSE156-357.
- [22] FISCHER, U. et al. Development needs of nuclear data for fusion technology. ND2007. Les Ulis, France: EDP Sciences, 2007. DOI:10.1051/ndata:07494.
- [23] KNASTER, J. et al. IFMIF, the European–Japanese efforts under the Broader Approach agreement towards a Li(d,xn) neutron source: Current status and future options. *Nuclear Materials and Energy*. 2016, 9, s. 46-54. ISSN 23521791. DOI:10.1016/j.nme.2016.04.012.
- [24] HOLMES, R. J. Gamma ray and neutron sources. 1982, s. 123 -136. Dostupné také z: https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/ _Public/14/792/14792880.pdf?r=1&r=1.

- [25] LAMARSH, John R. a Anthony J. BARATTA. Introduction to Nuclear Engineering. Third Edition. Prentice Hall, 2001, s. 87. ISBN 0-201-82498-1.
- [26] DROSG, M. Characteristics of accelerator based neutron sources: Monoenergetic neutron production by two-body reactions in the energy range from 0.0001 to 500 MeV. Institute of Experimental Physics, University of Vienna [cit. 2019-10-19]. Dostupné z: http://citeseerx.ist.psu.edu/viewdoc/download?doi= 10.1.1.566.3490&rep=rep1&type=pdf.
- [27] BÉM, P. et al. Fast neutrons from thick deuterium target irradiated by 15.8 MeV protons and 14.1 MeV deuterons. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 1999, 425(3), s. 522-528. DOI: 10.1016/S0168-9002(98)01412-0. ISSN 01689002.
- [28] ŠTEFÁNIK, Milan. Experimentálne stanovenie spektier urýchľovačom riadených neutrónových generátorov. Praha, 2016. Disertační práce. KJR FJFI ČVUT. Vedoucí práce Ing. Karel Katovský, Ph.D.
- [29] BEM, P. et al. The NPI cyclotron-based fast neutron facility. International Conference on Nuclear Data for Science and Technology 2007. Nice, 2007, s. 555-558. DOI: 10.1051/ndata:07598.
- [30] ŠTEFÁNIK, Milan et al. Neutron field study of p(35)+Be source reaction at the NPI Rez. *Radiation Physics and Chemistry.* 2019, **155**, s. 294-298. DOI: 10.1016/j.radphyschem.2018.06.046. ISSN 0969806X.
- [31] WINTER, M. The periodic table of the elements [online]. 1993 [cit. 2020-11-22]. Dostupné z: https://www.webelements.com/.
- [32] LONE, M. A. et al. Thick target neutron yields and spectral distributions from the ⁷Li(p/d,n) and ⁹Be(p/d,n) reactions. *Nuclear Instruments and Methods*. 1977, **143**(2), s. 331-344. DOI: 10.1016/0029-554X(77)90616-4. ISSN 0029554X.
- [33] STEFANIK, Milan et al. Neutron spectrum determination of d(20)+Be source reaction by the dosimetry foils method. *Radiation Physics and Chemistry*. 2017, 140, s. 466-470. DOI: 10.1016/j.radphyschem.2017.03.029. ISSN 0969806X.
- [34] HNATOWICZ, Vladimír. Handbook of nuclear data for neutron activation analysis Vol I. Cs. Atomic Energy Commission, Nuclear Information Centre, 1986.
- [35] JAROŠÍK, Jiří. Studium reakcí neutronů důležitých pro pokročilé jaderné systémy. 2020. Výzkumný úkol. KJR FJFI ČVUT. Vedoucí práce RNDr. Vladimír Wagner, Csc.

- [36] CHUDOBA, P., A. KRÁSA, J. VRZALOVÁ, et al. Activation Measurements of Cross Sections for Ground and Isomeric States Production in Neutron Threshold Reactions on Y and Au. *Nuclear Science and Engineering*. 2018, **191**(2), s. 150-160. DOI: 10.1080/00295639.2018.1455437. ISSN 0029-5639.
- [37] Qtool: Calculation of Reaction Q-values and Thresholds [online]. [cit. 2019-12-20]. Dostupné z: https://t2.lanl.gov/nis/data/qtool.html.
- [38] CHUDOBA, Petr. Study of reaction cross-sections important for advanced nuclear systems. 2018. Disertační práce. Univerzita Karlova, Matematickofyzikální fakulta. Vedoucí práce RNDr. Vladimír Wagner, CSc.
- [39] RUSSELL, G. J., E. J. PITCHER a L. L. DAEMEN. Introduction to spallation physics and spallation-target design. AIP Conference Proceedings. AIP, 1995, s. 93-104. DOI: 10.1063/1.49085. ISSN 0094243X.
- [40] BAUER, G.S. Physics and technology of spallation neutron sources. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 2001, 463(3), s. 505-543. DOI: 10.1016/S0168-9002(01)00167-X. ISSN 01689002.
- [41] GILMORE, Gordon. Practical gamma-ray spectrometry. 2nd ed. Hoboken, New York: Wiley, 2008. ISBN 978-0-470-86196-7.
- [42] JAROŠÍK, Jiří. Studium reakcí neutronů důležitých pro pokročilé jaderné systémy. 2019. Bakalářská práce. KJR FJFI ČVUT. Vedoucí práce RNDr. Vladimír Wagner, Csc.
- [43] Live Chart of Nuclides [online]. [cit. 2019-10-22]. Dostupné z: https:// www-nds.iaea.org/relnsd/vcharthtml/VChartHTML.html.
- [44] CHUDOBA, Petr. Využití aktivačních detektorů při měření neutronového pole v modelových sestavách ADTS. 2013. Diplomová práce. MFF UK. Vedoucí práce RNDr. Vladimír Wagner, CSc.
- [45] BERGER, M. J. et al. XCOM: Photon Cross Section Database (version 1.5).
 2010. [online]. [cit. 2020-11-16]. Dostupné z: http://physics.nist.gov/xcom.
- [46] SUDAR, Sándor. TrueCoinc [online]. [cit. 2019-10-22]. Dostupné z: http:// kisfiz.phys.klte.hu/kisfiz/sudar/truecoinc.htm.
- [47] MAJERLE, Mitja. Monte Carlo methods in spallation experiments. 2009. Disertační práce. KJR FJFI ČVUT. Vedoucí práce RNDr. Vladimír Wagner, CSc.
- [48] MCNPX 2.4.0 Monte Carlo N-Particle Transport Code System for.
- [49] JAMES, F. Statistics. The European Physical Journal C. 2000, 15(1-4), s. 195-201. DOI: 10.1007/BF02683424. ISSN 1434-6044.
- [50] SVOBODA, Ondřej. Experimental Study of Neutron Production and Transport for ADTT. 2011. Disertační práce. KJR FJFI ČVUT. Vedoucí práce RNDr. Vladimír Wagner, CSc.
- [51] KUMAR, V., Harphool KUMAWAT a Manish SHARMA. Role of (n, xn) reactions in ADS, IAEA-benchmark and the Dubna Cascade Code. *Pramana*. 2007, 68(2), s. 315-324. ISSN 0304-4289. DOI:10.1007/s12043-007-0036-2.
- [52] BIELEWICZ, M., S. KILIM, E. STRUGALSKA-GOLA, M. SZUTA a A. WOJ-CIECHOWSKI. Yttrium as a New Threshold Detector for Fast Neutron Energy Spectrum (>10 MeV) Measurement. Journal of the Korean Physical Society. 2011, 59(2(3)), s. 2014-2017. ISSN 0374-4884. DOI:10.3938/jkps.59.2014.
- [53] MAJERLE, M. et al. Validation of ⁵⁹Co and ⁹³Nb activation cross sections in a quasi-mono energetic neutron spectrum (< 35 MeV) including irradiation, measurement and computational analysis. IAEA Final Report F4E-2010-GRT-056 Action2, Task4.2 [online]. 2016 [cit. 2019-11-01]. Dostupné z: https:// www-nds.iaea.org/publications/indc/indc-czr-0002/.
- [54] MAJERLE, M., P. BÉM, J. NOVÁK, E. ŠIMEČKOVÁ a M. ŠTEFÁNIK. Au, Bi, Co and Nb cross-section measured by quasimonoenergetic neutrons from p 7Li reaction in the energy range of 18–36 MeV. *Nuclear Physics A*. 2016, 953, s. 139-157. DOI: 10.1016/j.nuclphysa.2016.04.036. ISSN 03759474.
- [55] WILLIAMS, T. et al. Gnuplot 5.4: an interactive plotting program. 2020 [cit. 2020-12-12]. Dostupné z: http://gnuplot.sourceforge.net/.
- [56] Annals of the ICRP (publication 107): Supplemental Material. 3. vydání. Elsevier, 2008. ISBN 978-0-7020-3475-6. Dostupné také z: https://journals. sagepub.com/doi/suppl/10.1177/ANIB_38_3.
- [57] SCHWARZ, A. L. et al. MCNP6/MCNPX Visual Editor Computer Code Manual. 2018.
- [58] Los Alamos Neutron Science Center: Time of Flight Techniques [online]. [cit. 2020-04-02]. Dostupné z: https://lansce.lanl.gov/facilities/ time-of-flight.php.
- [59] ANSORGE, Martin. Měření neutronových polí urychlovačem řízených generátorů metodou doby letu neutronu. 2015. Výzkumný úkol. KJR FJFI ČVUT. Vedoucí práce Ing. Jan Novák, Ph.D.
- [60] ANSORGE, Martin. Získání energetických spekter neutronových polí urychlovačem řízených generátorů metodou doby letu. 2016. Diplomová práce. KJR FJFI ČVUT. Vedoucí práce Ing. Jan Novák, Ph.D.

- [61] MASHNIK, S.G. et al. 7-Li(p,n) Nuclear Data Library for Incident Proton Energies to 150 MeV [online]. 2000 [cit. 2019-11-01]. Dostupné z: https:// arxiv.org/abs/nucl-th/0011066.
- [62] FORREST, R.A. et al. FENDL-3 Library Summary documentation. IAEA Report INDC(NDS)-0628 [online]. 2012 [cit. 2020-11-01]. Dostupné z: https://www.researchgate.net/publication/299347944_FENDL-3_ Library--Summary_documentation.
- [63] UWAMINO, Yoshitomo et al. High-energy p-Li neutron field for activation experiment. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 1997, 389(3), s. 463-473. DOI: 10.1016/S0168-9002(97)00345-8. ISSN 01689002.
- [64] TALYS [online]. [cit. 2020-03-10]. Dostupné z: https://tendl.web.psi.ch/ tendl_2019/talys.html.
- [65] KONING, A.J., S. HILAIRE a S. GORIELY. Global and local level density models. *Nuclear Physics A*. 2008, 810(1-4), s. 13-76. DOI: 10.1016/j.nuclphysa.2008.06.005. ISSN 03759474.
- [66] VRZALOVÁ, J., O. SVOBODA, A. KRÁSA, A. KUGLER, M. MAJERLE, M. SUCHOPÁR a V. WAGNER. Studies of (n,xn) cross-sections in Al, Au, Bi, Cu, Fe, I, In, Mg, Ni, Ta, Y, and Zn by the activation method. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment.* 2013, **726**, s. 84-90. DOI: 10.1016/j.nima.2013.05.133. ISSN 01689002.
- [67] VEESER, L. R. et al. Cross sections for (n,2n) and (n,3n) reactions above 14 MeV. *Physical Review C.* 1977, **16**(5), s. 1792-1802. DOI: 10.1103/Phys-RevC.16.1792. ISSN 0556-2813.
- [68] GOODEN, M. E. et al. Measurement of the Bi 209 (n,4n) Bi 206 and Tm 169 (n,3n) Tm 167 cross sections between 23.5 and 30.5 MeV relevant to reaction-in-flight neutron studies at the National Ignition Facility. *Physical Review C.* 2017, 96(2), s. 024622. DOI: 10.1103/PhysRevC.96.024622. ISSN 2469-9985.
- [69] UNO, Y. et al. Measurements of activation cross sections for the neutron dosimetry at an energy range from 17.5 to 30 MeV by using the 7Li(p,n) quasimono-energetic neutron source. 9.Internat.Symposium on Reactor Dosimetry, Prague. 1996, s. 465.
- [70] BAYHURST, B. P., J. S. GILMORE, R. J. PRESTWOOD, J. B. WILHELMY, Nelson JARMIE, B. H. ERKKILA a R. A. HARDEKOPF. Cross sections for (n,xn) reactions between 7.5 and 28 MeV. *Physical Review C.* 1975, **12**(2), s. 451-467. DOI: 10.1103/PhysRevC.12.451. ISSN 0556-2813.

- [71] UWAMINO, Yoshitomo et al. Measurement of Neutron Activation Cross Sections of Energy up to 40 MeV Using Semimonoenergetic p-Be Neutrons. *Nuclear Science and Engineering*. 1992, **111**(4), s. 391-403. DOI: 10.13182/NSE111-391. ISSN 0029-5639.
- [72] WAGNER, V, M SUCHOPÁR, J VRZALOVÁ, et al. Cross-section studies of important neutron and relativistic deuteron reactions. *Journal of Physics: Conference Series.* 2014, **533**. DOI: 10.1088/1742-6596/533/1/012052. ISSN 1742-6588.
- [73] WELCH, P. et al. Neutron Activation Cross Section on 12C and Pb with 20-26 MeV Monoenergetic Neutrons. Bulletin of the American Physical Society. 1981, 26, s. 708. NSR:1981WEZZ.
- [74] FESSLER, A. et al. Neutron Activation Cross-Section Measurements from 16 to 20 MeV for Isotopes of F, Na, Mg, Al, Si, P, Cl, Ti, V, Mn, Fe, Nb, Sn, and Ba. *Nuclear Science and Engineering.* 2000, **134**(2), s. 171-200. DOI: 10.13182/NSE99-14. ISSN 0029-5639.
- [75] GABBARD, F. a B. D. KERN. Cross Sections for Charged Particle Reactions Induced in Medium Weight Nuclei by Neutrons in the Energy Range 12-18 MeV. *Physical Review.* 1962, **128**(3), s. 1276-1281. ISSN 0031-899X. DOI:10.1103/PhysRev.128.1276.
- [76] BUTLER, J. P. a D. C. SANTRY. Excitation curves for the reactions Al-27(n,α)Na-24 and Mg-24(n,p)Na-24. Canadian Journal of Physics. 1963, 41(2), s. 372-383. DOI: 10.1139/p63-039. ISSN 0008-4204.
- [77] BORMANN, M. et al. Some excitation functions of neutron induced reactions in the energy range 12.6–19.6 MeV. *Nuclear Physics*. 1965, 63(3), s. 438-448. ISSN 00295582. DOI:10.1016/0029-5582(65)90474-8.
- [78] SIMECKOVA, E., P. BEM, V. BURJAN, et al. The Measurement of Neutron Activation Cross Section of ⁵⁹Co Below 36 MeV. Journal of the Korean Physical Society. 2011, 59(2(3), s. 1801-1804. ISSN 0374-4884. DOI:10.3938/jkps.59.1801.
- [79] GHORAI, S.K., J.E. GAISER a W.L. ALFORD. The (n, 2n) isomeric cross section ratios and the (n, 2n) and (n, α) excitation functions for ⁵⁹Co. Annals of Nuclear Energy. 1980, 7(1), s. 41-46. ISSN 03064549. DOI:10.1016/0306-4549(80)90005-5.
- [80] SEMKOVA, V., V. AVRIGEANU, T. GLODARIU, A.J. KONING, A.J.M. PLOMPEN, D.L. SMITH a S. SUDÁR. A systematic investigation of reaction cross sections and isomer ratios for neutrons up to 20 MeV on Ni isotopes and ⁵⁹Co by measurements with the activation technique and new model studies

of the underlying reaction mechanisms. *Nuclear Physics A.* 2004, 730(3-4), s. 255-284. ISSN 03759474. DOI:10.1016/j.nuclphysa.2003.11.005.

- [81] JERONYMO, J.M.F., G.S. MANI, J. OLKOWSKY, A. SADEGHI a C.F. WIL-LIAMSON. Absolute cross-sections for some (n, p), (n, α) and (n, 2n) reactions. *Nuclear Physics.* 1963, **47**, s. 157-176. ISSN 00295582. DOI: doi:10.1016/0029-5582(63)90862-9.
- [82] LISKIEN, H. a A. PAULSEN. Cross-section measurement for the threshold reactions ⁵⁶Fe(n, p)⁵⁶Mn, ⁵⁹Co(n, α)⁵⁶Mn and ⁶³Cu(n, 2n)⁶²Cu between 12.6 and 19.6 MeV neutron energy. Journal of Nuclear Energy. Parts A/B. Reactor Science and Technology. 1965, 19(2), 73-80. ISSN 03683230. DOI:10.1016/0368-3230(65)90038-8.
- [83] MENLOVE, H. O. et al. Activation Cross Sections for the ${}^{19}F(n, 2n){}^{18}F$, ${}^{23}Na(n, 2n){}^{1149}In$, ${}^{165}Ho(n, 2n){}^{164}Ho$ and ${}^{27}Al(n, \alpha){}^{24}Na$ reactions. *Physical Review.* 1967, **163**(4), s. 1308-1314. ISSN 0031-899X. DOI:10.1103/PhysRev.163.1308.
- [84] PICARD, J. a C.F. WILLIAMSON. The (n, p), (n, α), and (n, 2n) cross sections for ¹⁹F and ²³Na between 13 and 21 MeV. *Nuclear Physics*. 1965, **63**(4), s. 673-684. ISSN 00295582. DOI:10.1016/0029-5582(65)90754-6.
- [85] LISKIEN, H. a A. PAULSEN. Cross-sections for the reactions ${}^{63}Cu(n, \alpha){}^{60}Co$, ${}^{60}Ni(n, p){}^{60}Co$, ${}^{46}Ti(n, p){}^{46}Sc$ and ${}^{23}Na(n, 2n){}^{22}Na$. Nuclear Physics. 1965, **63**(3), s. 393-400. ISSN 00295582. DOI:10.1016/0029-5582(65)90471-2.
- [86] ZHIZHENG, Xu et al. The (n,2n) cross section for ²³Na between 13.3-18.5 MeV. Nuclear Science and Techniques (Shangai). 1991, 2(3), s. 153.
- [87] HARTMANN, C. L. a P. M. DELUCA. Measurement of the ¹⁹F(n, 2n)¹⁸F Cross Section from 18 to 27 MeV. *Nuclear Science and Engineering*. 2017, **109**(3), s. 319-323. ISSN 0029-5639. DOI:10.13182/NSE91-A23856.
- [88] RYVES, T. B., P. KOLKOWSKI a K. J. ZIEBA. Cross Section Measurements of ${}^{14}N(n, 2n){}^{13}N$, ${}^{19}F(n, 2n){}^{18}F$, ${}^{54}Fe(n, 2n){}^{53}Fe$, ${}^{27}Al(n, p){}^{27}Mg$ and ${}^{27}Al(n, \alpha){}^{24}Na$ between 14.7 and 19.0 MeV. Journal of Physics G: Nuclear Physics. 1978, 4(11), s. 1783-1792. ISSN 0305-4616. DOI:10.1088/0305-4616/4/11/010.