ČESKÉ VYSOKÉ UČENÍ TECHNICKÉ V PRAZE

Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská

Katedra jaderné chemie

Obor: Jaderná chemie



Excitační funkce reakcí ^{nat}Mo(α,x) se zaměřením na isotopy Mo a Tc

Diplomová práce

Vypracovala: Bc. Marie Balková Vedoucí práce: Ing. Jaroslav Červenák, Ph.D. Rok: 2023/2024





I. OSOBNÍ A STUDIJNÍ ÚDAJE

Příjmení:	Balkova	Jméno: Marie	Osobní číslo: 473973
Fakulta/ústav:	Fakulta	jaderná a fyzikálně inženýrská	
Zadávající katec	lra/ústav:	Katedra jaderné chemie	
Studijní program	: Jaderná	chemie	

á ,

E K DIPLOMOVE PRACI				
liplomové práce:				
ční funkce reakcí natMo(α,x) se z	aměřením na isoto	ру Мо а Тс		
liplomové práce anglicky:				
tion functions of reactions natMo	o(α,x) with focus or	the isotopoes	s of Mo and Tc	
pro vypracování:				
– duben: Rešerše jaderných dat pro Rl vzku alfa částic; metody monitoringu en ren EXFOR a TENDL, příprava radionu il funkce těžkých nabitých částic a výtě – červen: Příprava terče, jeho ozařovár jen: Vyhodnocovaní dat, korekce interfú 2: Porovnávání získaných dat s již publ c: Sepisování práce	V vznikající při ozařova ergie a proudu svazku klidů s využitím v nukl žky radionuklidů v tlus ní, měření gama spekt srencí ikovanými daty a daty	ání natMo(α,x), m nabitých částic, r eární medicíně, c tém terči er teoretických před	odelování terče a energetic) monitorovací reakce; získáva :yklotronová příprava radion povědí	vých ání dat uklidů,
doporučené literatury:				
Imanne, A.V. Ignatyuk, R. Capote, B.V., O. Lebeda, A. Luca, Y. Nagai, H. Naik- illi, Reference Cross Sections for Chart -382, 2018. https://doi.org/10.1016/j.ndt .TEC-DOC-1211: Charged particles cro- ostupné online na: <http: www-nds.iae<br="">Koning, D. Rochman, S.C. van der Marc Ksson, O. Cabellos, S. Goriely, J. Leppa Dostupné online na <http: www.talys.eu<br="">itychenko, A. Sonzogni, Q-value calcul: www.nndc.bnl.gov/qcalc>. Ciegler, M.D. Ziegler, J.P. Biersack: SRI</http:></http:>	⁴ Carlson, J.W. Engle, ⁵ , A.L. Nichols, F.M. Nig ged-particle Monitor R s.2018.02.009 pss-sections database a.org/medical>. ck, J. Kopecky, J.Ch. S anen, H. Leeb, A. Plon //tendi-2019>. ator, NNDC, Brookhav M2010 Code. Dostupr	M.A. Kellett, T. K ortier, S.V. Suryan leactions. Nuclear for medical radio bublet, S. Pomp, F ipen, R. Mills, TAL en National Labou é online na: <http< td=""><td>ibedi, G. Kim, F.G. Kondev, narayana, S. Takács, F. Tárk r Data Sheets 148 (special is isotope production. IAEA, Vi H. Sjostrand, R. Forrest, E. B LYS-based evaluated nuclea ratory. Dostupné online na p://www.srim.org/>.</td><td>M. ányi, ssue), ienna, auge, r data</td></http<>	ibedi, G. Kim, F.G. Kondev, narayana, S. Takács, F. Tárk r Data Sheets 148 (special is isotope production. IAEA, Vi H. Sjostrand, R. Forrest, E. B LYS-based evaluated nuclea ratory. Dostupné online na p://www.srim.org/>.	M. ányi, ssue), ienna, auge, r data
pracoviště vedoucí(ho) diplomové	práce:			
oslav Červenák, Ph.D. ÚJF AV	ČR, Řež			
pracoviště druhé(ho) vedoucí(ho)	nebo konzultanta(ky) diplomové prá	ice:	
zadání diplomové práce: 15.03.20 t zadání diplomové práce: 15.03.2	23 Termín	odevzdání diplo	omové práce: 05.01.2024	4
20me	the		1. P	L
roslav Červenák, Ph.D. odpis vedoučí(ho) práce	podpis vedoucí(ho) ústavu/kate	dry	doc. Ing. Václav Čuba, Ph podpis dēkana(ky)	.D.
zadání diplomové práce: 15.03.2	025 podpis vedouci(ho) ůstavu/kate	dry	doc. Ing. Václav Čuba, Pr podpis děkana(ky)	1

CVUT-CZ-ZDP-2015.1

Strana 1 z 2 © ČVUT v Praze, Design: ČVUT v Praze, VIC

III. PŘEVZETÍ ZADÁNÍ

Diplomantka bere na vědomi, že je povinna vypracovat diplomovou j Seznam použité literatury, jiných pramenů a jmen konzultantů je třeb	oráci samostatně, bez cizi pomoci, s výjimkou poskytnutých konzultací. a uvést v diplomové práci.
31 3 2023	Bulloca Martic
Datum převzetí zadání	Podpis studentky

e

Poděkování

Ráda bych poděkovala všem, díky nimž mohla tato práce vzniknout. V první řadě bych chtěla poděkovat svému školiteli Ing. Jaroslavu Červenákovi, Ph.D., který mi byl trpělivým průvodcem nejen ve světě excitačních funkcí, ale také v oblasti nukleární medicíny.

Děkuji také prof. Ing. Ondřeji Lebedovi, Ph.D. za jeho cenné rady a pomoc při vyhodnocování naměřených dat. Velké díky patří celému oddělení urychlovačů - Ústavu jaderné fyziky AV ČR, zejména operátorům cyklotronu U - 120M, kteří zajišťovali ozařování terčů.

Rovněž bych chtěla poděkovat Markétě Kleinové za zasvěcení do práce s živými buňkami v biologické laboratoři, Antonu Cvíčelovi za pomoc s měřením dat a Lucce za neutuchající zdroj motivace. V neposlední řadě chci poděkovat své rodině, která mě po celou dobu studia bezmezně podporovala.

Prohlášení

Prohlašuji, že jsem diplomovou práci vypracovala samostatně pod odborným vedením Ing. Jaroslava Červenáka, Ph.D. a veškeré použité zdroje jsem řádně uvedla v seznamu literatury.

V Praze dne 5. 1. 2024

Balkera Marie

Název práce:

Excitační funkce reakcí ^{nat}Mo(α,x) se zaměřením na isotopy Mo a Tc

Autorka:	Bc. Marie Balková
Obor:	Jaderná chemie
Druh práce:	Diplomová práce
Vedoucí práce:	Ing. Jaroslav Červenák, Ph.D.
	Ústav jaderné fyziky AV ČR, v.v.i.
	Oddělení radiofarmak

Radioizotopy technecia a molybdenu mají mnoho průmyslových Abstrakt: aplikací. Technecium – 99m hraje významnou roli také v lékařském využití. Standardní způsob výroby těchto radioizotopů probíhá ve výzkumných reaktorech štěpením uranu. Příprava pomocí urychlených alfa částic není rutině využívána a publikovaných experimentálních poznatků o tomto způsobu výroby je málo. Práce se zaměřila na měření účinných průřezů jaderných reakcí, které byly indukovány alfa částicemi na přírodním molybdenu. Jako produkt těchto reakcí mohou být krom zmíněného molybdenu a technecia, také radioizotopy zirkonia nebo niobu, na které se tato práce již nesoustředila. Experiment byl proveden na cyklotronu U-120M, který sídlí v areálu ÚJF Řež. Vyhodnoceny byly excitační funkce ^{nat}Mo(α ,x)^{93m}Mo, ^{nat}Mo(α ,x)⁹⁹Mo, ^{nat}Mo(α ,x)¹⁰¹Tc, ^{nat}Mo(α, x)^{99m}Tc, ^{nat}Mo(α, x)^{96g}Tc, ^{nat}Mo(α, x)^{95m}Tc, ^{nat}Mo(α, x)^{94g}Tc, ^{nat}Mo(α ,x)^{93g}Tc do energie alfa částic 40 MeV. Měření probíhalo pomocí sendvičové metody. Naměřené hodnoty byly porovnány s již publikovanými daty a teoretickým modelem TALYS-2023. Fyzikální výtěžky byly vypočteny na základě naměřených excitačních funkcí.

Kličová slova: účinné průřezy, excitační funkce, molybden, technecium, alfa částice

Title:

Excitation functions of reactions ${}^{nat}Mo(\alpha,x)$ with focus on the isotopes of Mo and Tc

Author:	Bc. Marie Balková
Branch:	Nuclear chemistry
Type of thesis:	Master's thesis
Supervisor:	Ing. Jaroslav Červenák, Ph.D.
	Nuclear Physics Institute of the CAS
	Department of Radiopharmaceuticals
Abstract:	Radioisotopes of technetium and molybdenum have many industrial applications. Technetium-99m also plays an important role in the medical applications. The standard method of production of these radioisotopes is by nuclear fission of uranium in nuclear research reactors. Production of these radioisotopes with alpha particles is not routinely used and there are not a lot of published experiments of this production method. This thesis is focused on cross section measurement of alpha-particle-induced reactions on natural molybdenum. In addition to the molybdenum and technetium mentioned above, radioisotopes of zirconium or niobium may be the product of these reactions, which are no longer the focus of this thesis. The experiment was carried out on the cyclotron U-120M, which is located in ÚJF Řež. In this thesis excitation functions of $^{nat}Mo(\alpha,x)^{93m}Mo$, $^{nat}Mo(\alpha,x)^{99}Mo$, $^{nat}Mo(\alpha,x)^{101}Tc$, $^{nat}Mo(\alpha,x)^{99m}Tc$, $^{nat}Mo(\alpha,x)^{96g}Tc$, $^{nat}Mo(\alpha,x)^{92g}Tc$ were evaluated up to the alpha particle energy of 40 MeV. The measurements were performed using the stacked foil method. The measured values were compared with previously published data and the theoretical model TALYS-2023. Physical yields were calculated based on the measured excitation functions.
Keywords:	cross-sections, excitation functions, molybdenum, technetium, alpha

eyworas.

cross-sections, excitation functions, molybdenum, technetium, alpha particles

Obsah

1		Úvo	od		.10
2		Teo	rie ja	derných reakcí nabitých částic	.12
	2	.1	Rea	kční mechanismus jaderných reakcí	.12
		2.1.	.1	Reakce přímé	.12
		2.1.	.2	Reakce nepřímá	.13
		2.1.	.3	Strhávání a nabírání nukleonů	.13
	2	.2	Ene	rgie jaderných reakcí	.14
	2	.3	Pral	nová energie jaderných reakcí	.15
	2	.4	Úči	nný průřez a excitační funkce	.16
3		Výz	znam	né izotopy produkované reakcí ^{nat} Mo(α,x)	.18
	3	.1	Mo	ybden	.18
		3.1.	.1	Molybden – 93m	.19
		3.1.	.2	Molybden – 99	.19
	3	.2	Tec	hnecium	.20
		3.2.	.1	Technecium – 94	.20
		3.2. 3.2.	.1 .2	Technecium – 94 Technecium – 95 a technecium – 96	.20 .20
		3.2.3.2.3.2.	.1 .2 .3	Technecium – 94 Technecium – 95 a technecium – 96 Technecium – 99m	.20 .20 .21
		3.2.3.2.3.2.3.2.	.1 .2 .3 .4	Technecium – 94 Technecium – 95 a technecium – 96 Technecium – 99m Technecium – 101	.20 .20 .21 .22
E	X	3.2. 3.2. 3.2. 3.2. PER	.1 .2 .3 .4 IMEI	Technecium – 94 Technecium – 95 a technecium – 96 Technecium – 99m Technecium – 101 NTÁLNÍ ČÁST	.20 .20 .21 .22 .24
E 4	X	3.2. 3.2. 3.2. 3.2. PER Přís	.1 .2 .3 .4 IMEI stroje	Technecium – 94 Technecium – 95 a technecium – 96 Technecium – 99m Technecium – 101 NTÁLNÍ ČÁST a použité experimentální techniky	.20 .20 .21 .22 .24
E 4	2XI 4	3.2. 3.2. 3.2. 3.2. 9ER Přís .1	.1 .2 .3 .4 IMEI stroje Ury	Technecium – 94 Technecium – 95 a technecium – 96 Technecium – 99m Technecium – 101 NTÁLNÍ ČÁST a použité experimentální techniky chlovače částic	.20 .20 .21 .22 .24 .24
E 4	2X1 4	3.2. 3.2. 3.2. 3.2. PER Přís .1 4.1.	.1 .2 .3 .4 IMEI stroje Ury .1	Technecium – 94 Technecium – 95 a technecium – 96 Technecium – 99m Technecium – 101 NTÁLNÍ ČÁST a použité experimentální techniky chlovače částic Cyklotron	.20 .20 .21 .22 .24 .24 .24
E 4	2X] 4	3.2. 3.2. 3.2. 3.2. PER Přís .1 4.1. .2	.1 .2 .3 .4 IMEI stroje Ury .1 Terd	Technecium – 94 Technecium – 95 a technecium – 96 Technecium – 99m Technecium – 101 NTÁLNÍ ČÁST a použité experimentální techniky chlovače částic Cyklotron é a terčová technika	.20 .20 .21 .22 .24 .24 .24 .24 .24
E 4	2XI 4 4	3.2. 3.2. 3.2. 3.2. PER Přís .1 4.1. .2 .4	.1 .2 .3 .4 IMEI stroje Ury .1 Terd Měi	Technecium – 94 Technecium – 95 a technecium – 96 Technecium – 99m Technecium – 101 NTÁLNÍ ČÁST a použité experimentální techniky chlovače částic Cyklotron é a terčová technika	.20 .20 .21 .22 .24 .24 .24 .24 .25 .27
E 4	2XI 4 4 4 4	3.2. 3.2. 3.2. 3.2. PER Přís .1 4.1. .2 .4 .5	.1 .2 .3 .4 IMEI stroje Ury .1 Terd Měi Výp	Technecium – 94 Technecium – 95 a technecium – 96 Technecium – 99m Technecium – 101 NTÁLNÍ ČÁST a použité experimentální techniky chlovače částic Cyklotron é a terčová technika počet účinného průřezu	.20 .20 .21 .22 .24 .24 .24 .24 .24 .25 .27 .28

	4.6.1	Výpočet výtěžků radionuklidů v tenkých terčích
	4.6.2	Výpočet výtěžků radionuklidů v tlustých terčích
5	Výsledk	y
5	.1 Exc	itační funkce izotopů molybdenu34
	5.1.1	93m Mo (T _{1/2} = 6,85 h)
	5.1.2	⁹⁹ Mo ($T_{1/2} = 65,94$ h)
5	.2 Exc	itační funkce izotopů technecia
	5.2.1	101 Tc (T _{1/2} = 14,02 min)
	5.2.2	99m Tc (T _{1/2} = 6,0067 h)
	5.2.3	96g Tc (T _{1/2} = 4,28 dne)
	5.2.4	95m Tc (T1/2 = 61 dnů)
	5.2.5	94g Tc (T _{1/2} = 293 min)
	5.2.6	93g Tc (T _{1/2} = 2,75 h)
5	.3 Fyz	ikální výtěžky42
6	Závěr	
7	Seznam	obrázků47
8	Seznam	tabulek48
9	Seznam	použitých zkratek49
10	Litera	tura50

1 Úvod

Znalost excitačních funkcí jaderných reakcí je důležitá z mnoha důvodů. Jedním z nich je nezbytnost při přípravě radionuklidů. Znalost excitačních funkcí napomáhá ke správné volbě ozařovacích podmínek při přípravě radionuklidů na urychlovačích částic. Radionuklidy mají široké uplatnění v různých oblastech, a jedním z nich je také nukleární medicína. Už od objevu radioaktivity nachází radionuklidy své místo v tomto odvětví. První pokusy o využití radioaktivity v medicíně se datují již na počátku 20. století, kdy došlo k léčbě kožních defektů po tuberkulóze pomocí radiového zdroje [1].

V současné době se v nukleární medicíně využívá široká škála radioaktivních prvků pro diagnostické, terapeutické a teranostické účely. Jedním z nejčastěji používaným diagnostickým radionuklidem je ^{99m}Tc, především díky jeho všestrannému využití a jednoduché přípravě pomocí radionuklidového generátoru. Před deseti lety došlo k celosvětovému výpadku produkce ⁹⁹Mo, klíčového radionuklidu pro výrobu výše zmíněného generátoru. Molybden – 99 byl tehdy vyráběn pouze ve výzkumných jaderných reaktorech, a jejichž počet je omezený. V tomto období došlo k přerušení dodávky od dvou hlavních producentů ⁹⁹Mo, Kanady a Nizozemí, což vedlo k celosvětovému nedostatku tohoto radionuklidu. Díky molybdenové krizi začala vědecká společnost zkoumat alternativní metody pro získávání mateřského radionuklidu ⁹⁹Mo a také možnosti přímé přípravy ^{99m}Tc. Jako jednou z vhodných metod se jeví příprava na cyklotronech.

Technecium – 99 bylo jedním z prvních radionuklidů, který se začal využívat v rutinní praxi, což vedlo k důkladnému prozkoumání jeho fyzikálních, chemických a biologických vlastností Tato znalost poskytuje základ pro případné využití i jiných izotopů technecia v lékařství např. ^{94m}Tc. Radionuklidy se rovněž uplatňují v analýze stopových množství prvků (^{95m}Tc), při studiu homogenizačních procesů a při zkoumání koroze a povrchového poškození kovů, kde v důsledku ozáření vzniká tenká vrstva radioaktivního izotopu uvnitř zkoumaného povrchu. Vzniklý izotop se řídí zákonem přeměny a rozpadá se exponenciální závislosti. V případě, kdy má zkoumaný povrch jinou tloušťku, dochází k odchylkám od tohoto trendu.

Experimentální stanovení excitačních funkcí na přírodním molybdenu indukovaných alfa částicemi bylo dosud provedeno pouze ve dvou případech. Zisk nově získaných dat může přispět ke zpřesnění teoretických predikčních kódů.

Hlavním cílem této práce je změření excitačních funkcí jaderných reakcí vyvolaných alfa částicemi na přírodním molybdenu na cyklotronu U-120M, který je součástí Ústavu jaderné fyziky Akademie věd České republiky, v. v. i.

2 Teorie jaderných reakcí nabitých částic

V roce 1919 britský fyzik Ernest Rutherford, původem z Nového Zélandu, poprvé pozoroval jadernou reakci. Povedlo se mu ozařováním dusíku alfa částicemi vytvořit kyslík (2.1.1). Alfa částice získal z radioaktivního rozpadu ²¹⁴Po.

$${}^{14}_{7}\text{N} + {}^{4}_{2}\text{He} \rightarrow {}^{17}_{8}\text{O} + {}^{1}_{1}\text{H}$$
 (2.1.1)

Patrick Blackett se na Rutherfordův návrh začal touto reakcí zabývat a na snímcích z mlžných komor odhalil, že některé alfa částice byly absorbovány jádry dusíku. V jádrech dusíku se nahromadila přebytečné energii, která vedla ke vzniku atomu kyslíku a jádra vodíku. Rutherford a jeho tým poprvé v dějinách provedli umělou jadernou reakci, přičemž Blackett později odhalil její reakční mechanismus. Nyní je již známo, že emitované vodíkové jádro byla ve skutečnosti elementární částice – proton [2].

Studium jaderných reakcí je důležité z mnoha důvodů. Pomáhá získat informace o nových izotopech i nových elementárních částicích. Jaderné reakce mohou být klasifikovány podle typu střely, energie střely nebo terčového materiálu. První rozdělení podle typu střely rozlišuje neutrální částice (neutrony), lehké nabité částice (elektrony, pozitrony), těžké nabité částice (protony, alfa částice). Jaderné reakce mohou probíhat třemi typy mechanismů, přímou reakcí, reakcí přes složené jádro strháváním/nabíráním nukleonů. Obecnou jadernou reakci, lze zapsat následovně

$$X + x \to y + Y \tag{2.1.2},$$

kde X zastupuje terčové jádro, x je jaderná střela, produktem je transmutované jádro Y a emitovaná částice y.

2.1 Reakční mechanismus jaderných reakcí

Srážky dvou částic, terčového jádra a jaderné střely, se řídí zákonem zachování celkové energie a hybnosti. Mezi tyto srážky můžeme zařadit např. pružný a nepružný rozptyl. Reakce, které využívají takových-to principů nevedou ke vzniku nového výsledného jádra, ačkoli nepružný rozptyl může vést ke vzniku izomeru stabilního jádra. Jaderné reakce mohou zahrnovat tři typy mechanismů, reakce přímé, nepřímé a reakce strhávácí/nabírací.

2.1.1 Reakce přímé

Přímé reakce mají velmi rychlý průběh srovnatelný s dobou průletu dopadající částice skrz jádro ($\sim 10^{-21}$ s). Po průniku jaderné střely do jádra dochází ke srážce s několika málo nukleony, které uvede do vyššího energetického stavu nebo je uvolní z vazby v poli jaderných sil. Sama

částice může v jádře zůstat nebo jej opustit. Sekundární částice nejsou emitovány izotropně, ale "dopředu" ve směru nalétávající částice. Energie sekundárně emitovaných částic se blíží energii střely, což má za důsledek, že terčové jádro je excitováno na malou energii [3].

2.1.2 Reakce nepřímá

Jaderné reakce s nízkou energií střely probíhají nepřímo přes složená jádra. Pravděpodobnost, že se střele s nízkou energií podaří uniknout z jádra je malá. Tento mechanismus dominuje u středně velkých a velkých terčových jader, kvůli dostatku prostoru pro další nukleon. Mechanismus lze rozdělit do dvou fází: v první fázi je jaderný projektil absorbován terčovým jádrem, ve kterém setrvává delší dobu (cca 10⁻¹⁴ -10⁻¹⁹ s) než u reakcí přímých. Energie, kterou předala střela jádru je rovnoměrně distribuovaná, samotná dopadající částice se stává nerozeznatelnou od ostatních nukleonů a tím vzniká složené jádro. Následně dochází ve druhé fázi k rozpadu složeného jádra za přítomnosti emise částic nebo gamma kvant. Niels Bohr popsal model složeného jádra poprvé v roce 1936. Schématicky lze tento mechanismus znázornit takto:

$$X + x \to C^* \to y + Y \tag{2.1.1},$$

kde meziprodukt jaderné reakce C* je označován za stav složeného jádra. Tento model předpokládá, že dopadající částice interaguje s nejbližšími nukleony v zasaženém jádře, zasaženému jádru předá svou energii a splyne s ním. Na povrchu složeného jádra vzniká jaderná oscilace, která se šíří mezi ostatní nukleony. V případě, kdy nějaká částice získá dostatečnou energii, dojde k její emisi. Důsledkem splynutí jaderné střely a terčového jádra nezáleží na tom, jak složené jádro vzniklo. Počet srážek mezi nukleony vede ke ztrátě informace o vzniku složeného jádra. Emise částic je téměř izotropní [3].

2.1.3 Strhávání a nabírání nukleonů

Většina jaderných reakcí probíhá dle výše zmíněných mechanismů, avšak existují i další mechanismy, jimiž mohou reakce proběhnout. V případě, kdy je energie střely dostatečně vysoká dochází k přímým reakcím, využití mechanismu složeného jádra nastává v situacích, kdy energie střely je nižší. Mezi těmito dvěma extrémy existuje oblast, která nese znaky obou těchto mechanismů, strhávací procesy. Obrázek 2.1.3.1 znázorňuje závislost mechanismu reakce na energii střely. Přerušovaná křivka zastupuje příspěvek mechanismu složeného jádra.



Obrázek 2.1.3.1: Typické energetické spektrum jednoduché jaderné reakce X(x,y)Y [4], původní obrázek byl pozměněn

Při strhávacích reakcích (*stripping reaction*), mohou nastat dva případy. V prvním případě dojde k oddělení jednoho nebo více nukleonů z jaderné střely. Nukleon se zachytí v jádře a zbytek střely pokračuje po obdobné trase jako byla dráha původního projektilu. Takovéto procesy lze pozorovat např. u reakcí (d,p), při kterých je z deuteronu odtržen neutron, který je zachycen terčovým jádrem a zbývající proton pokračuje v pohybu po trajektorii blízké původnímu deuteronu. Zmíněnému typu reakci se často přezdívá Phillips-Oppenheimerova reakce [3].

Opačným případem je reakce nabírací (*pick up reaction*), při níž dochází k nabírání nukleonů projektilem. Nabírací mechanismus lze pozorovat např. u reakcí (n,d) nebo (p,d), kdy neutron jako střela nalezne v terčovém jádru proton o vhodném momentu hybnosti, se kterým se spojí a terčové jádro opustí jako deuteron [3].

2.2 Energie jaderných reakcí

Jaderná reakce, obdobně jako chemická reakce, je proces, při kterém dochází ke změně energie. Energetické změny v jaderných reakcích jsou v porovnání s chemickými reakcemi mnohonásobně vyšší. Jednoduchou binukleární jadernou reakci můžeme zapsat jako $X + x \rightarrow$ Y + y, kde X je terčové jádro, x – jaderný projektil, Y lze označit jako transmutované jádro a y je emitovaná částice. Z energetického hlediska je potřeba tuto rovnici doplnit o energii dané reakce

$$X + x \rightarrow y + Y + Q \qquad (2.2.1),$$

kde Q je reakční energie. Stejně jako chemické reakce, tak i jaderné reakce lze dělit na endoergické a exoergické, avšak u jaderných reakcí platí opačná znaménková konvence. Jestliže Q je kladné, energie se z reakce uvolňuje a označuje se jako exoergická. Naopak pokud Q je záporné, proces vyžaduje dodání energie, což charakterizuje reakci endoergickou. Pokud nastane situace, kdy Q = 0, dochází k pružnému rozptylu. Ze zákona zachování energie pro jadernou reakci musí platit následující energetická bilance

$$\left[\left(E_y + m_y \cdot c^2 \right) + \left(E_Y + m_Y \cdot c^2 \right) \right] = \left[\left(E_X + m_X \cdot c^2 \right) + \left(E_x + m_X \cdot c^2 \right) \right]$$
(2.2.2),

kde E je kinetická energie jednotlivých částic a m jejich klidová hmotnost. Pro rozdíl kinetické energie produktů a reaktantů platí

$$Q = \left[\left(E_y + E_Y \right) - \left(E_x + E_X \right) \right] = \left[\left(m_y + m_Y \right) - \left(m_x + m_X \right) \right] \cdot c^2$$
(2.2.3).

Pro uskutečnění jaderné reakce nestačí, aby kinetická energie jaderné střely byla rovna Q. To proto, že ze zachování hybnosti vyplývá, že při jaderné reakci se spotřebovává pouze část kinetické energie projektilu, zatímco zbylá část se přeměňuje na kinetickou energii produktů. Je tedy žádoucí, aby kinetická energie střely byla vyšší než prahová energie dané reakce [5].

2.3 Prahová energie jaderných reakcí

Jak již bylo řečeno v předchozí kapitole, ze zákona zachování energie a hybnosti vyplývá, že jaderná střela může iniciovat endoergickou reakci pouze v případě, že disponuje dostatečnou kinetickou energii, která se nazývá energii prahovou, která je charakterizovaná následujícím vztahem:

$$E_{th} = -Q\left(1 + \frac{m_x}{m_x}\right) \tag{2.3.1},$$

kde Q je zabarvení reakce, m_x je hmotnost jaderné střely a m_x je hmotnost terčového jádra. Prahová energie nezávisí na náboje, tudíž pro všechny částice, jak nabité, tak také nenabité. Pokud by byl vztah 2.3.1. použit pro výpočet prahové energie exoergické reakce, výsledná hodnota by byla záporná. U těchto reakcí neexistuje práh reakce, k jejímu uskutečnění je zapotřebí pouze energie nutná k překonání energetických bariér terčového jádra pro nabité částice [3].

V případě nenabitých střel je nutné překonat pouze prahovou energii pro vznik jaderné reakce. Avšak u kladně nabitých střel dochází k jadernému odpuzování, a proto kromě prahové energie je také nutné překonat bariéru vytvořenou odpudivými jadernými silami. Tuto Coulombovskou bariéru lze charakterizovat následujícím vztahem:

$$E_C = \frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \cdot \frac{Z_X Z_X e^2}{r_X + r_X}$$
(2.3.2).

Náboj terčového jádra je vyjádřen jeho protonovým číslem vynásobeným elementárním nábojem ($Z_x e$), obdobným vztahem je charakterizována také střela ($Z_x e$). ε_0 je permitivita vakua a r_x resp. r_x je poloměr střely, respektive terčového jádra. Poloměr terčového jádra a střely lze vyjádřit také pomocí atomových čísel, kdy pro výšku Coulombovské bariéry lze odhadnout

$$E_C \simeq 1,648 \cdot 10^{-13} \cdot \frac{Z_X Z_X}{\sqrt[3]{A_X} + \sqrt[3]{A_X}}$$
 [J] (2.3.3),

kde A_x a A_x jsou atomová čísla střely a terčového jádra [3].

Střela může vyvolat jadernou reakci i v případě, když nemá dostatečnou energii k překonání Coulombovské energie, tento jev je velmi zřídkavý a nazývá se tunelovým efektem. Krom Coulombovské bariéry musí jádra překonat bariéru tvořenou odstředivými silami, kterou překonávají i nenabité střely. Pokud mezi střelou a terčovým jádrem nedojde ke kolmé srážce, část kinetické energie střely se spotřebuje na rotační energii, kterou udělí střela terčovému jádru [6].

2.4 Účinný průřez a excitační funkce

Účinný průřez je fyzikální veličina, která slouží k popisu pravděpodobnosti interakce mezi částicemi během nějakého procesu, jako je například jaderná reakce. Obrázek 2.4.1 znázorňuje schéma účinného průřezu, kdy jaderné projektily jsou aproximovány na hmotné body a terčová jádra na kruhové kotouče umístěné kolmo na dopadající směr toku částic. V případě, kdy projektil projde kruhovou plochou, dojde k reakci. Plocha kruhového kotouče je úměrná pravděpodobnosti reakce.



Obrázek 2.4.1: Schéma vyjádření účinného průřezu [3]

Jednotka účinného průřezu z předcházejících úvah odpovídá jednotce plochy, ale pro praktické účely se jednotka SI [m] nepoužívá, namísto toho je zavedena veličina barn (1 b = 10^{-28} m²). Účinný průřez jaderné reakce je charakterizován jak vlastnostmi terčového jádra, tak také druhem a energií střely. Nejvyšší účinné průřezy jsou pozorovány u bezprahových reakcí, které jsou indukované termálními neutrony. Účinné průřezy reakcí nabitých částic obvykle dosahují hodnot v desetinách až nižších jednotkách barnů. Závislost účinného průřezu na energii nalétávající částice se nazývá excitační funkce. Reakce s nabitými částicemi jsou prahové, což se odráží i v excitačních funkcích. V případě, že je energie střely nižší než výška energetické bariéry, reakční účinný průřez bude nulový [7].

Excitační funkce nacházejí svá uplatnění v mnoha oblastech, kterým vévodí jaderná fyzika a technologie. Studium těchto funkcí přispívá k lepšímu porozumění mechanismům jaderných reakcí, což umožňuje jejich následné modelování a vývoj teoretických kódů pro matematické výpočty. V jaderné energetice se znalosti účinných průřezů a excitačních funkcí využívá k předpovídání chování materiálů používaných při konstrukci jaderných elektráren. Excitační funkce jsou rovněž důležité pro pochopení procesů, které se odehrávají ve hvězdách, včetně tvorby nových prvků. Při výrobě radionuklidů je kladen důraz na to, aby bylo dosaženo co nejvyššího výtěžku s co nejmenším množstvím radionuklidových nečistot. Tato podmínka může být splněna pouze při zvolení optimálních parametrů ozařování, které záleží na chování excitačních funkcí připravovaných radionuklidů. V neposlední řadě se těchto znalosti využívá při vývoji nových detektorů záření.

3 Významné izotopy produkované reakcí ^{nat} $Mo(\alpha,x)$

3.1 Molybden

Ve středověku byla řada látek souhrnně označována slovem řeckého původu "*molybdos*" (= olovo). Termín molybdenit byl často užíván i v souvislosti s galenitem (PbS), jelikož docházelo k častým záměnám těchto rud. Na konci osmnáctého století, švédský chemik Carl Wilhelm Scheele chemicky dokázal, že molybdenit je ve skutečnosti sloučenina síry a nového, doposud neidentifikovaného prvku. Scheele provedl rozklad molybdenitu za přítomnosti kyseliny dusičné. Produktem této rekce byl bílý prášek oxidu molybdenového. V roce 1782 Peter Jacob Hjelm tento oxid zredukoval a získal tmavý kovový prášek, který pojmenoval molybden. Sloučeniny molybdenu jsou na Zemi vzácné, největší naleziště se nacházejí v USA a Číně [8].

Chemicky je molybden blízkým příbuzným wolframu, který během světových válek zastupoval ve zbrojním průmyslu. Obdobně jako wolfram má vysoký bod tání ($T_T = 2623 \text{ °C}$), což z něj činí vhodnou příměs k materiálům, ze kterých se konstruují tepelně odolné pece, reaktorové nádoby apod. Přírodní molybden je směsí sedmi izotopů, ze kterých pouze ¹⁰⁰Mo je radioaktivní ($T_{1/2} = 7,3 \cdot 10^{18}$ let). Procentuální zastoupení jednotlivých izotopů je uvedeno viz Tabulka 3.1.1. [8][9].

IZOTOP	ZASTOUPENÍ [%]
⁹² Mo	14,53 (30)
⁹⁴ Mo	9,15 (9)
⁹⁵ Mo	15,84 (11)
⁹⁶ Mo	16,67 (15)
⁹⁷ Mo	9,60 (14)
⁹⁸ Mo	24,39 (37)
¹⁰⁰ Mo	9,82 (31)

Tabulka 3.1.1: Zastoupení izotopů v přírodním molybdenu [10]

Molybden se nachází ve skupině přechodných kovů, pro kterou je typická široká škála oxidačních stavů, a teda ani on není výjimkou. Nejstabilnější oxidační stavy jsou +IV a +VI, následují +III a +V, mocenství -I, 0 a +II jsou spíše raritní záležitostí [11].

Díky svým pestrým fyzikálním a chemickým vlastnostem, nachází molybden své uplatnění v mnoha odvětvích. Využívá se v přípravě slitin, v leteckém průmyslu, při výrobě součástek do lékařských přístrojů, v elektronickém odvětí apod. V posledních letech se pozornost upírá také

k oxidu molybdenovému, který může sloužit jako trvalá antimikrobiální vrstva různých povrchů (kovů, polymerů). Z radioaktivních izotopů je nejdůležitější ⁹⁹Mo, který nachází své uplatnění především ve výrobě molybden-techneciových generátorů [12].

3.1.1 Molybden - 93m

Díky svým vlastnostem se ^{93m}Mo jeví jako vhodný kandidát pro využití v oblasti nukleární medicíny, s poločasem rozpadu $T_{1/2} = 6,85$ h a s vysokou intenzitou gamma linek ($E_{\gamma} = 263, 685$ a 1477 keV). Molybden – 93m téměř ze sta procent přechází izomerním přechodem na svůj základní stav, který má poločas rozpadu $T_{1/2} = 4 \cdot 10^3$ let. Ve srovnání s ⁹⁹Mo by měl být ^{93m}Mo vhodnější pro použití *in vivo*, protože má přibližně desetkrát kratší poločas rozpadu. Jako další nevýhoda ⁹⁹Mo se jeví dceřiné ^{99m}Tc, které by přispívalo k celkové radiační zátěži pacienta [13].

Původ prvků těžších než železo v extrémních astrofyzikálních podmínkách představuje jednu z klíčových otázek moderní fyziky. Izotop ^{93m}Mo by mohl sloužit k objasnění vzniku stabilního ⁹²Mo, který má mimo jiné vznikat také syntézou protonů nebo prostřednictvím reakce (γ, n) v supernovách. Pro objasnění produkce ⁹²Mo ve vesmíru je důležitá standardizace výroby ^{93m}Mo a následné studium reakce ⁹³Mo(γ, n)⁹²Mo [14].

3.1.2 Molybden - 99

I přes svůj nevyhovující poločas rozpadu ($T_{1/2} = 65,92$ h) pro přímé medicinální využití, hraje molybden – 99 klíčovou roli v oblasti nukleární medicíny. Jeho dceřiný radionuklid, technecium – 99m, je v současné době nejčastěji využívaným diagnostickým radionuklidem, a to především díky jeho jednoduché přípravě právě pomocí radionuklidového generátoru, kde ⁹⁹Mo slouží jako mateřský radionuklid. Výroba molybdenu – 99 probíhá štěpení ²³⁵U ve výzkumných reaktorech, kterých je na světě pouze několik a jejich životnost je omezená. S postupným snižováním procenta obohacení jaderného paliva pro záruky jaderné bezpečnosti se také ztěžuje výroba mateřského molybdenu z vysoce obohaceného uranu. Většina výzkumných reaktorů přechází na nízko obohacené uranové palivo, avšak výstavba potřebného množství nových výzkumných reaktorů je v nedohlednu. Z tohoto důvodu je klíčové hledat alternativní výrobní metody pro tento izotop molybdenu. Jako perspektivní výrobní cesta se jeví příprava na urychlovačích nabitých částic, což by mělo pokrýt současnou poptávku po molybdenu – 99 [15][16].

3.2 Technecium

Prvek s protonovým číslem 43 byl předpověděn již Mendělejevem, tvůrcem periodické soustavy prvků. Následný objev byl doprovázen mnohými falešnými pokusy, kdy skutečnými objeviteli se stali až italští vědci Perrier a Segrè, kteří v roce 1937 provedli separaci ^{95m}Tc a ^{97m}Tc z molybdenového terče dlouhodobě ozařovaného deuterony. Vzápětí, po přípravě neznámého prvku, byl navržen název technecium, avšak tento název byl přijat až o dvanáct let později. Mezi tímto obdobím byl označován jako "prvek 43" [17].

Technecium má v současné době známo 35 izotopů (v rozmezí atomových hmotností A = 85-120). Žádný z izotopů není stabilní, což z něj činí nejlehčí radioaktivní prvek. V přírodě je technecium k nalezení v ultrastopových množstvích. Technecium vzniká jako produkt spontánního štěpení ²³⁸U a štěpením uranu v rudách indukovaným záchytem neutronů kosmického záření. Převažující zdroj technecia je antropogenního původu [17][18].

Navzdory svým rozmanitým vlastnostem jako je především bohatá koordinační chemie, odolnost vůči korozi a supravodivost, nezískal velké uplatnění. Příčinou je zejména jeho radioaktivita, která komplikuje manipulaci. Největší využití mají izotopy s kratším poločasem rozpadu (^{94m,g}Tc, ^{95m,g}Tc, ^{96m,g}Tc, ^{99m}Tc a ¹⁰¹Tc).

3.2.1 Technecium - 94

Pro pozitronovou emisní tomografii (PET) jsou nezbytné radionuklidy, které emitují pozitrony. Mezi neutron-deficitní izotopy technecia, které podléhají β^+ přeměně, patří pouze čtyři - ⁹²Tc, ^{93g}Tc, ^{94m}Tc a ^{94g}Tc. Z těchto izotopů má ⁹²Tc (T_{1/2} = 4,25 min) příliš krátký poločas rozpadu, zatímco ^{93g}Tc (T_{1/2} = 2,75 h, E = 348 keV, I = 10,93 %) a ^{94g}Tc (T_{1/2} = 4,89 h, E = 358 keV, I = 10,5 %) disponují nízkou pravděpodobností emisí částice β^+ . Jako jediný vhodný izotop technecia pro PET zobrazení se jeví ^{94m}Tc (T_{1/2} = 52 min, E = 1094,2 keV, I = 67,6 %), i přes doprovodné záření gamma s vysokou intenzitou. Ve většině dosavadních studiích se využívalo ^{94m}Tc separované z ozářeného terče přírodního molybdenu, tudíž nebylo v potřebné radionuklidové čistotě. I přes některé nedostatky jako je krátký poločas rozpadu a doprovodné záření gamma, může být tento izotop potenciálně velmi zajímavý pro výzkum v oblasti PET zobrazování [9][19].

3.2.2 Technecium - 95 a technecium - 96

Zpřísňující se legislativa ohledně výroby ⁹⁹Mo, který slouží jako prekurzor ^{99m}Tc ($T_{1/2} = 6,0067$ hod, 141 keV) a krátký poločas zmíněného izotopu technecia, jenž by mohl komplikovat dopravu na oddělení nukleární medicíny, vede ke zvýšenému zájmu o jiné izotopy

jako například ^{95g}Tc (T_{1/2}=20 h) nebo ^{96g}Tc (T_{1/2}=4,3 dne), které mají dostatečně dlouhé poločasy rozpadu, aby byly včas dopraveny na pracoviště nukleární medicíny. Nicméně, jejich vyšší energie gamma linek mohou být nevýhodou při použití běžných SPECT kamer, jejichž detektorem jsou většinou scintilační krystaly. Nejvyšší účinnost detekce NaI(Tl) se pohybuje okolo 120-150 keV. Využití vyšší energie zejména izotopu ^{96g}Tc (rozmezí od 700 do 900 keV), by mohlo posloužit ke zkoumání hlouběji uložených lézí. Pro detekci gamma paprsků s vyšší energií by mohly být využívány např. Comptonovské kamery, díky kterým lze odhadnout dráhu původního fotonu, který z ní byl vychýlen nepružnou srážkou s elektrony tkáně, a tudíž určit místo akumulace daného radiofarmaka [20][21].

Jak již bylo zmíněno u izotopu molybdenu, tak i excitační funkce ⁹⁶Tc mohou přispět k objasnění vzniku těžších jader, než je železo ve vesmíru. V neposlední řadě excitační funkce ⁹⁶Tc je využívána k monitorování protonového svazku při přípravě radionuklidů. Excitační funkce ⁹⁵Tc zdá se být rovněž vhodným adeptem k využití jako monitorovací reakce při ozařování alfa částicemi.

3.2.3 Technecium -99m

Objev technecia – 99m je přisuzován Emiliu Segrèmu, který obdržel cyklotronem ozářený molybdenový plíšek projevující anomální formy radioaktivity. Po chemické a teoretické analýze identifikoval část záření, které bylo produkováno doposud neznámým izotopem. Technecium – 99m podléhá izomernímu přechodu s emisí pouze jedné gamma linky o energii 141 keV, což vede k relativně nízké radiační zátěži pacienta. Díky výše uvedeným vlastnostem a krátkému poločasu rozpadu (6 hodin) se řadí mezi nejvhodnější radionuklidy pro konvenční nukleární medicínu. Další studie ukázaly, že se jedná o dceřiný radionuklid geneticky vázaného páru ⁹⁹Mo/^{99m}Tc. S ohledem na poločas rozpadu molybdenu – 99 (66 hodin) bylo praktičtější vytvořit radionuklidový generátor, který by se do nemocnic dodával jednou týdně a technecium – 99m z něj bude moct být eluováno dle potřeb konkrétních odděleních. Tento postup umožňuje efektivní využití ^{99m}Tc pro výrobu značených radiofarmak přímo na oddělení nukleární medicíny [22][23].

Radionuklidový generátor se skládá ze skleněné kolony, většinou naplněné oxidem hlinitým, který funguje jako nosič pro mateřský molybden. Molybden se pevně váže na tento nosič, což zabraňuje jeho vymývání při eluci technecia. Technecium (v chemické formě ^{99m}TcO4⁻) je z kolony vymýváno sterilním fyziologickým roztokem, a to vede k zisku roztoku technecia s neutrálním pH. Mateřský nuklid, ⁹⁹Mo, je v současnosti ve většině případu připravován ve výzkumných jaderných reaktorech nacházejících se pouze na několika místech na světě.

Největšími výrobci jsou belgický reaktor BR-2 a nizozemský reaktor HFR4. Oba reaktory mají více než 50 let a blíží se doba jejich vyřazení. V letech 2008 a 2009 došlo k souběžnému výpadku kanadského reaktoru, který byl největší producent ⁹⁹Mo a pro svůj věk již není v provozu a holandského reaktoru, což vyvolalo celosvětový nedostatek ^{99m}Tc. K alternativnímu způsob výroby může patřit např. urychlovač částic. Technecium – 99m lze také vyrábět přímou reakcí na cyklotronu, avšak tato metoda by byla proveditelná převážně v nemocničních zařízeních vlastnící svůj vlastní urychlovač. Mezi hlavní nevýhody této alternativy patří především nutná separace daného izotopu technecia z ozářených terčů a nižší radionuklidová čistota než při přípravě pomocí radionuklidových generátorů. Také zde hraje roli ekonomický faktor, jelikož pro dosažení vyšší aktivity je třeba využít obohacené terčové materiály.[24][25].

Metastabilní izotop technecia s izotopovým číslem 99, díky svým fyzikálním a chemickým vlastnostem, představuje klíčový radionuklid pro radiofarmaka používána k zobrazení pomocí jednofotonové emisní výpočetní tomografie (SPECT). V současnosti se ^{99m}Tc používá pro zobrazování mozku, kostí, plic, ledvin, štítné žlázy, srdce, žaludku, jater, sleziny, kostní dřeně, slinných a slzných žláz, krevního řečiště, sentinelových uzlin a jejich funkcí [22][26].

3.2.4 Technecium - 101

Počátkem roku 1940 japonští badatelé přišli na fakt, že pozorovaná aktivita dříve známého izotopu molybdenu s poločasem rozpadu 24 minut je ve skutečnosti aktivita náležící dvěma radionuklidům, ¹⁰¹Mo a ¹⁰¹Tc. Z těchto experimentů dokázali určit jejich poločasy rozpadu ¹⁰¹Mo ($T_{1/2} = 19 \pm 1 \text{ min}$) a ¹⁰¹Tc ($T_{1/2} = 9 \pm 1 \text{ min}$). V následujících letech se aktivací molybdenu pomalými neutrony zabývali také Maurer s Rammem, kterým se podařilo tyto prvky od sebe chemicky separovat a hodnoty poločasů zpřesnit. Poločasy rozpadů určené Maurerem a Rammem jsou blíže shodě s aktuálními používanými hodnotami (¹⁰¹Mo ($T_{1/2} = 14,61 \text{ min}$) a ¹⁰¹Tc ($T_{1/2} = 14,02 \text{ min}$))[27][28].

Technecium – 101 lze vyrobit různými způsoby, od aktivace molybdenových terčů neutrony nebo aktivací nabitými částicemi po přímou přípravu ¹⁰¹Tc pomocí urychlených částic. Výroba pomocí alfa částic je sice vzácná, ale ne nemožná. Levkovski měřil účinné průřezy reakce ⁹⁸Mo(α ,p)¹⁰¹Tc a stanovil maximální účinný průřez při přibližné energii alfa částice 24 MeV ($\sigma_{max} \sim 14,5$ mb). Tato hodnota je výrazně vyšší než ta získaná matematickým výpočetním kódem TENDL-2023 [29][30].

Izotopy technecia, zejména páry ⁹⁹Mo/^{99m}Tc a ¹⁰¹Mo/¹⁰¹Tc, hrají důležitou roli v neutronové aktivační analýze pro detekci stopových množství molybdenu. Poprvé byl tento pár použit k určení obsahu molybdenu v mořských vodách. Další uplatnění těchto geneticky vázaných radionuklidů je při monitorování štěpení v jaderných reaktorech. V budoucnosti by technecium – 101 mohlo nalézt využití také v medicíně [31].

EXPERIMENTÁLNÍ ČÁST

4 Přístroje a použité experimentální techniky

4.1 Urychlovače částic

Urychlovač nabitých částic je zařízení, které pomocí elektrického pole zvyšuje energii nabitých částic. Urychlovače mohou být z konstrukčního hlediska rozděleny do dvou skupin, lineární urychlovače (např. van de Graaffův urychlovač) a cyklické urychlovače (jako jsou cyklotrony nebo synchrotrony). V lineárních urychlovačích se částice urychlují pouze jednou, a to může způsobit nižší energii částice, než je potřebná k uskutečnění jaderné reakci. Pro urychlení na dostatečnou energii by musela být konstrukce urychlovače velkých rozměrů a musel by být k dispozici výkonný zdroj vysokého napětí. V kruhových urychlovačích dochází k ohybu dráhy částice pomocí magnetického pole, tudíž je urychlena vícekrát. Urychlovače hrají významnou roli v průmyslových i lékařských aplikacích. Největší využití nacházejí při výrobě polovodičů, vulkanizaci pryže a úpravě vlastností polymerů, radiouhlíkovém datování nebo v oblasti lékařského zobrazování a léčbě rakoviny.

Podle Mezinárodní agentury pro atomovou energii (IAEA) se v současné době využívá více než 30 000 urychlovačů po celém světě. Více než 97 % se používá pro komerční účely, pouze malé procento slouží k vědeckému výzkumu [32].

První cyklotron sestrojil Ernest Orlando Lawrence, který se nechal inspirovat prací norského fyzika Rolfa Widerøe. V roce 1930 zhotovil první funkční prototyp cyklotronu, jehož nazval "protonovým kolotočem"(proton merry-go-round). Zařízení o průměru asi 10 cm (4") využívalo potenciál 1800 V k urychlení protonů na energii 80 keV. Během nadcházejících dvou let byl sestaven urychlovač o průměru přibližně 70 cm (27"), kde protony dokázaly získat energii až několik megaelektronvoltů [33].

4.1.1 Cyklotron

Klasický cyklotron se skládá ze dvou dutých elektrod (duantů) umístěných v evakuované komoře. Duanty jsou umístěny v poli magnetických sil a připojeny ke zdroji střídavého vysokého napětí, od sebe jsou odděleny malou mezerou. Díky stínicímu efektu stěn diantů se elektrické pole nachází pouze v mezeře, nikoli uvnitř elektrod. Mezi duanty je umístěn iontový zdroj, ze kterého vylétá částice, přičemž v důsledku působení elektrického pole je přitahována k duantu připojenému k napětí opačného polarity, než je samotná částice. Působením

magnetického pole se částice uvnitř duantu pohybuje po půlkružnici. Ve chvíli, kdy částice opustí duant, dojde ke změně polarity napětí a částice je přitahována ke druhé elektrodě, která je v tento okamžik nabitá opačně. Tento jev je stále opakován až do chvíle, kdy částice vstoupí do poslední otáčky spirálové dráhy o maximálním poloměru, poté je částice elektrostaticky nebo magneticky odkloněná ze své dráhy na terčík, na kterém dochází k jaderné reakci.

Při rychlost urychlené částice blížící se rychlostí světla byl pozorován relativistický nárůst hmotnosti částice, který způsobuje pokles úhlové rychlosti jednotlivých částic vykonávající pohyb po spirále. Dochází ke zpoždění částice a periodicky se měnící polarity elektrod. Tento efekt lze kompenzovat úpravou magnetického pole nebo frekvence střídavého napětí [34].

V případě, kdy je frekvence střídavého napětí ponechána konstantní a relativistický nárůst hmotnosti je kompenzován pouze gradientem magnetického pole v prostoru, se takové zařízení nazývá izochronním cyklotronem. Magnet je rozdělen na sektory, ve kterých se střídá silné a slabé magnetické pole v závislosti na velikosti dráhy urychlované částice, čímž dojde k synchronizaci. Ve druhém případě je magnetické pole konstantní a mění se frekvence střídavého napětí. Kompenzaci tímto způsobem využívají synchrocyklotrony. Poslední možností je změna obou výše zmíněných veličin, což umožňuje dosažení velmi vysokých energiích urychlených částic. Nevýhodou tohoto zařízení jsou vysoké pořizovací i provozní náklady. Cyklotron U-120M využitý v této práci patří do skupiny cyklotronů s konstantní frekvencí střídavého napětí tedy mezi izochronní cyklotrony. Cyklotron U-120M sídlí v areálu ÚJF Řež, je sovětské výroby a poprvé byl uveden do provozu v roce 1977. Původně byl konstruován pouze jako urychlovač lehkých kladných iontů, avšak po modernizaci v letech 1996-1998 byl cyklotron přestavěn i na provoz v negativním módu. V současnosti je schopen urychlovat lehké ionty (H⁺, H⁻, D⁺, D⁻, ³He²⁺, ⁴He²⁺) v rozsahu energií od 1 do 55 MeV. Kladné ionty jsou z cyklotronu vyváděny pomocí tří sekcí elektrostatického vychylovacího systému s vyrážecím magnetem (kicker magnet). Záporné ionty jsou extrahovány metodou strippingu pomocí tenké uhlíkové fólie [34][35].

4.2 Terč a terčová technika

Ke stanovení excitačních funkcí se používá metoda aktivace tenkého terče. Tenký terč minimalizuje ztrátu energie svazku, na druhou stranu musí být fólie dostatečně silné, aby indukovaná aktivita byla přijatelně vysoká pro vyhodnocení. Seskupením několika fólií za sebou vzniká tzv. "sendvičový terč" (*stacked foil*), který umožňuje získat více bodů excitačních funkcí daných radionuklidů během jednoho ozařování. Rozestupy mezi jednotlivými body by

měly být přibližně 1-2 MeV. Sendvičový terč obsahuje krom samotných terčových fólií také monitorovací fólie a případně degradéry sloužící ke korekci energie svazku v terči. Toto uspořádání přináší ekonomické a časové výhody. Zvýšená nejistota energie svazku ve vzdálenějších fóliích může být jednou z nevýhod. Tuto situaci lze korigovat pomocí monitorovacích fólií.

Tenký terč lze připravit několika způsoby, nejčastěji se využívají tenké fólie, elektrodepozice nebo napařování terčového materiálu na vhodnou podložku. V této práci byly jako terčový materiál použité fólie z vysoce čistého přírodního molybdenu 99,9 % o tloušť ce 10,97 μm dodávané firmou Goodfellow z Velké Británie, respektive 9,66 μm v druhé sérii ozařování od totožného výrobce. Jako monitorovací fólie byly využity fólie z přírodního titanu o tloušť ce 11,63 μm (99.6 %, Alfa Aesar, USA). Degradéry svazku nebyly v tomto experimentu využity.

První sedvič byl sestaven z 10 molybdenových fólií a 11 titanových. Druhý sendvič čítal 7 molybdenových fólií a 8 titanových. Jako beamstop byl u obou terčů použit stříbrný plíšek o tloušť ce 0,25 mm. Schéma takto sestaveného terče lze znázorňuje Obrázek 4.2.1.



Obrázek 4.2.1: Schématické znázornění sendvičového terče [36], původní obrázek byl pozměněn

4.3 Monitorování svazku

Použití monitorovacích reakcí je jednoduchou metodou k určení přesné energie a proudu svazku dopadajícího na terčový materiál. Z indukované aktivity a známé excitační funkce monitorovací reakce probíhající ve fólii monitoru lze vypočíst jednu nebo dokonce obě proměnné. Při výběru monitorovací reakce musí být brán zřetel na několik požadavků, které by měly monitorovací fólie splňovat:

dobrá znalost izotopového složení materiálu

- dostatek dat poskytujících informace o průběhu excitační funkce
- fólie by během ozařování neměly degradovat, tudíž by měly mít vhodné tepelné a elektrické vlastnosti.
- radionuklid vznikající v této reakci by měl mít dostatečně dlouhý poločas rozpadu
- reakční produkty by neměly být těkavé nebo plynné.
- dostatečné účinné průřezy
- snadno připravitelné v tenkých vrstvách.

Uvedené požadavky významně omezují spektrum vyhovujících materiálu pro výrobu monitorovacích fólií. Při plánování experimentů a výběru monitorovací reakce je důležité zvážit také její prahovou energii. Některé monitorovací reakce se více hodí pro monitorování vyšších energií, jiné pro nižší energie.

Pro monitorování energie a proudu svazku těžkých nabitých částic se osvědčily jaderné reakce, které uvádí Tabulka 4.3.1.

PROTONY	DEUTERONY	³ He-částice	ALFA ČÁSTICE
$^{27}\text{Al}(p,x)^{22}\text{Na}$	27 Al(d,x) 22 Na	²⁷ Al(³ He,x) ²² Na	27 Al(α ,x) 22 Na
27 Al(p,x) 24 Na	27 Al(d,x) 24 Na	²⁷ Al(³ He,x) ²⁴ Na	27 Al(α ,x) 24 Na
$^{nat}Ti(p,x)^{48}V$	$^{nat}Ti(d,x)^{48}V$	^{nat} Ti(³ He,x) ⁴⁸ V	$^{nat}Ti(\alpha,x)^{51}Cr$
^{nat} Ti(p,x) ⁴⁶ Sc	$^{nat}Ti(d,x)^{46}Sc$	^{nat} Cu(³ He,x) ⁶⁶ Ga	$^{nat}Cu(\alpha,x)^{66}Ga$
^{nat} Ni(p,x) ⁵⁷ Ni	^{nat} Fe(d,x) ⁵⁶ Co	^{nat} Cu(³ He,x) ⁶³ Zn	$^{nat}Cu(\alpha,x)^{67}Ga$
$^{nat}Cu(p,x)^{62}Zn$	$^{nat}Ni(d,x)^{61}Cu$	^{nat} Cu(³ He,x) ⁶⁵ Zn	$^{nat}Cu(\alpha,x)^{65}Zn$
$^{nat}Cu(p,x)^{63}Zn$	^{nat} Ni(d,x) ⁵⁶ Co		
$^{nat}Cu(p,x)^{65}Zn$	^{nat} Ni(d,x) ⁵⁸ Co		
^{nat} Cu(p,x) ⁵⁶ Co	$^{nat}Cu(d,x)^{62}Zn$		
^{nat} Cu(p,x) ⁵⁸ Co	$^{nat}Cu(d,x)^{63}Zn$		
$^{nat}Mo(p,x)^{96m+g}Tc$	$^{nat}Cu(d,x)^{65}Zn$		

Tabulka 4.3.1: Vhodné monitorovací reakce těžkých nabitých částic [37]

4.4 Měření aktivity

Aktivita ozářeného terče včetně monitorovacích fólií byla měřena pomocí spektrofotometrie s vysokým rozlišením, konkrétně na dvou HPGe detektorech (GEM40P4-83-SMP-ST Ortec a GEM40P4-83-SM Ortec). Oba detektory byly energeticky i účinnostně kalibrovány pomocí komerčně dostupných etalonů EFF, EFS, EG1 a EG3 (²⁴¹Am, ¹³³Ba, ¹⁵²Eu). Použité bodové

standardy byly vyrobeny Českým metrologickým institutem (ČMI). Kalibrace byla provedena ve vzdálenostech 200, 400, 600 a 1000 mm etalonu od detektoru. Měření bylo prováděno s korekcí na mrtvou dobu, která byla ve všech měřeních udržován pod 15 %. Aktivita *A*^{EOB} je dána následujícím vztahem

$$A^{EOB} = \frac{P}{\eta \cdot t_L \cdot I_{\gamma}} \cdot \frac{\lambda \cdot t_R}{1 - e^{-\lambda \cdot t_R}} \cdot e^{\lambda \cdot t}$$
(4.4.1),

kde *P* je čistá plochá fotopíku dané linky záření, I_v je intenzita této linky, η zastupuje účinnost detekce, λ představuje rozpadovou konstantu daného radionuklidu, t_L – live time, t_R – real time a *t* je časový interval od konce ozařování po začátek měření.

Jednotlivé terčové i monitorovací fólie byly měřeny čtyřikrát. Dvě měření proběhla hned po ozáření. Další měření bylo provedeno následující den. Poslední měření se uskutečnilo v rozmezí 7-14 dnů od ozařování. U některých fólií bylo provedeno i 5. měření, které mohlo umožnit zachycení déle žijícího 97m Tc (T_{1/2} = 91 dní). Technecium - 97m disponuje pouze jednou gamma linkou o nízké energii (E_y = 96,5 keV) a slabé intenzitě (I_y = 0,3 %), což může být důvod pro jeho nezměření. První měření krátce po ukončení ozařování byla využita pro identifikaci radionuklidů s kratším poločasem rozpadu. Pro vyhodnocení byly upřednostněny píky, bez interferencí. Čistá plocha píku byla analyzována programem DEIMOS32. Celková chyba čisté plochy píku byla analyzována prostřednictvím statistické nejistoty počtu impulsů v píku a v odečítaném pozadí [9].

4.5 Výpočet účinného průřezu

Jak již bylo zmíněno v kapitole 2.4 účinný průřez je míra pravděpodobnosti interakce nalétávající částice s terčovým materiálem, a tudíž vznikem jaderné reakce. Účinný průřez je stanoven z naměřené aktivity vztažené ke konci ozařování podle následujícího vztahu

$$\sigma = A^{EOB} \cdot \frac{M \cdot Z \cdot e}{d \cdot \rho \cdot N_A I (1 - e^{-\lambda t_b})} \qquad [b] \qquad (4.5.1),$$

kde A^{EOB} je aktivita radionuklidu na konci ozařování, M je atomová hmotnost terčového materiálu, Z je náboj procházející částice, e je elementární náboj, d je tloušťka terčového materiálu, ρ je jeho hustota, N_A je Avogardova konstanta, I je elektrický proud a t_b je čas ozařování.

V situaci, kdy v terči vznikají geneticky vázané radionuklidy, nelze využít vztah (4.5.1). Pro případ, kdy $\lambda_1 >> \lambda_2$, A_1 lze určit z neinterferující gamma linky a A_2 byla změřená po úplném rozpadu mateřského radionuklidu lze určit tzv. kumulativní účinný průřez, pro který platí

$$\sigma_{cum} = f \cdot \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot \sigma_1 + \sigma_2 \qquad [b] \qquad (4.5.2),$$

kde λ_1 je rozpadová konstanta mateřského radionuklidu a λ_2 je rozpadová konstanta dceřiného radionuklidu. Pokud λ_1 není výrazně větší než λ_2 je nutno provést korekci příspěvku aktivity mateřského radionuklidu k dceřinému vztaženému ke konci ozařování.

4.6 Výpočet výtěžků radionuklidů

Pro ozařování v jaderných reaktorech je charakteristické rovnoměrné rozložení neutronů v prostoru. Naopak u nabitých částic dochází k tvorbě tzv. horkého jádra uvnitř svazku nabitých částic, kde je soustředěna nejvyšší hustota částic, která se vzrůstající vzdáleností od tohoto jádra výrazně klesá.

Další rozdíl mezi ozařováním v jaderných reaktorech a cyklotronech spočívá v tvaru ozařovaného materiálu. Při ozařování v jaderných reaktorech nezáleží na tvaru terčového materiálu, kdežto u cyklotronů, má terčová materiál konstantní tloušťku, čímž je docílena konstantní hustota terčových jader na jednotku plochy, tj. konstantní účinný průřez.

4.6.1 Výpočet výtěžků radionuklidů v tenkých terčích

V případě, kdy ztráta energie procházející nabité částice terčovým jádrem, je zanedbatelná lze hovořit o tenkém terči. Produkční rychlost radionuklidu v takovémto případě jde vyjádřit pomocí míry pravděpodobnosti vyvolání jaderné reakce při dopadu jedné urychlené částice na terč a celkového toku dopadajících částic.

$$\nu = \frac{\rho \cdot f \cdot N_A \cdot d \cdot \sigma}{M} \cdot \frac{I}{Z \cdot e \cdot 10^6} \qquad [s^{-1}] \qquad (4.6.1.1.),$$

kde první člen představuje pravděpodobnost jaderné reakce vyvolané jednou částicí na centimetr čtvereční terčové plochy a druhý člen vyjadřuje celkový tok dopadajících částic na terčový materiál za jednu sekundu. Hustotu terčového materiálu v tomto vztahu představuje ρ , f je zastoupení terčového nuklidu, N_A je Avogardova konstanta, d je tloušťka terče, σ je účinný průřez, M je atomová hmotnost terčového materiálu, I je elektrický proud, Z je náboj procházející částice, e je elementární náboj.

Saturační výtěžek představuje produkční rychlost vztahující se k jednotkovému proudu (obvykle 1 μ A). Pro aktivitu na konci ozařování je nezbytné do tohoto vztahu začlenit člen charakterizující jaderný rozpad, ke kterému dochází během ozařování. Výsledný vztah pro aktivitu na konci ozařování je uveden níže

$$A^{EOB} = \frac{\rho \cdot f \cdot N_A \cdot d \cdot \sigma \cdot I}{M \cdot Z \cdot e \cdot 10^6} \cdot (1 - e^{-\lambda t_b}) =$$

$$= Y_{SAT} \cdot I \cdot (1 - e^{-\lambda t_b})$$
[Bq]
(4.6.1.2),

kde t_b je délka ozařování a λ je rozpadová konstanta konkrétního radionuklidu [38].

4.6.2 Výpočet výtěžků radionuklidů v tlustých terčích

Coulombovské interakce nabitých částic s elektrony a v menší míře s jádry terčového materiálu vedou k postupné ztrátě energie jaderné střely. Míra ztráty energie závisí na hustotě elektronů v terčovém materiálu a také ovlivňuje účinné průřezy příslušných reakcí. V případech, kdy tato ztráta není zanedbatelná, hovoří se o tlustém terči. Při stanovení excitačních funkcí je klíčové minimalizovat ztrátu energie v jednotlivých fóliích, aby bylo dosaženo co nejpřesněji definované energii projektilu. Naopak, při cyklotronové přípravě radionuklidů se často využívají tlusté terče, zejména z ekonomických důvodů, umožňující využití celého energetického rozsahu jaderné střely, kde je účinný průřez stále dostatečně velký. Zeslabení paprsku v terčovém materiálu charakterizuje veličina nesoucí název lineární brzdná schopnost, kterou popisuje Bethe-Blochova formule. Pro účely této práce byla lineární brzdná schopnost počítána pomocí programu SRIM od autorů Zieglera a Biersacka. V intervalů energií používaných při výrobě radionuklidů lze lineární brzdnou schopnost aproximovat jednou nebo více mocninnými funkcemi $\left(-\frac{dE}{dx} = pE^q\right)$. Excitační funkce mohou být aproximovány polynomy ($\sigma = \sum_{i=0}^{n} a_i E^i$), což umožňuje výpočet výtěžku v hrubých terčích [38].

Při výrobě radionuklidů je důležitá znalost saturačního výtěžku radionuklidu Y_{SAT} , který udává teoretickou maximální aktivitu produkce radionuklidu pro danou energii paprsku. Pro tlustý terč o tloušťce *d*, za konstantního proudu 1 µA při nekonečně dlouhém ozařování, z pravidla $t_{ozařování} >> T_{1/2}$ (produkovaného radionuklidu) platí následující vztah:

$$Y_{SAT} = \frac{\rho \cdot f \cdot N_A}{M \cdot Z \cdot e \cdot 10^6} \cdot \int_0^a \sigma_{(E)} dx \qquad (4.6.2.1.),$$

kde ρ je hustota terčového materiálu, f je zastoupení terčového nuklidu, N_A je Avogardova konstanta, M je atomová hmotnost terčového materiálu, Z je náboj procházející částice, e je elementární náboj. Z praktického hlediska se přistupuje k nahrazení integrace přes dráhu částice, integrací přes její energií, díky vztahu pro lineární brzdnou schopnost částice

$$Y_{SAT} = \frac{\rho \cdot f \cdot N_A}{M \cdot Z \cdot e \cdot 10^6} \cdot \int_{E_{in}}^{E_{out}} \frac{-\sigma_{(E)}}{\left(-\frac{dE}{dx}\right)} dE \qquad [Bq/\mu A] \qquad (4.6.2.2).$$

Po dosazení již zmíněných aproximací pro lineární brzdnou schopnost a účinný průřez v závislosti na změně energie lze dostat následující vztah

$$Y_{SAT} = \frac{\rho \cdot f \cdot N_A}{M \cdot Z \cdot e \cdot 10^6} \cdot \frac{1}{p} \int_{E_{in}}^{E_{out}} \left(-\sum_{i=0}^n a_i E^{i-q} \right) dE =$$

$$= \frac{\rho \cdot f \cdot N_A}{M \cdot Z \cdot e \cdot p \cdot 10^6} \left[\sum_{i=0}^n \frac{a_i \cdot E^{i+q+1}}{i+q+1} \right]_{E_{out}}^{E_{in}}$$
(4.6.2.3),

kde p, q jsou parametry mocninné funkce a a_i polynomické funkce. Tento vztah umožňuje provést výpočet saturačních výtěžků s dostatečnou přesností.

Pro aktivitu indukovanou okamžitým dopadem jednotkového elektrického náboje svazku na terčový materiál se zavádí tzv. fyzikální výtěžek *Y*. Tento výtěžek spojuje se saturačním výtěžkem tento vztah

$$Y = \lambda[s^{-1}] \cdot Y_{SAT}[Bq/A] \qquad [Bq/C] \qquad (4.6.2.4),$$

kde λ je rozpadová konstanta daného radionuklidu.

5 Výsledky

Na cyklotronu ÚJF Řež bylo provedeno ozařování sendvičového terče, který obsahoval terčové fólie přírodního molybdenu a monitorovací fólie přírodního titanu.

Radionuklid	Poločas rozpadu	E _γ (keV)	$I_{\gamma}(\%)$	Reakce	Hodnota Q (MeV)	E _{prah} (MeV)
				92 Mo(α , 2p+n)	-20,226	20,95317
				94 Mo(α , 2p+3n)	-37,974	39,3042
^{93m} Mo	6,85 h 7	263,062 5	56,7 14	95 Mo(α , 2p+4n)	-45,343	38,92612
		684,672 9	99,7 20	⁹⁶ Mo(α, 2p+5n)	-54,498	38,81523
		1477,13 4	99,1 25	⁹⁷ Mo(α, 2p+6n)	-61,319	34,1361
		181,068	6,05 12	⁹⁷ Mo(α, 2p)	-13,728	14,1904
⁹⁹ Mo	65,924 h 6	739,500	12,20	⁹⁸ Mo(α, 2p+n)	-22,370	23,1149
		777,921	4,31 8	100 Mo(α , 2p+3n)	-36,590	37,778
930	0.751.5	1363,02 4	66	92 Mo(α , p+2n)	-24,209	25,080
^{Job} Ic	2,75 h 5	1520,37 9	24,4 8	94 Mo(α , p+4n)	-41,958	34,6481
		702,622	99,6 <i>1</i> 8			
⁹⁴ g T o	203 m l	849,74 7	95,7 18	92 Mo(α , p+n)	-15,586	16,146
-10	293 m 1	871,091	100	95 Mo(α , p+4n)	-33,334	34,501
		916,10 15	7,64	95 Mo(α , p+4n)	-40,703	39,809
		204,117 2	63,25 <i>13</i>	92 Mo(α , p)	-5,951	5,855
95m m -	(1,1,2)	582,082 <i>3</i>	29,96 5	94 Mo(α , p+2n)	-23,399	24,219
IC	01 d 2	786,1984	8,66 12	⁹⁵ Mo(α, p+3n)	-30,769	31,832
		835,149 5	26,63 19	96 Mo(α , p+4n)	-39,923	38,985
		765,794 7	93,82 19	97 Mo(α , p+5n)	-46,744	39,552
^{95g} Tc	20,0 h <i>1</i>	947,67 2	1,951 <i>19</i>			
		1073,71 2	3,74 4			
		778,224	100	94 Mo(α , p+n)	-15,528	16,072
96gr	4 00 4 7	812,581	82 4	95 Mo(α , p+2n)	-22,897	23,689
510	4,28 u /	849,929	98 4	⁹⁶ Mo(α, p+3n)	-32,051	33,145
		1126,965	15,2 <i>12</i>	97 Mo(α , p+4n)	-38,873	37,883
				⁹⁶ Mo(α,p)	-6,331	6,547
99m —	6,0067 h 5	140 511 1	00	97 Mo(α ,p+n)	-13,152	13,5956
le		140,511 <i>1</i>	89	98 Mo(α ,p+2n)	-21,795	22,5203
				100 Mo(α ,p+4n)	-36,015	37,1839
101	14.00	306,857 5	89,4	⁹⁸ Mo(α, p)	-6,635	6,856
Tc	14,02 m <i>I</i>	545,117 7	5,96 16	¹⁰⁰ Mo(α, p+2n)	-20,855	21,532

Tabulka 5.1: Rozpadová data analyzovaných radionuklidů [9][39]

Po celou dobu ozařování byl udržován konstantní proud. Hodnota vstupní energie a proudu byla mírně korigována pomocí monitorovací reakce ^{nat}Ti(α ,x)⁵¹Cr, kdy naměřené účinné průřezy uvádí Tabulka 5.2 a naměřenou excitační funkci v porovnání s daty publikovanými IAEA viz Obrázek 5.1. Jednotlivé odchylky naměřených dat byly vypočteny jako odmocnina součtu čtverců relativních nejistot jednotlivých veličin, které do výpočtů vstupují lineárně. Nejistoty veličin, které vstupují do výpočtu v exponentu nejsou do celkové nejistoty zahrnuty. Tabulka 5.1 představuje přehled charakteristických vlastností měřených radionuklidů.

$E_{\alpha}\left(MeV\right)$	σ (mb)
37,37	$51,71 \pm 6,32$
35,55	$53,06 \pm 6,48$
33,67	$56{,}49\pm 6{,}88$
31,70	$58,\!85\pm7,\!18$
29,65	$62,01\pm7,55$
27,49	$71,\!60\pm8,\!72$
25,20	$89,\!46 \pm 10,\!88$
22,72	$126,\!98 \pm 15,\!43$
20,05	$215,76 \pm 26,21$
17,12	$415,\!78\pm50,\!56$
13,83	$572,\!99 \pm 69,\!72$

Tabulka 5.2: Naměřené účinné průřezy reakce ^{nat}Ti $(\alpha, x)^{51}$ Cr a jejich odchylky



Obrázek 5.1: Excitační funkce monitorovací reakce $^{nat}Ti(\alpha,x)^{51}Cr$

5.1 Excitační funkce izotopů molybdenu

 $5.1.1^{93m}$ Mo (T_{1/2} = 6,85 h)

Molybden – 93m je v rámci energetických podmínek experimentu produkován pouze prostřednictvím přímých reakcí 92,94 Mo (α ,2pxn). Základní ani izomerní stav 93 Tc, se na 93m Mo nerozpadá. Aktivity byly určeny z nezávislé γ linky o energii 684,62 keV (99,7 %), přičemž doba chladnutí činila 18-33 h. Obrázek 5.1.1.1 zobrazuje excitační funkce naměřené v této práci. První série dat, kterou publikoval Ditroi je systematicky podhodnocená, série druhá i experimentální data Tarkanyiho jsou již v souladu s daty naměřenými v této práci. Teoretická předpověď výpočetního kódu TALYS 2023 rovněž potvrzuje shodné výsledky. Naměřené účinné průřezy ^{93m}Mo jsou uvedeny viz Tabulka 5.1.1.1 [30][40][41].

Tabulka 5.1.1.1: Naměřené účinné průřezy reakce $^{nat}Mo(a,x)^{93m}Mo$ a jejich odchylky

E _a (MeV) σ (mb)
36,47	$9{,}79 \pm 1{,}04$
34,62	$5,51 \pm 0,59$
32,69	$2,\!97\pm0,\!32$
30,68	$1,64 \pm 0,19$
28,58	$0,99 \pm 0,11$
26,36	$0,\!45 \pm 0,\!06$
23.98	$0,11 \pm 0,03$



Obrázek 5.1.1.1: Excitační funkce reakce $^{nat}Mo(\alpha,x)^{93m}Mo$

 $5.1.2^{99}$ Mo (T_{1/2} = 65,94 h)

Molybden – 99 může být krom přímých reakcí 97,98,100 Mo (α , 2pxn) produkován také rozpadem potenciálně vznikajícího krátkodobého 99 Nb ($T_{1/2} = 2,6$ min). Výsledná aktivita byla vyhodnocována z nezávislé γ linky o energii 181,1 keV (5,99 %). Doba chladnutí byla v intervalu od 18 do 33 hodin. Tabulka 5.1.2.1 uvádí naměřené kumulativní účinné průřezy. Obrázek 5.1.2.1 znázorňuje naměřené excitační funkce v porovnání s předcházejícími experimenty ve shodě, teoretické předpovědi jsou mírně nadhodnocené zejména při nižších energiích [30][40][41].

Tabulka 5.1.2.1: Naměřené kumulativní účinné průřezy reakce $^{nat}Mo(\alpha,x)^{99}Mo$ a jejich odchylky

E _α (MeV)	σ (mb)
36,47	$5,\!13\pm0,\!96$
34,62	$4,\!06\pm0,\!85$
32,69	$4,\!27\pm0,\!83$
30,68	$3,\!10\pm0,\!69$
28,58	$2,\!79\pm0,\!49$
26,36	$1,13 \pm 0,29$
23,98	$0,\!96\pm0,\!32$



*Obrázek 5.1.2.1: Excitační funkce reakce ^{nat}Mo(α,x)*⁹⁹*Mo*

5.2 Excitační funkce izotopů technecia

$5.2.1^{101}$ Tc (T_{1/2} = 14,02 min)

Technecium – 101 vzniká přímými reakcemi ^{98,100}Mo(α , pxn) a β ⁻ rozpadem ¹⁰¹Mo, který však nebyl v tomto experimentu detekován. Pro vyhodnocení byla použita γ linka o energii 306,86 keV (89,4 %). Aktivita byla měřena 17-98 min od ukončení ozařování. V doposud publikované literatuře a databázi EXFOR nebyla nalezena žádná experimentálně stanovená data, proto proběhlo srovnání pouze s teoretickými výpočty TALYS 2023 viz Obrázek 5.2.1.1. Data, která poskytuje výpočetní kód TALYS 2023, jsou zvláště ve vyšších energiích ve shodě s naměřenými daty v tomto experimentu. V nižších energiích okolo 23 MeV lze pozorovat odchylku od teoretických hodnot. Hodnoty jednotlivých účinných průřezů jsou uvedeny viz Tabulka 5.2.1.1 [30] [40][41]

Ea (MeV)	σ (mb)
36,47	$8,72\pm0,73$
34,62	$6{,}98 \pm 0{,}61$
32,69	$5{,}80\pm0{,}58$
30,68	$4,\!85\pm0,\!60$
28,58	$4,\!35\pm0,\!66$
26,36	$3,\!84\pm0,\!80$
23,98	$3,30 \pm 1,11$
21,41	$3,72\pm0,93$

Tabulka 5.2.1.1: Naměřené účinné průřezy reakce ^{nat} $Mo(\alpha,x)^{101}$ Tc a jejich odchylky



Obrázek 5.2.1.1: Excitační funkce reakce $^{nat}Mo(a,x)^{101}Tc$

 $5.2.2^{99m}$ Tc (T_{1/2} = 6,0067 h)

V energetickém rozsahu provedeného experimentu může ^{99m}Tc vznikat přímými reakcemi ^{96,97,98,100}Mo(α ,pxn) a také jako dceřiný produkt β^- rozpadu ⁹⁹Mo. Doba chladnutí byla v rozmezí 1,5-5 hodin. Výsledná aktivita byla vyhodnocována z γ linky o energii 140,511 keV, příspěvek ⁹⁹Mo byl odečten z γ linky o energii 181,068 keV, která by případně mohla interferovat s γ linkou ⁹⁰Nb, který však nebyl detekován, a proto na jeho potenciální příspěvek nebyl brán zřetel. Tabulka 5.2.2.1 uvádí naměřené účinné průřezy. Obrázek 5.2.2.1 srovnává již předchozí naměřená data a také data teoreticky vypočtená. Jak je vidět, tak data naměřená v této práci jsou ve shodě s dřívějšími experimentálními hodnotami. Modelové hodnoty mají obdobný trend jako experimentální, avšak jsou mírně podhodnocená [30][40][41].

E _a (MeV)	σ (mb)
36,47	$5{,}70\pm0{,}49$
34,62	$4,\!35\pm0,\!38$
32,69	$3,53 \pm 0,31$
30,68	$2,\!93\pm0,\!26$
28,58	$2,34 \pm 0,20$
26,36	$1,\!89\pm0,\!17$
23,98	$1,\!43 \pm 0,\!13$
21,41	$1,\!03\pm0,\!10$
18,61	$0,\!49\pm0,\!07$
15,52	$0,\!14\pm0,\!02$

Tabulka 5.2.2.1: Naměřené účinné průřezy reakce $^{nat}Mo(\alpha,x)^{99m}Tc$ a jejich odchylky



Obrázek 5.2.2.1: Excitační funkce reakce $^{nat}Mo(\alpha,x)^{99m}Tc$

 $5.2.3^{96g}$ Tc (T_{1/2} = 4,28 dne)

Radionuklid ^{96g}Tc může vzniknout přímou jadernou reakcí na stabilních izotopech ^{94,95,96,97}Mo a také prostřednictvím izomerního přechodu metastabilního stavu ⁹⁶Tc (T_{1/2} = 52 min). Pro kvantifikaci aktivity ^{96g}Tc byla využita γ linka s energií 314,27 keV, která vykazuje nižší intenzitu (I_v=2,43 %) než ostatní gamma linky, ale nepodléhá interferencím jiných radionuklidů. Korekce příspěvku metastabilního stavu nebyla provedena, jelikož gamma linky příslušející metastabilnímu izomeru nebyly ve spektrech detekovány. V případě, že by metastabilní stav v tomto experimentu vznikal, tak doba chladnutí byla v rozmezí 18-33 hodin, tudíž veškeré ^{96m}Tc by mělo být přeměněno a výsledný účinný průřez by byl označován jako kumulativní. Data naměřená v této práci se shodují s dříve publikovanými experimentálními výsledky, od teoreticky stanovených hodnot je vidět patrná odchylka, která se se zvyšující energií zvětšuje viz Obrázek 5.2.3.1. Účinné průřezy stanovené v této práci jsou uvedeny viz Tabulka 5.2.3.1 [30][40][41].

Tabulka 5.2.3.1: Naměřené účinné průřezy reakce ^{nat} $Mo(\alpha,x)^{96g}Tc$ a jejich odchylky

E _α (MeV)	σ (mb)
36,47	$64,06 \pm 16,26$
34,62	$58{,}50\pm14{,}86$
32,69	$49,70 \pm 12,64$
30,68	$35,\!79\pm9,\!17$
28,58	$26,\!36\pm6,\!65$
26,36	$18,\!38\pm4,\!67$
23,98	$9,34 \pm 2,45$
21,41	$1,\!87\pm0,\!85$



Obrázek 5.2.3.1: Excitační funkce reakce $^{nat}Mo(\alpha,x)^{96g}Tc$

$5.2.4^{95m}$ Tc (T1/2 = 61 dnů)

Metastabilní stav ⁹⁵Tc v podmínkách experimentu vzniká přímými reakcemi na stabilních izotopech ^{92,94,95}Mo a také β^+ rozpadem ⁹⁵Ru (T_{1/2} = 1,643 h), které se rozpadá z 97 % na základní stav a 3 % na stav metastabilní. Aktivita tohoto radionuklidu byla vyhodnocována, když doba chladnutí překročila 212 hodin, tudíž došlo k úplnému rozpadu ⁹⁵Ru. Kumulativní účinný průřez byl vypočten z aktivity, která náležela nezávislé gamma lince o energii 204,1 keV (I_γ = 63,2 %). Data naměřená v této práci jsou ve shodě s dříve naměřenými excitačními funkcemi. Teoretické hodnoty nabývají stejného trendu hodnot, avšak jsou podhodnocené, jak je možné vidět viz Obrázek 5.2.4.1. Tabulka 5.2.4.1 uvádí naměřené kumulativní účinné průřezy [30][40][41].

E _α (MeV)	σ (mb)
36,47	$5{,}65\pm0{,}76$
34,62	$3,\!65\pm0,\!66$
32,69	$1,\!98\pm0,\!24$
30,68	$1,\!49\pm0,\!29$
28,58	$1,\!17\pm0,\!17$
26,36	$2,\!26\pm0,\!28$
23,98	$4,21 \pm 0,80$
21,41	$6{,}72\pm0{,}87$
18,61	$7{,}98 \pm 0{,}74$
15,52	$5,22 \pm 0,54$

Tabulka 5.2.4.1: Naměřené kumulativní účinné průřezy reakce $^{nat}Mo(\alpha,x)^{95m}$ Tc a jejich odchylky



Obrázek 5.2.4.1: *Excitační funkce reakce* $^{nat}Mo(a,x)^{95m}Tc$

 $5.2.5^{94g}$ Tc (T_{1/2} = 293 min)

Základní stav ^{94g}Tc je produkován pouze přímými reakcemi na stabilních izotopech ^{92,94}Mo. Metastabilní forma ⁹⁴Tc ($T_{1/2} = 52$ min) přechází do základního stavu izomerním přechodem s pravděpodobností nižší než 0,1 %, a proto je možné příspěvek této formy zanedbat. Metastabilní stav vzniká stejnými přímými reakcemi jako základní stav, avšak k jeho aktivitě přispívá i ⁹⁴Ru ($T_{1/2} = 51,8$ min), které se ze 100 % přeměňuje na metastabilní stav technecia – 94. Dřívější publikace naznačovaly, že účinné průřezy reakce ^{nat}Mo(α,x)^{94m}Tc jsou malé. Po korekci příspěvku od ⁹⁴Ru, byly počty impulsů ^{94m}Tc natolik nízké, že spolehlivé určení účinných průřezů nebylo možné. Aktivita ^{94g}Tc byla vyhodnocována z nezávislé γ linky o energii 702,62 keV ($I_{\gamma} = 99,6$ %). Jak je patrné viz Obrázek 5.2.5.1, naměřená data v této práci sledují stejný trend jako již dříve naměřená data i data teoreticky predikovaná. I když jsou naměřené hodnoty v této práci nižší než ty publikované Tarkanyim, rozdíl je menší než odchylky od hodnot získaných pomocí výpočetního kódu TALYS 2023, které jsou oproti experimentálním výsledkům podhodnocené. Hodnoty účinných průřezů pro jednotlivé energie jsou uvedeny viz Tabulka 5.2.5.1 [30][40][41].

E _a (MeV)	σ (mb)
36,47	$79,07 \pm 15,29$
34,62	$90,82 \pm 17,57$
32,69	$97,\!18\pm18,\!79$
30,68	$95,00 \pm 18,37$
28,58	$86{,}78 \pm 16{,}78$
26,36	$69,41 \pm 13,42$
23,98	$47,\!28\pm9,\!15$
21,41	$19,\!90 \pm 3,\!85$
18,61	$0,\!47 \pm 0,\!13$

Tabulka 5.2.5.1: Naměřené účinné průřezy reakce $^{nat}Mo(\alpha,x)^{94g}Tc$ a jejich odchylky



Obrázek 5.2.5.1: Excitační funkce reakce $^{nat}Mo(\alpha,x)^{94g}Tc$

$5.2.6^{93}$ gTc (T_{1/2} = 2,75 h)

Stabilní stav izotopu ⁹³Tc v energetickém rozmezí použitém v této práci vzniká přímou reakcí ⁹²Mo(α,pn) a potenciálně izomerním přechodem z metastabilního stavu. Metastabilní stav pravděpodobně nevznikl kvůli vysokého prahu reakce při daných podmínkách ozařování. Stabilní stav byl vyhodnocován pouze prostřednictvím neinterferující gamma linky o energii 1362,02 keV v druhém měření po ukončení ozařování. Experimentální výsledky této práce jsou uvedeny viz Obrázek 5.2.6.1, kde je vidět, že dochází ke shodě s již dříve publikovanými daty, teoretické výpočty jsou rovněž podobného charakteru. Jednotlivé účinné průřezy jsou uvedeny viz Tabulka 5.2.6.1 [30][40][41].

E _α (MeV)	σ (mb)
36,47	$62,\!72\pm4,\!36$
34,62	$35,91 \pm 2,52$
32,69	$14,\!63 \pm 1,\!06$
30,68	$3,\!32\pm0,\!29$
28,58	$0,\!48\pm0,\!07$
26,36	$0,\!25\pm0,\!06$

Tabulka 5.2.6.1: Naměřené účinné průřezy reakce ^{nat} $Mo(\alpha,x)^{93g}$ Tc a jejich odchylky



Obrázek 5.2.6.1: Excitační funkce reakce $^{nat}Mo(a,x)^{93g}Tc$

5.3 Fyzikální výtěžky

Fyzikální výtěžky v tlustých terčích byly vypočteny pro všechny radionuklidy detekované v ozářených fóliích. Experimentálně zjištěné účinné průřezy byly proloženy polynomiální funkcí a lineární brzdná schopnost částice byla převzata z programu SRIM. Vypočtené výtěžky jsou zobrazeny na Obrázcích 5.3.1.-5.3.4.



Obrázek 5.3.1: Fyzikální výtěžek pro vznik ^{93m}Mo a ⁹⁹Mo jadernými reakcemi indukovanými alfa částicemi na terči z přírodního molybdenu



Obrázek 5.3.2: Fyzikální výtěžek pro vznik^{96g}*Tc*, ^{99m}*Tc a*¹⁰¹*Tc jadernými reakcemi indukovanými alfa částicemi na terči z přírodního molybdenu*



Obrázek 5.3.3: Fyzikální výtěžek pro vznik^{93g}*Tc a*^{94g}*Tc jadernými reakcemi indukovanými alfa částicemi na terči z přírodního molybdenu*



Obrázek 5.3.4: Fyzikální výtěžek pro vznik 95mTc jadernými reakcemi indukovanými alfa částicemi na terči z přírodního molybdenu

6 Závěr

Doposud byly publikovány pouze dvě studie zabývající se jadernými reakcemi, jež jsou indukované alfa částicemi na přírodním molybdenu, s důrazem na izotopy molybdenu a technecia. Cílem této práce je rozšířit existující databázi experimentálních dat, protože znalost účinných průřezů získaných experimentálně je velmi důležitá pro zdokonalování teoretických modelů a následnou predikci excitačních funkcí.

V rámci této práce byly zkoumány jaderné reakce, které probíhají na terčích z přírodního molybdenu, při ostřelování urychlenými alfa částicemi, se zaměřením na vznik izotopů molybdenu a technecia. Excitační funkce byly změřeny do energie alfa částic 38 MeV.

První část práce se věnuje teorii mechanismu jaderných reakcí, jejich energetikou a základní charakteristikou veličin v ní používaných. Druhá část teoretické sekce nabízí přehled využití a jiných možností příprav zkoumaných izotopů molybdenu a technecia.

V první části, která se věnuje experimentálním zjištěním, je rozebrán postup výpočtu účinných průřezů a fyzikálních výtěžků reakcí. Druhá část se zabývá srovnáním naměřených dat s předchozími výsledky publikovanými v literatuře. Celkově byla provedena dvě ozařování, kdy první terč obsahoval 10 molybdenových a 11 titanových fólií. V druhém terči bylo ozářeno 7 molybdenových a 8 titanových fólií. Z důvodu vytíženosti cyklotronu U-120 M, který se nachází v areálu ÚJF AV ČR, nebylo možné provést ozáření druhého terče dříve, a proto v této práci jsou publikovány pouze výsledky prvního ozařování.

V práci byly vyhodnoceny excitační funkce pro reakce vedoucí k vytvoření dvou izotopů molybdenu (⁹⁹Mo a ^{93m}Mo) a šesti izotopů technecia (¹⁰¹Tc, ^{99m}Tc, ^{96g}Tc, ^{95m}Tc, ^{94g}Tc a ^{93g}Tc). Pro ¹⁰¹Tc se jedná o první ucelený přehled experimentálních dat. Experimentální data byla také porovnána s teoretickými výpočty provedenými pomocí výpočetního kódu TALYS-2023. Většina teoretických dat sleduje obdobný trend s experimentálně naměřenými hodnotami, mnohdy však dochází k jejich podhodnocení nebo nadhodnocení, což by mohlo jít upravit pomocí vstupních parametrů tohoto kódu, k čemuž nebylo přistoupeno. Rovněž byly vypočteny fyzikální výtěžky daných radionuklidů vznikajících v tomto systému.

Excitační funkce ^{95m}Tc vykazuje vhodné vlastnosti pro potenciální využití k monitorování svazku alfa částic v rozsahu energií, který byl studován. Nicméně k tomuto by bylo zapotřebí shromáždit výrazně větší množství experimentálních dat, než je doposud publikováno.

V případě opětovného vzniku molybdenové krize by jaderné reakce na přírodním molybdenu indukované alfa částicemi mohly být alternativní cestou k výrobě ⁹⁹Mo a ^{99m}Tc. Účinné průřezy těchto reakcí jsou však natolik malé, že komerční výroba tímto způsobem se zdá být neekonomická. Zvýšením výtěžku by mohlo být dosaženo vhodným obohacením terčového materiálu, ale i v tomto případě by byly provozní náklady vyšší než při použití protonového svazku s obdobnými parametry

Celkem lze konstatovat, že účinné průřezy reakcí vyvolaných alfa částicemi jsou obecně nižší než u reakcí, u kterých byl použit urychlený protonový nebo deuteronový svazek. Komerční výroba radionuklidů pomocí urychlených alfa částic je tedy vhodná pouze v případech, kdy daný radionuklid nejde vyrobit jinou cestou.

Do budoucna by bylo zajímavé provést měření excitačních funkcí jaderných reakcí, které probíhají na terčích z přírodního molybdenu a jsou indukované urychlenými ³He²⁺ částicemi. V současné době se urychlování ³He²⁺ částic provádí pouze na několika málo pracovištích na světe, a jedním z nich je právě ÚJF Řež. Množství publikovaných experimentálních dat je srovnatelné s daty získané pro reakce indukované urychlenými alfa částicemi, tudíž minimální.

7 Seznam obrázků

Obrázek 2.1.3.1: Typické energetické spektrum jednoduché jaderné reakce X(x,y)Y [4],
původní obrázek byl pozměněn14
Obrázek 2.4.1: Schéma vyjádření účinného průřezu [3]16
Obrázek 4.2.1: Schématické znázornění sendvičového terče [36], původní obrázek byl
pozměněn
Obrázek 5.1: Excitační funkce monitorovací reakce ${}^{nat}Ti(\alpha, x){}^{51}Cr$
Obrázek 5.1.1.1: Excitační funkce reakce ^{nat} Mo(α,x) ^{93m} Mo34
Obrázek 5.1.2.1: Excitační funkce reakce ^{nat} Mo(α,x) ⁹⁹ Mo35
Obrázek 5.2.1.1: Excitační funkce reakce ^{nat} Mo(α,x) ¹⁰¹ Tc36
Obrázek 5.2.2.1: Excitační funkce reakce ^{nat} Mo(α,x) ^{99m} Tc37
Obrázek 5.2.3.1: Excitační funkce reakce ^{nat} Mo(α,x) ^{96g} Tc
Obrázek 5.2.4.1: Excitační funkce reakce ^{nat} Mo(α,x) ^{95m} Tc
Obrázek 5.2.5.1: Excitační funkce reakce ^{nat} Mo(α,x) ^{94g} Tc41
Obrázek 5.2.6.1: Excitační funkce reakce $^{nat}Mo(\alpha,x)^{93g}Tc42$
Obrázek 5.3.1: Fyzikální výtěžek pro vznik 93mMo a 99Mo jadernými reakcemi indukovanými
alfa částicemi na terči z přírodního molybdenu42
Obrázek 5.3.2: Fyzikální výtěžek pro vznik 96gTc, 99mTc a 101Tc jadernými reakcemi
indukovanými alfa částicemi na terči z přírodního molybdenu43
Obrázek 5.3.3: Fyzikální výtěžek pro vznik 93gTc a 94gTc jadernými reakcemi indukovanými
alfa částicemi na terči z přírodního molybdenu43
Obrázek 5.3.4: Fyzikální výtěžek pro vznik 95mTc jadernými reakcemi indukovanými alfa
částicemi na terči z přírodního molybdenu44

8 Seznam tabulek

Tabulka 3.1.1: Zastoupení izotopů v přírodním molybdenu [10]18
Tabulka 4.3.1: Vhodné monitorovací reakce těžkých nabitých částic [37]27
Tabulka 5.1: Rozpadová data analyzovaných radionuklidů [9][39]32
Tabulka 5.2: Naměřené účinné průřezy reakce $^{nat}Ti(\alpha,x)^{51}Cr$ a jejich odchylky33
Tabulka 5.1.1.1: Naměřené účinné průřezy reakce $^{nat}Mo(\alpha,x)^{93m}Mo$ a jejich odchylky34
Tabulka 5.1.2.1: Naměřené kumulativní účinné průřezy reakce $^{nat}Mo(\alpha,x)^{99}Mo$ a jejich
odchylky35
Tabulka 5.2.1.1: Naměřené účinné průřezy reakce ${}^{nat}Mo(\alpha,x){}^{101}Tc$ a jejich odchylky36
Tabulka 5.2.2.1: Naměřené účinné průřezy reakce ${}^{nat}Mo(\alpha, x)^{99m}Tc$ a jejich odchylky37
Tabulka 5.2.3.1: Naměřené účinné průřezy reakce $^{nat}Mo(\alpha,x)^{96g}Tc$ a jejich odchylky
Tabulka 5.2.4.1: Naměřené kumulativní účinné průřezy reakce $^{nat}Mo(\alpha,x)^{95m}Tc$ a jejich
odchylky
Tabulka 5.2.5.1: Naměřené účinné průřezy reakce $^{nat}Mo(\alpha, x)^{94g}Tc$ a jejich odchylky40
Tabulka 5.2.6.1: Naměřené účinné průřezy reakce $^{nat}Mo(\alpha,x)^{93g}Tc$ a jejich odchylky41

9 Seznam použitých zkratek

BR-2	Belgian Reactor 2	Belgický reaktor
ČMI	Czech metrology institute	Český metrologický institut
HPGe	High Purity Germanium	Germánium s vysokou čistotou
HFR4	The High Flux Reactor	Reaktor s vysokým tokem
IAEA International Atomic Energy Agency	Mezinárodní agentury pro atomovou	
	energii	
PET	Positron Emission Tomography	Pozitronová emisní tomografie
ÚJF	Nuclear Physics Institute	Ústav jaderné fyziky
SPECT	Single-photon emission computerized	Jednofotonová emisní výpočetní
	tomography	tomografie

10 Literatura

- YEONG, Chai-Hong; CHENG, Mu-hua a NG, Kwan-Hoong. Therapeutic radionuclides in nuclear medicine: current and future prospects. Online. *Journal of Zhejiang University SCIENCE B*. 2014, roč. 15, č. 10, s. 845-863. ISSN 1673-1581. Dostupné z: <u>https://doi.org/10.1631/jzus.B1400131</u>. [cit. 2024-01-01].
- [2] LEONE, Matteo. A history of nuclear transmutations by natural alpha particles. Online. *European Journal of Physics*. 2005, roč. 26, č. 6, s. 1047-1056. ISSN 0143-0807. Dostupné z: <u>https://doi.org/10.1088/0143-0807/26/6/012</u>. [cit. 2023-12-12].
- [3] MAJER, Vladimír. Základy jaderné chemie: vysokoškolská učebnice. Praha: Státní nakladatelství technické literatury, 1961.
- [4] KONING, Arjan a AKKERMANS, Hans. PRE-EQUILIBRIUM NUCLEAR REACTIONS: An introduction to classical and quantum-mechanical models. In: Proceedings of the workshop on nuclear reaction data and nuclear reactors: Physics, design and safety. 1999.
- [5] BERTULANI, Carlos A. a DANIELEWICZ, Pawel. Introduction to nuclear reactions.
 [2nd ed.]. Graduate student series in physics. Bristol: CRC Press, 2021. ISBN 9781000356311.
- [6] LOVELAND, Walter D.; MORRISSEY, David J. a SEABORG, Glenn T. Modern Nuclear Chemistry. Online. Wiley, 2017. ISBN 9780470906736. Dostupné z: <u>https://doi.org/10.1002/9781119348450</u>. [cit. 2023-12-22].
- [7] BELL, George. *Theory of Effective Cross Sections*. Los Alamos Scientific Laboratory of the University of California, 1959.
- [8] LUNK, Hans-Joachim a HARTL, Hans. Discovery, properties and applications of molybdenum and its compounds. Online. *ChemTexts*. 2017, roč. 3, č. 3. ISSN 2199-3793. Dostupné z: <u>https://doi.org/10.1007/s40828-017-0048-6</u>. [cit. 2023-12-19].
- [9] NUDAT 3.0. National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory. Online.
 2012. Dostupné z: <u>https://www.nndc.bnl.gov/nudat3/</u>. [cit. 2023-11-11].

- [10] BERGLUND, Michael a WIESER, Michael E. Isotopic compositions of the elements 2009 (IUPAC Technical Report). Online. *Pure and Applied Chemistry*. 2010, roč. 83, č. 2, s. 397-410. ISSN 1365-3075. Dostupné z: <u>https://doi.org/10.1351/PAC-REP-10-06-02</u>. [cit. 2023-12-19].
- [11] KAPP, Robert. Molybdenum*. Online. In: *Encyclopedia of Toxicology*. Elsevier, 2005, s. 145-148. ISBN 9780123694003. Dostupné z: <u>https://doi.org/10.1016/B0-12-369400-0/00642-6</u>. [cit. 2023-12-20].
- [12] ZOLLFRANK, Cordt; GUTBROD, Kai; WECHSLER, Peter a GUGGENBICHLER, Josef Peter. Antimicrobial activity of transition metal acid MoO3 prevents microbial growth on material surfaces. Online. *Materials Science and Engineering: C.* 2012, roč. 32, č. 1, s. 47-54. ISSN 09284931. Dostupné z: <u>https://doi.org/10.1016/j.msec.2011.09.010</u>. [cit. 2023-12-20].
- [13] SADEGHI, Mahdi; ENFERADI, Milad; NADI, Hojjat a TENREIRO, Claudio. A novel method for the cyclotron production no-carrier-added 93mMo for nuclear medicine. Online. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 2010, roč. 286, č. 1, s. 141-144. ISSN 0236-5731. Dostupné z: <u>https://doi.org/10.1007/s10967-010-0622-5</u>. [cit. 2023-12-20].
- [14] GÖBEL, Kathrin; GLORIUS, Jan; KOLOCZEK, Alexander; PIGNATARI, Marco; REIFARTH, René et al. Nucleosynthesis simulations for the production of the p-nuclei 92 Mo and 94 Mo in a Supernova type II model. Online. *EPJ Web of Conferences*. 2015, roč. 93. ISSN 2100-014X. Dostupné z: <u>https://doi.org/10.1051/epjconf/20159303006</u>. [cit. 2023-12-20].
- [15] WOLTERBEEK, Bert; KLOOSTERMAN, Jan Leen; LATHOUWERS, Danny; ROHDE, Martin; WINKELMAN, August et al. What is wise in the production of 99Mo? A comparison of eight possible production routes. Online. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 2014, roč. 302, č. 2, s. 773-779. ISSN 0236-5731. Dostupné z: <u>https://doi.org/10.1007/s10967-014-3188-9</u>. [cit. 2023-12-21].
- [16] BALLINGER, James R. 99 Mo shortage in nuclear medicine: crisis or challenge? Online. Journal of Labelled Compounds and Radiopharmaceuticals. 2010, roč. 53, č. 4, s. 167-168. ISSN 0362-4803. Dostupné z: <u>https://doi.org/10.1002/jlcr.1743</u>. [cit. 2023-12-21].

- [17] JOHNSTONE, Erik V.; YATES, Mary Anne; POINEAU, Frederic; SATTELBERGER, Alfred P. a CZERWINSKI, Kenneth R. Technetium: The First Radioelement on the Periodic Table. Online. *Journal of Chemical Education*. 2017, roč. 94, č. 3, s. 320-326. ISSN 0021-9584. Dostupné z: <u>https://doi.org/10.1021/acs.jchemed.6b00343</u>. [cit. 2023-12-11].
- [18] KOTEGOV, K.V.; PAVLOV, O.N. a SHVEDOV, V.P. Technetium. Online. In: Advances in Inorganic Chemistry and Radiochemistry. Elsevier, 1968, s. 1-90. ISBN 9780120236114. Dostupné z: <u>https://doi.org/10.1016/S0065-2792(08)60165-X</u>. [cit. 2023-12-20].
- [19] QAIM, Syed M. Production of high purity 94mTc for positron emission tomography studies. Online. *Nuclear Medicine and Biology*. 2000, roč. 27, č. 4, s. 323-328. ISSN 09698051. Dostupné z: <u>https://doi.org/10.1016/S0969-8051(00)00104-9</u>. [cit. 2023-12-12].
- [20] HEIM, F.; MÜLLER, M.; WILDEN, S. a ZILGES, A. Absolute Mo 96 (p, n) Tc 96 m
 + g cross sections and a new branching for the Tc 96 m decay. Online. *Physical Review*C. 2021, roč. 103, č. 5. ISSN 2469-9985. Dostupné z: https://doi.org/10.1103/PhysRevC.103.054613. [cit. 2024-01-03].
- [21] HOVHANNISYAN, G. H.; DANAGULYAN, A. S. a BAKHSHYAN, T. M. 96gTc As an Alternative Gamma-Ray Emitter for Medical Diagnostics. Online. *Physics of Atomic Nuclei*. 2019, roč. 82, č. 1, s. 1-7. ISSN 1063-7788. Dostupné z: <u>https://doi.org/10.1134/S1063778819010101</u>. [cit. 2024-01-03].
- [22] KANE, Steven M.; PADDA, Inderbir S. a DAVIS, Donald D. *Technetium-99m.* Online. StatPearls. Treasure Island (FL): StatPearls Publishing, 2023, 24.04.2023. Dostupné z: <u>https://www.ncbi.nlm.nih.gov/books/NBK559013/</u>. [cit. 2024-01-03].
- [23] PAPAGIANNOPOULOU, Dionysia. Technetium-99m radiochemistry for pharmaceutical applications. Online. *Journal of Labelled Compounds and Radiopharmaceuticals*. 2017, roč. 60, č. 11, s. 502-520. ISSN 0362-4803. Dostupné z: <u>https://doi.org/10.1002/jlcr.3531</u>. [cit. 2023-12-12].

- [24] GREEN, ChristopherH. Technetium-99m production issues in the United Kingdom. Online. Journal of Medical Physics. 2012, roč. 37, č. 2. ISSN 0971-6203. Dostupné z: <u>https://doi.org/10.4103/0971-6203.94740</u>. [cit. 2023-12-12].
- [25] National Academies of Sciences, Engineering, and Medicine; Division on Earth and Life Studies; Nuclear and Radiation Studies Board. Opportunities and Approaches for Supplying Molybdenum-99 and Associated Medical Isotopes to Global Markets: Proceedings of a Symposium. Online. Washington: National Academies Press (US), 2018. Dostupné z: https://www.ncbi.nlm.nih.gov/books/NBK487240/. [cit. 2023-12-12].
- [26] PAPAGIANNOPOULOU, Dionysia. Technetium-99m radiochemistry for pharmaceutical applications. Online. *Journal of Labelled Compounds and Radiopharmaceuticals*. 2017, roč. 60, č. 11, s. 502-520. ISSN 0362-4803. Dostupné z: <u>https://doi.org/10.1002/jlcr.3531</u>.
 [cit. 2023-12-12].
- [27] NYSTROM, A. a THOENNESSEN, M. Discovery of yttrium, zirconium, niobium, technetium, and ruthenium isotopes. Online. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*. 2012, roč. 98, č. 2, s. 95-119. ISSN 0092640X. Dostupné z: <u>https://doi.org/10.1016/j.adt.2011.12.002</u>. [cit. 2023-12-04].
- [28] MAURER, W. a RAMM, W. Untersuchung über das "19-Minuten"-Isotop von Molybdän und das daraus entstehende Isotop von Element 43. *The Science of Nature*. 1941, roč. 29, č. 24–25, s. 368–369.
- [29] LEVKOVSKI, V.N. Middle Mass Nuclides (A = 40–100) Activation Crosssections by Medium Energy (E = 10–50 MeV) Protons and Alpha Particles (Experiment and Systematics). In: . Moskva, 1991. Dostupné z: <u>Data dostupná z databáze NNDC EXFOR:</u> (<u>http://www.nndc.bnl.gov/exfor/</u>).
- [30] *TENDL* 2023. Online. 2023. Dostupné z: https://tendl.web.psi.ch/tendl_2023/tendl2023.html. [cit. 2023-12-11].
- [31] JOHNSTONE, Erik V.; MAYORDOMO, Natalia a MAUSOLF, Edward J. Discovery, nuclear properties, synthesis and applications of technetium-101. Online. *Communications Chemistry*. 2022, roč. 5, č. 1. ISSN 2399-3669. Dostupné z: <u>https://doi.org/10.1038/s42004-022-00746-9</u>. [cit. 2023-12-11].

- [32] More background on accelerators. Online. In: International Atomic Energy Agency.
 Dostupné z: <u>https://www.iaea.org/topics/nuclear-science/nuclear-research/accelerators/background</u>. [cit. 2023-12-10].
- [33] YARRIS, Lynn. Ernest Lawrence's Cyclotron: Invention for the Ages. Online. In: Berkeley lab. Dostupné z: <u>https://www2.lbl.gov/Science-Articles/Archive/early-years.html</u>. [cit. 2022-12-11].
- [34] HUMPHRIES, Stanley. *Principles of Charged Particle Acceleration*. USA: John Wiley, 1986. ISBN 9780471878780.
- [35] *Oddělení urychlovačů*. Online. Dostupné z: <u>http://www.ujf.cas. cz/cs/oddeleni/oddeleni-urychlovacu/</u>. [cit. 2022-12-11].
- [36] CHOUDHARY, Mahesh; GANDHI, A.; SHARMA, Aman; SINGH, Namrata; DUBEY, Punit et al. Measurement of alpha-induced reaction cross-sections on \$\$^{nat}\$\$Mo with detailed covariance analysis. Online. *The European Physical Journal A*. 2022, roč. 58, č. 5. ISSN 1434-601X. Dostupné z: <u>https://doi.org/10.1140/epja/s10050-022-00741-7</u>. [cit. 2023-12-11].
- [37] Charged particles cross-sections database for medical radioisotope production. Online.
 In: IAEA TEC-DOC-1211. Vídeň, 2001. Dostupné z: <u>https://www-nds.iaea.org/medical/monitor_reactions.html</u>. [cit. 2023-12-11].
- [38] LEBEDA, Ondřej. Měření excitačních funkcí jaderných reakcí těžkých nabitých částic.Habilitační práce. Praha: České vysoké učení v Praze, 2012.
- [39] PRITYCHENKO, B. a SONZOGNI, A. *Q-Value Calculator*. Online. NNDC, Brookhaven National Laboratory, 2003. Dostupné z: <u>https://www.nndc.bnl.gov/qcalc/</u>. [cit. 2023-12-28].
- [40] DITRÓI, F.; HERMANNE, A.; TÁRKÁNYI, F.; TAKÁCS, S. a IGNATYUK, A.V. Investigation of the α-particle induced nuclear reactions on natural molybdenum. Online. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms.* 2012, roč. 285, s. 125-141. ISSN 0168583X. Dostupné z: <u>https://doi.org/10.1016/j.nimb.2012.05.030</u>. [cit. 2023-12-26].

[41] TÁRKÁNYI, F.; HERMANNE, A.; DITRÓI, F.; TAKÁCS, S. a IGNATYUK, A. Investigation of activation cross section data of alpha particle induced nuclear reaction on molybdenum up to 40 MeV: Review of production routes of medically relevant 97,103 Ru. Online. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. 2017, roč. 399, s. 83-100. ISSN 0168583X. Dostupné z: <u>https://doi.org/10.1016/j.nimb.2017.03.043</u>. [cit. 2023-12-26].