

České vysoké učení technické v Praze  
Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská

**Katedra dozimetrie a aplikace ionizujícího záření**  
**Obor: Dozimetrie a aplikace ionizujícího záření**



**Studium vlastností transmutačních detektorů**

**Study of transmutation detector characteristics**

**BAKALÁŘSKÁ PRÁCE**

Vypracovala: Marie Freibergová  
Vedoucí práce: RNDr. Ladislav Viererbl CSc.  
Rok: 2020





*Katedra:* KDAIZ

*Akademický rok:* 2019/2020

## ZADÁNÍ BAKALÁŘSKÉ PRÁCE

*Student:* Marie Freibergová

*Studijní program:* Aplikace přírodních věd

*Obor:* Dozimetrie a aplikace ionizujícího záření

*Název práce:* Studium vlastností transmutačních detektorů  
(česky)

*Název práce:* Study of transmutation detector characteristics  
(anglicky)

*Pokyny pro vypracování:*

1. Seznámení s fyzikálními principy transmutačních detektorů (TMD) k měření fluence v neutronových polích.
2. Vytvoření seznamu vhodných typů TMD rešerší literatury a případně studiem databází jaderných dat.
3. Pro vybrané reakce využívané v TMD odhadnout nejistotu stanovení fluence vyplývající z nejistoty hodnot účinných průřezů v databázích jaderných dat.
4. Pro vybraný experiment s TMD dříve ozářeným na reaktoru LVR-15 provést teoretický výpočet koncentrace transmutovaného nuklidu v TMD pomocí kódu MCNP.

*Doporučená literatura:*

[1] KNOLL, Glenn F. Radiation detection and measurement. 4th ed. Hoboken, N.J.: John Wiley, c2010. ISBN 0470131489.

[2] ASTM Standard E261-16. *Standard Practice for Determining Neutron Fluence, Fluence Rate, and Spectra by Radioactivation Techniques*. ASTM International, West Conshohocken, PA, 2016.

[3] VIERERBL, L., Z. LAHODOVÁ, V. KLUPÁK, F. SUS, J. KUČERA, P. KŮS a M. MAREK. Transmutation detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. 2011, **632**(1), 109-111. DOI: 10.1016/j.nima.2010.12.142. ISSN 01689002.

[4] TOMANDL, I., L. VIERERBL, P. KUDĚJOVÁ, Z. LAHODOVÁ, V. KLUPÁK a M. FIKRLE. Determination of trace concentrations of transmuted stable nuclides in TMD detectors using PGAA. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 2014, **300**(3), 1141-1149. DOI: 10.1007/s10967-014-3090-5. ISSN 0236-5731.

*Jméno a pracoviště vedoucího bakalářské práce:*

RNDr. Ladislav Viererbl, CSc.  
Centrum výzkumu Řež s.r.o.  
Hlavní 130  
250 68 Husinec-Řež


*Jméno a pracoviště konzultanta bakalářské práce:*

Ing. Miroslav Vinš  
Centrum výzkumu Řež s.r.o.  
Hlavní 130  
250 68 Husinec-Řež

*Datum zadání bakalářské práce:* 14. 10. 2019

*Termín odevzdání bakalářské práce:* 7. 7. 2020

*Doba platnosti zadání je dva roky od data zadání.*

  
.....  
garant oboru

  
.....  
vedoucí katedry

  
.....  
děkan

*V Praze dne 14.10.2019*



## **Prohlášení**

Prohlašuji, že jsem svou bakalářskou práci vypracovala samostatně a použila jsem pouze podklady (literaturu, projekty, SW atd.) uvedené v příloženém seznamu.

V Praze dne .....

.....

Marie Freibergová

## **Poděkování**

Děkuji vedoucímu práce RNDr. Ladislavu Viererblovi za vedení mé bakalářské práce, neocenitelné rady a konzultace při jejím psaní. Svému konzultantovi Ing. Miroslavu Vinšovi děkuji za konzultace a rady týkající se práce s výpočetním programem MCNP a paní Ing. Haně Assmann Vratislavské za poskytnutí experimentálních dat.

Marie Freibergová

*Název práce:*

## **Studium vlastností transmutačních detektorů**

*Autor:* Marie Freibergová

*Studijní program:* Aplikace přírodních věd

*Obor:* Dozimetrie a aplikace ionizujícího záření

*Druh práce:* Bakalářská práce

*Vedoucí práce:* RNDr. Ladislav Viererbl CSc.  
Centrum výzkumu Řež s.r.o.

*Konzultant:* Ing. Miroslav Vinš  
Centrum výzkumu Řež s.r.o.

*Abstrakt:* Práce se zabývá studiem vlastností transmutačních detektorů. Uvádí princip těchto detektorů a použitelné reakce vedoucí na žádané transmutované nuklidy, jejich potřebné vlastnosti a některé omezující aspekty v jejich použití. Dále popisuje nejistoty plynoucí z použití dat uvedených v knihovnách jaderných dat. Pro odhad přibližné koncentrace transmutovaných nuklidů je použit výpočetní program MCNP. S využitím již provedeného experimentu na reaktoru LVR-15 jsou srovnány výsledky obdržené pomocí výpočetního programu MCNP, reálného využití transmutačních detektorů s využitím hmotnostní spektrometrie sekundárních iontů a výpočtů založených na znalosti neutronového spektra pomocí aktivačních detektorů.

*Klíčová slova:* transmutační detektory, MCNP, knihovny jaderných dat

*Title:*

## **Study of transmutation detector characteristics**

*Author:* Marie Freibergová

*Abstract:* The thesis deals with transmutation detectors. It covers the principle of these detectors and possible nuclear reactions that can be used and that lead to desirable transmuted nuclides, their required properties, and some limitations in their use. Then, the thesis describes uncertainties arising from using data from nuclear data libraries. Monte Carlo N-Particle Transport Code is used for the estimation of the concentration of transmuted nuclides. Using results from the already executed experiment at the LVR-15 reactor, the thesis includes the comparison of data that were received by three different methods, these being the use of MCNP, then a method based on transmutation detectors and second ion mass spectrometry, and also calculations using a known neutron spectrum (obtained by using activation detectors).

*Key words:* transmutation detectors, MCNP, nuclear data libraries

# Obsah

|   |           |
|---|-----------|
| <b>Úvod</b>   | <b>9</b>  |
| <b>1 Neutrony a jejich detekce</b>  | <b>10</b> |
| 1.1 Interakce neutronů . . . . .  | 11        |
| 1.1.1 Veličiny popisující interakce . . . . .                             | 12        |
| 1.2 Neutronové zdroje . . . . .   | 13        |
| 1.2.1 Jaderný reaktor LVR-15 . . . . .                                    | 14        |
| 1.3 Detekce neutronů . . . . .  | 15        |
| 1.3.1 Aktivační detektory . . . . .                                       | 15        |
| 1.3.2 Metoda izotopického poměru . . . . .                                | 17        |
| 1.4 Knihovny jaderných dat . . . . .                                      | 17        |
| <b>2 Princip transmutačních detektorů</b>                                 | <b>19</b> |
| <b>3 Reakce využitelné pro transmutační detektory</b>                     | <b>21</b> |
| <b>4 Knihovny jaderných dat a nejistoty</b>                               | <b>26</b> |
| 4.1 Nejistoty účinných průřezů uváděné knihovnamí jaderných dat . . . . . | 26        |
| 4.2 Srovnání účinných průřezů pro vybrané jaderné reakce . . . . .        | 31        |
| 4.3 Srovnání výsledků pro FISPACT . . . . .                               | 34        |
| <b>5 Monte Carlo N-Particle Transport Code</b>                            | <b>36</b> |
| 5.1 Vstupní soubor . . . . .  | 36        |
| 5.2 Výstupní soubor . . . . .   | 37        |
| 5.3 Reaktor LVR-15 . . . . .  | 38        |
| 5.4 Výsledky výpočtu pomocí MCNP . . . . .                                | 39        |
| 5.5 Srovnání výsledků experimentu s výsledky z MCNP . . . . .             | 42        |
| <b>Závěr</b>  | <b>44</b> |
| <b>Literatura</b>   | <b>45</b> |



# Úvod

Tato práce se zabývá transmutačními detektory, jejich vlastnostmi a možnostmi využití. Transmutační detektory lze využít pro stanovení neutronového spektra (fluence neutronů) především v jaderných reaktorech. Pro tento účel se používají jiné metody, například využití aktivačních detektorů, ty ale trpí některými nedostatky. Transmutační detektory tyto nevýhody nemají, zároveň jsou založené ale na podobném principu a mohou doplňovat informace obdržené pomocí aktivačních detektorů.

Práce zahrnuje popis principu a vlastností transmutačních detektorů. Uvádí seznam jaderných reakcí, které se jeví jako potenciálně použitelné pro tyto detektory.

Další část se zabývá knihovnamí jaderných dat, které uvádějí hodnoty účinných průřezů pro jaderné reakce. Protože transmutační detektory jsou s těmito daty spojené, jsou diskutovány nejistoty tabelovaných dat i srovnání samotných hodnot účinných průřezů z několika knihoven jaderných dat.

Celá práce je provázána s již proběhlým experimentem, při kterém byl ozářován transmutační detektor vyhotovený z přírodního křemíku. V poslední kapitole jsou experimentálně získaná data srovnána s výsledky obdrženými ze dvou různých výpočetních programů (MCNP a FISPACT-II), přičemž získání výsledků pomocí programu MCNP bylo dalším bodem samotné práce.

# 1 Neutrony a jejich detekce

Neutrony jsou neutrální subatomární částice, které společně spolu s protony tvoří atomová jádra. Jeho hmotnost činí  $1,675 \cdot 10^{-27}$  kg, je tedy jen o něco těžší než proton, který má hmotnost  $1,673 \cdot 10^{-27}$  kg. V jádře se jedná o stabilní částici, volný neutron ale podléhá beta rozpadu (1.1). Střední doba života neutronu je stále předmětem zkoumání, nicméně odhady se pohybují okolo 879 s, respektive 887 s, v závislosti na volbě experimentální metody. [1] [2]



Samotný rozpad neutronu vychází z kvarkového modelu. Neutron je složen ze tří kvarků - dvou kvarků down a jednoho kvarku up. Působením slabé interakce dojde k přeměně kvarku d na kvark u, přičemž se tato interakce děje prostřednictvím bosonu  $W^-$ . Ten se vzápětí rozpadá na elektron a elektronové antineutrino. [3]

Neutrony mají mnoho vlastností, díky kterým mají široké uplatnění v různých oblastech výzkumu. Jako neutrální částice mají vysokou pronikavost do hmoty a používají se k nedestruktivnímu zkoumání. I bez elektrického náboje podléhají elektromagnetické interakci, neboť mají magnetický moment a spin, čehož se využívá při studiu magnetických vlastností materiálu na atomární úrovni, studiu magnetických fluktuací či polarizace jader. Neutrony jsou, na rozdíl od rentgenovského záření, citlivé na lehká jádra, lze je tedy využít i pro výzkum struktury biologických materiálů. Další využití neutronů spočívá v jejich aplikaci jako neutronových zdrojů - například jaderného reaktoru pro výrobu radiofarmak či při transmutačním dopování polovodičů. [4]

Neutrony se nejčastěji dělí do různých kategorií na základě kinetické energie. Zároveň existuje několik způsobů, kterými se neutrony do příslušných skupin dělí. V literatuře se lze také setkat s tím, že v některých případech nejsou hranice odpovídajících skupin jasné a mohou se lišit.

Pro účely reaktorové fyziky se nejčastěji uvažuje následující dělení: tepelné neutrony (0,025 eV - 1 eV) - rezonanční (1 eV - 1 keV) - rychlé neutrony ( $> 1$  keV). Pro účely výpočtení kódů se v některých případech z tohoto dělení vynechávají rezonanční neutrony, odpovídající energie se spolu s tepelnými neutrony dohromady označují jako pomalé neutrony. [5]

Podrobnější dělení lze vidět v tabulce 1.1. Zmíněné chladné neutrony se v některých případech ještě dělí dále - oddělují se takzvané ultra chladé neutrony s energií v řádu nanoelektronvolt, které se uplatňují ve výzkumu zaměřeném na vlastnosti neutronů. U tepelných neutronů je uvedena nejpravděpodobnější energie (vycházející z Maxwellova rozdělení), v jiných zdrojích se lze setkat se širším intervalem. Kadmiové a epikadmiové neutrony vycházejí z takzvané kadmiové hrany.  $^{113}\text{Cd}$  má totiž vysoký účinný průřez na absorpci neutronů s energií nižší než 0,5 eV. Z tohoto důvodu se kadmium využívá v experimentech, kde je třeba odstínit neutrony s nižší energií (především tepelné).

Zmíněné relativistické neutrony se taktéž označují jako ultra rychlé. Lze se setkat i s jinými způsoby dělení, například pro potřeby studia rozptylu neutronů, kdy

| Kategorie      | Dolní hranice | Horní hranice |
|----------------|---------------|---------------|
| Chladné        | 0 eV          | 0,025 eV      |
| Tepelné        | 0,025 eV      |               |
| Epitermální    | 0,025 eV      | 0,4 eV        |
| Kadmiové       | 0,4 eV        | 0,5 eV        |
| Epikadmiové    | 0,5 eV        | 1 eV          |
| Pomalé         | 1 eV          | 10 eV         |
| Rezonanční     | 10 eV         | 300 eV        |
| Střední        | 300 eV        | 1 MeV         |
| Rychlé         | 1 MeV         | 20 MeV        |
| Relativistické | 20 MeV        | -             |

Tabulka 1.1: Rozdělení neutronů na základě kinetické energie

se jako vysoko energetické či ultra rychlé označují neutrony s energií 0,1 až 10 GeV a neutrony s energií vyšší než 10 GeV pak jako relativistické. Z pohledu provozu jaderných reaktorů se ale relativistické jevy v reaktoru neuvažují, neboť se tak vysokých energií nedosahuje (ani při hranici 20 MeV pro relativistické neutrony). [6]

## 1.1 Interakce neutronů

Způsob interakce neutronů s látkou se velmi liší od interakce jiných částic. Předně interakce neutronů s látkou je výsledkem působení především silné jaderné síly. I když má neutron nenulový magnetický moment, elektromagnetická síla se standardně zanedbává. Absence elektrického náboje kromě slabé elektromagnetické síly také způsobuje, že neutrony neinteragují s elektronovými obaly atomů, ale výlučně s atomovými jádry.

Interakce neutronů se dělí na dvě skupiny - rozptyl (pružný a nepružný) a absorpci (radiační záchyt, produkce nabitých částic a neutronů, štěpení).

### Pružný rozptyl - (n,n)

Při pružném rozptylu dochází ke srážce neutronu s jádrem v základním energetickém stavu, přičemž i po srážce je jádro ponecháno v základním stavu. Zároveň se po srážce znovu objevuje neutron - ne nutně se musí jednat o stejný neutron, který inicioval srážku. Pro pružný rozptyl se zachovává kinetická energie i hybnost. [7]

### Nepružný rozptyl - (n,n')

Nepružný rozptyl probíhá stejně jako rozptyl pružný, nicméně po srážce je jádro ponecháno v excitovaném stavu. Část energie neutronu je totiž pohlcena jádrem. To se přebytečné energie po vyzáření neutronu zbavuje vyzářením  $\gamma$  záření a vrací se do základního stavu. [7]

## Radiační záchyt - $(n,\gamma)$

Při radičním záchytu dochází k pohlcení neutronu jádrem atomu a následně k zformování těžšího jádra. Jádro obvykle zůstane v excitovaném stavu, dojde tedy k vyzáření  $\gamma$  záření a přechodu do základního stavu. [7]

## Produkce nabitých částic - $(n,\alpha)$ , $(n,p)$

I při produkci nabitých částic dochází k pohlcení neutronu jádrem. Jako následek ale nedojde k vyzáření  $\gamma$  záření, ale k produkci nabitých částic - nejčastěji  $\alpha$  částice či protonu. Reakce může být jak endotermická, tak i exotermická, nicméně exotermická nepatří mezi časté interakce pro neutron. Využívá se ale pro detekci neutronů, jsou na ní založeny například plynové detektory s konvertory z  $^3\text{He}$ ,  $^{10}\text{B}$  či  $^6\text{Li}$ . [7]

## Produkce neutronů - $(n, xn)$

Produkce neutronů se podobá produkci nabitých částic a nastává pro vysokoenergetické neutrony. V jejím důsledku se obvykle uvolňují 2 či 3 neutrony. [7]

## Štěpení - $(n,f)$

Při štěpení dojde k pohlcení neutronu jádrem, což vede k rozštěpení jádra obvykle na dvě lehčí jádra a k vyzáření 2 až 3 neutronů a fotonu. Reakce produkuje velké množství energie a kromě jaderných reaktorů se využívá i k detekci neutronů, například ve štěpných komorách. [7]

### 1.1.1 Veličiny popisující interakce

Pro popis chování částic a interakce se využívá celá řada veličin a jednotek. V této kapitole jsou uvedeny nejčastěji používané veličiny pro potřeby popisu interakcí neutronů s látkou.

#### Fluce

Fluce je definována jako poměr  $dN$  a  $da$ , kde  $dN$  označuje počet částic, které dopadly na kouli s plochou průřezu  $da$ . [8]

$$\phi = \frac{dN}{da} \quad (1.2)$$

Jednotkou fluce je  $\text{m}^{-2}$ .

## Příkon fluence

Vztah mezi příkonem a fluencí vyjadřuje rovnice (1.3). Jednotkou příkonu fluence je  $\text{m}^{-2}\text{s}^{-1}$ .

$$\varphi = \frac{d\phi}{dt} \quad (1.3)$$

## Účinný průřez

Mikroskopický účinný průřez  $\sigma$  je definován jako podíl pravděpodobnosti dané interakce, pro kterou je zaveden a která je způsobena dopadem částic, nabitých či nenabitých, o určité energii, a fluence dopadajících částic na jednu terčovou částici. Je tedy zaveden vždy pro danou interakci a jedná se o energeticky závislou veličinu. Jednotkou mikroskopického účinného průřezu je  $\text{m}^2$ , často se ale také používá jednotka barn, přičemž  $1 \text{ barn} = 10^{-28} \text{ m}^2$ .

Celkový mikroskopický účinný průřez  $\sigma_{tot}$  rozumíme sumu mikroskopických účinných průřezů pro všechny typy interakcí, které nastanou pro dopadající částice určitého druhu a energie a danou terčovou entitu.

Makroskopický účinný průřez  $\Sigma$  je definován již pro všechny částice v daném objemu látky, na které nás zajímá určitá interakce. Jedná se o podíl součtu mikroskopických účinných průřezů pro danou interakci v daném objemu látky a tohoto objemu. Celkový makroskopický účinný průřez se definuje stejným způsobem jako celkový mikroskopický účinný průřez.

## Reakční rychlost

Reakční rychlost vyjadřuje počet daných reakcí na jedno terčové jádro za jednotku času. Lze ji také interpretovat jako pravděpodobnost reakce za jednotku času (pro jedno terčové jádro a jednotkový příkon fluence). Vztah reakční rychlosti s mikroskopickým účinným průřezem a příkonem fluence vyjadřuje (1.4). [8] [9]

$$R_r = \int_0^{\infty} \sigma_r(E)\varphi(E)dE \quad (1.4)$$

## 1.2 Neutronové zdroje

Neutronové zdroje zahrnují celou řadu různých typů zdrojů, většinu z nich je třeba uměle vyrobit. Výjimkou představují zdroje využívající spontánní štěpení a případně následná emise zpozděných neutronů v důsledku dalších přeměn vzniklých štěpných produktů. Spontánní štěpení lze pozorovat u těžkých jader, s rostoucí pravděpodobností u vyšších transuranů - nicméně se u těchto nuklidů často vyskytují konkurenční procesy, například přeměna  $\alpha$ . V praxi často používaný zdroj je  $^{252}\text{Cf}$ .

Jiné zdroje jsou založeny na reakci  $(\alpha, n)$ , kde se využívá radionuklidového zdroje podstupující přeměnu  $\alpha$  - používá se především  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ . Tento  $\alpha$  zdroj je následně doplněn terčíkem z vhodného materiálu, například berylia, na kterém dochází k reakci  $(\alpha, n)$ .

Druhý typ radionuklidových zdrojů využívá reakce  $(\gamma, n)$ . V praxi se lze setkat

s využitím této reakce na  $^2\text{H}$  či  $^9\text{Be}$ , jednotlivé fotoneutronové zdroje se liší především v použitém zdroji  $\gamma$ . [10]

Jiné typy zdrojů neutronů bývají konstrukčně náročnější - do této kategorie spadají neutronové generátory, urychlovače a jaderné reaktory. Poslední jmenované patří mezi nejmohutnější zdroje neutronů vůbec, což dovoluje jejich široké využití. U reaktorů, které jsou užívány pro energetické účely, únik neutronů z aktivní zóny představuje nežádoucí efekt - jinak je tomu u výzkumných reaktorů, které mají ozařovací kanály. Ty se mohou nacházet jak přímo v aktivní zóně, tak mimo ni.

### 1.2.1 Jaderný reaktor LVR-15

Jaderný reaktor LVR-15 je výzkumný reaktor umístěný v Centru výzkumu Řež. Spuštěn byl v roce 1989, po přestavbě původního reaktoru VVR-S. Ten byl v Ústavu jaderné fyziky ČSAV v Řeži spuštěn v roce 1957. Důvodem rekonstrukce bylo zvýšení bezpečnosti provozu a také výkonu reaktoru - původní VVR-S měl tepelný výkon 2 MW. [11]

LVR-15 je lehkovodní reaktor s tepelným provozním výkonem 10 MW. Je umístěn v beztlakové nerezové nádobě se stínícím víkem. Moderátorem i chladičem je lehká demineralizovaná voda. Reflektor závisí na provozní konfiguraci - jedná se buď o vodu či berylium (ve formě beryliových bloků). Palivo je typu IRT-4M, obohacením je 19,75 %  $^{235}\text{U}$  - v minulosti se ale používalo palivo s vyšším obohacením, původně se používalo palivo s 80%, později 36% obohacením. Jednotlivé palivové soubory jsou složeny z trubek čtvercového průřezu - buď šesti či osmi. Do středu souboru lze umístit regulační tyče. [12]

Samotná aktivní zóna reaktoru je tvořena hliníkovým separátorem, do kterého se umísťují jednotlivé prvky aktivní zóny. Mříž je rozdělena do  $8 \times 10$  buněk, s krokem 71,5 mm. Palivové soubory zabírají 28 až 32 buněk, ve dvanácti z nich jsou umístěny regulační tyče. Do ostatních buněk jsou umísťovány kanály sond, ozařovací kanály či potrubní pošta. Ostatní bloky bývají vyplněné berilovými bloky (reflektorem) či vodními vytěsňiteli. [12]

Reaktor se používá například pro materiálový výzkum, výrobu radiofarmak a radionuklidů, k transmutačnímu dopování polovodičů, k neutronové aktivační analýze. Další výzkumy využívají horizontálních kanálů či ozařovacího svazku s epitermálními neutrony. K reaktoru jsou také přidruženy horké komory a experimentální smyčky. [12]

## 1.3 Detekce neutronů

Neutrony patří mezi nepřímo ionizující částice, k jejich detekci je tedy třeba využít sekundární nabitě částice či radionuklidy vzniklé při interakci s jádrem materiálu detektoru. Existují různé metody detekce neutronů - za základní možnosti lze považovat měření odražených jader při pružném rozptylu, měření produktů jaderných reakcí či produktů štěpení, případně měření aktivity indukované neutrony. [10]

Při měření odražených jader při pružném rozptylu se využívá faktu, že odražené jádro představuje nabitou částici, která dále ionizuje. Zároveň je ale nutné, aby jádro mělo dostatečnou energii k vytvoření dostatečného množství iontů - čehož lze dosáhnout pouze pro rychlé neutrony. Metoda se používá především pro jádra lehkých prvků, například vodíku, přičemž prvek může být v detektoru použit v čisté podobě či ve vhodné sloučenině. S metodou se lze setkat v mnoha detektorech - ionizační komory, proporcionální detektory, organické scintilační detektory a jiné.

Měření produktů jaderných reakcí je založeno na reakcích vedoucích k emisi nabitých částic - nejčastěji se jedná o reakce  $(n,\alpha)$  a  $(n,p)$ . Pro praktické použití v detektorech existuje ale jen několik vhodných reakcí. Konkrétně se lze setkat s reakcí  ${}^3\text{He}(n,p){}^3\text{H}$  využívanou v plynových detektorech, dále s  ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$  v detektorech scintilačních a  ${}^{10}\text{B}(n,\alpha){}^7\text{Li}$ , která má časté využití v proporcionálních detektorech. Měření produktů štěpení - tedy zpravidla dvou štěpných fragmentů - se využívá ve štěpných komorách. [13]

### 1.3.1 Aktivační detektory

Měření aktivity indukované neutrony patří mezi základní možnosti pro detekci neutronů, stejně jako předchozí zmíněné. S ohledem na zaměření této práce bude tomuto typu detektorů věnován větší prostor, neboť jejich využití je velmi podobné využití transmutačních detektorů.

Aktivační detektory jsou také založeny na reakcích neutronů - nejčastěji se uplatňují reakce  $(n,\gamma)$ ,  $(n,\alpha)$ ,  $(n,p)$  a  $(n,2n)$ . [14] Nedochozí ale k vyhodnocení produktů reakce v momentu, kdy k ní dojde, měří se aktivita vzniklých radionuklidů - se zpožděním oproti času, kdy došlo k dané reakci.

Pro jednu danou reakci lze stanovit aktivitu pomocí vztahu (1.5), který uvažuje jeden typ reakce na  $N$  terčových jádrech, s přeměnovou konstantou radionuklidu  $\lambda$ , účinným průřezem  $\sigma$ , s časově proměnným příkonem fluence  $\varphi(t)$ . Uvažuje se ozařování od  $t = 0$  do  $t = t_1$ . Vztah udává aktivitu v čase ukončení ozařování, bez další časové prodlevy. [14]

$$A = N\sigma\lambda \int_0^{t_1} \varphi(t)e^{-\lambda(t_1-t)} dt \quad (1.5)$$

Zajímá nás pak hodnota fluence, která je definována vztahem (1.6).

$$\phi = \int_0^{t_1} \varphi(t) dt \quad (1.6)$$

V jiné literatuře (například [10]) se lze setkat se stanovením aktivity pro nemo-energetické neutrony bez časové závislosti fluence. Toto je ale s ohledem na možné aplikace v reaktorové fyzice přílišné omezení. Pro stanovení nemoenergetického spektra se využívá větší počet měřených reakcí na různých terčovách jádrech s odlišnou energetickou závislostí.

Ze vztahu aktivity a fluence je zřejmé, že přímé stanovení fluence či jejího příkonu není obecně jednoduché. K zjednodušení výpočtu dochází v několika případech:

**1.** Pokud uvažujeme příkon fluence konstantní v čase a monoenergetické neutrony, obdržíme pro fluenci vztah (1.7), kde  $A$  v tomto případě označuje aktivitu z (1.5). [14]

$$\phi = \frac{t_1 A}{N\sigma(1 - e^{-\lambda t_1})} \quad (1.7)$$

**2.** Doba ozařování je mnohem kratší než poločas přeměny radionuklidu. Pak pro fluenci platí (1.8). [14]

$$\phi = \frac{A}{N\sigma\lambda} \quad (1.8)$$

**3.** Lze se setkat s tím, že známe relativní časovou závislost příkonu fluence - například v případě, kdy můžeme předpokládat, že příkon fluence je úměrný tepelnému výkonu reaktoru. Pak dojde k zjednodušení vztahu (1.5), i když se stále jedná jen o přibližnou aproximaci. [14]

V obecném případě, kdy nelze využít žádný z výše zmíněných předpokladů, nelze z aktivity určit fluenci s dostatečnou přesností. Obtíž nastává především u déle trvajících ozařování, kdy vlivem radioaktivního rozpadu vznikajícího radionuklidu (člen  $(1 - e^{-\lambda t_1})$  v uvedených rovnicích) ztrácíme informaci ze začátku ozařování. Respektive fluence z počátku ozařování přispívá k aktivitě méně než fluence z konce, což často vede ke ztrátě informace a zkreslení výsledků.

V praxi se pro aktivační detektory používají tenké fólie či drátky z čistých prvků - při využití materiálu, který obsahuje několik prvků či izotopů, je třeba výše uvedené vztahy modifikovat na využití více prvků a tedy větší počet různých reakcí (všechny uvedené vztahy předpokládají pouze jeden izotop a na něm proběhlou jednu reakci). Je vhodné, pokud u použitého prvku převažuje pouze jedna reakce s neutrony a účinný průřez této reakce by měl dosahovat co nejvyšších hodnot. Aktivita vzniklého radionuklidu by taktéž měla být ideálně snadno měřitelná. Často se používají prvky jako Ti, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Nb; některé z nich, ale i další (P, S, Mg, Al) lze v rámci této metody použít jako prahové detektory pro rychlé neutrony. [10] [14]



### 1.3.2 Metoda izotopického poměru

Metoda izotopického poměru využívá změny poměru izotopů obsažených v prvku, který je (především dlouhodobě) umístěn v jaderném reaktoru. Pokud měl prvek na počátku ozařování přírodní (či jiné, ale známé složení), lze po konci ozařování určit aktuální poměr izotopů a z toho lze odhadnout fluenci během ozařování. V literatuře [15], [16] se lze setkat s využitím prvků Li, B, C, Cl, Ti, U, P. Výsledné poměry izotopů jsou určovány pomocí hmotnostní spektrometrie. Pokud je využíván grafit, je metoda používána k stanovení produkce plutonia v reaktorech, kde se grafit používá jako moderátor. [17]

## 1.4 Knihovny jaderných dat

Závislost účinných průřezů na energii většinou tvoří složité křivky. Hodnoty účinných průřezů bývají tedy získávány z kombinace experimentálních dat a jaderných modelů. V knihovnách jaderných dat jsou pak uvedeny předpokládané závislosti účinných průřezů na energii pro jaderné reakce a to pro různé typy reakcí - pro neutronové, ale také pro reakce indukované tritony, deuterony a dalšími částicemi, dále obsahuje například informace o radioaktivních rozpadech či štěpných výtěžcích.

Jednotlivé knihovny zpravidla dávají odlišné hodnoty účinných průřezů pro stejné reakce a to s ohledem na odchylky v použitých experimentálních datech i na výpočetním způsobu, pomocí kterého se stanovují celkové závislosti účinného průřezu na energii. Knihovny také bývají aktualizovány v nových verzích. Existence různých nezávislých knihoven pak plyne nejen z existence různých institucí, které je připravují, ale taktéž z jejich různého zaměření - některé knihovny se spíše zaměřují na dozimetrii, jiné na reaktorovou fyziku a tomu částečně uzpůsobují svůj obsah.

Existence různých knihoven, které v sobě zahrnují odlišné hodnoty účinných průřezů, vede k tomu, že při jejich využití ve výpočetních kódech je výsledek závislý na použité knihovně. Tato závislost se liší dle použité reakce, nicméně u některých reakcí se mohou mezi jednotlivými výsledky objevit značné odchylky. Toto je třeba mít na paměti při srovnávání experimentálních výsledků s vypočtenými daty, které mohou silně záviset na použité knihovně jaderných dat.

Protože tato práce v další části pracuje se srovnání experimentálních a vypočtených dat, soustředí se tato kapitola především na krátké představení použitých knihoven. Srovnání hodnot účinných průřezů pro některé použité jaderné reakce je uvedeno v kapitole 4.

### ENDF/B

ENDF (Evaluated Nuclear Data File) označuje knihovny jaderných dat, stejně tak všeobecně rozšířený formát jaderných dat, který byl převzat i pro přípravu ostatních knihoven. Konkrétně se v dnešní době jedná o ENDF/B, předchozí verze formátu dat, ENDF/A, se již nepoužívá.

Jedná se o knihovnu, která je vyvíjena The Cross Section Evaluation Working

Group (CSEWG), což je skupina, která sdružuje výzkumné instituce, univerzity a organizace z jaderného průmyslu především z USA a Kanady. Současně je to knihovna, která je defaultně používaná v některých výpočetních kódech - například MCNP, SCALE či GEANT4. Poslední vydanou verzí je ENDF/B-VIII.0 (2018), stále se ale lze setkat s použitím předchozích vydání knihovny - ENDF/B-VII.1 a ENDF/B-VII.0. [18] [19]

## **JEFF**

JEFF (Joint Evaluated Fission and Fusion File) je knihovna zaměřená na jaderná data především pro štěpné a fúzní reakce a aplikace. Je pod správou Agentury pro jadernou energii (Nuclear Energy Agency - NEA). Poslední vydaná verze nese označení JEFF-3.3. (z roku 2017). [20]

## **JENDL**

JENDL (Japanese Evaluated Nuclear Data Library) je knihovna vyvíjená Japonskou agenturou pro jadernou energii (Japan Atomic Energy Agency). Původně zahrnovala především data pro rychlé množivé reaktory, v dalších verzích byla postupně rozšiřována pro použití i v jiných aplikacích, zahrnující i tepelné reaktory, výpočty stínění a další. Poslední vydaná verze byla vydaná v roce 2010 - jedná se o JENDL-4.0. [21]

## **TENDL**

TENDL (TALYS Evaluated Nuclear Data Library) představuje knihovnu, která v sobě zahrnuje výsledky získané pomocí výpočetního kódu TALYS, který slouží k simulacím jaderných reakcí. Od roku 2015 je knihovna vyvíjena především pod správou Institutu Paula Scherrera (PSI) a Mezinárodní agenturou pro atomovou energii (IAEA). Od roku 2008 bylo vydáno celkem 10 verzí této knihovny, poslední v roce 2019 (TENDL-2019). [22]

## 2 Princip transmutačních detektorů

Transmutační detektory se aplikují podobně jako aktivační detektory - jejich primárním účelem je měření fluence v jaderném reaktoru, k čemuž se nejčastěji užívají fólie z vhodně zvolených materiálů. Metoda transmutačních detektorů je ale založena na jiném principu než aktivační detektory, aby byly eliminovány některé nevýhody aktivačních detektorů.

Transmutační detektory jsou založeny na podobných reakcích, jaké se využívají u aktivačních detektorů. Liší se v tom, že cílem není vytvoření vhodného radioaktivního nuklidu, jehož aktivita se dále měří, ale vytvoření stabilního nuklidu. Po ozaření se zjišťuje koncentrace vytvořeného stabilního nuklidu, ne jeho aktivita. K určení koncentrace se používají některé analytické metody - například hmotnostní spektrometrie sekundárních iontů, neutronová aktivační analýza, jaderná magnetická rezonance a další.

U metody není v principu potřeba, aby vznikající nuklid byl stabilní. Lze využít i nuklidy s dlouhým poločasem rozpadu. Z hlediska patentu, který vymezuje pojmenování transmutační detektor, je třeba, aby poločas rozpadu byl delší než 10 000 let. V principu je ale možné využít i izotopy s kratším poločasem rozpadu. [23]

Metoda je založena na vztahu (2.1), kde  $\phi$  označuje fluenci neutronů,  $\sigma$  efektivní účinný průřez reakce, při které vzniká stabilní izotop, a  $C$  je koncentrace tohoto izotopu v ozařovaném materiálu. Vztah je platný v případě, kdy lze zanedbat vyhoření vzniklého i terčového nuklidu.

$$\phi = \frac{C}{\sigma} \quad (2.1)$$

Pokud vztah (2.1) přepíšeme pro koncentraci a zohledníme i přirozený výskyt  $A_b$  stabilního izotopu A v terčovém materiálu b, obdržíme (2.2).  $N_A$  označuje počet atomů vytvořeného stabilního izotopu,  $N_b$  počet atomů terčového nuklidu. Stejně jako v předchozím případě je vše uvažováno pro jednu reakci. [24]

$$C = \frac{N_A}{N_b} A_b = \sigma \phi A_b \quad (2.2)$$

Protože v reakci vzniká stabilní nuklid, nejsou vztahy zatíženy časovou závislostí. Na rozdíl od metody aktivačních detektorů tedy nedochází ke ztrátě informace v souvislosti s historií ozařování. Podobně jako u aktivačních detektorů může ke ztrátě docházet v případě, kdy by vzniklý transmutovaný nuklid prodělával během ozařování další interakce a dále se měnil - měl by tedy vysoký účinný průřez na některou z následných možných reakcí s neutrony. Tento jev se dá ale zohlednit už v samotné volbě materiálu transmutačního detektoru.

Při využití jedné reakce jako detektoru dostáváme pouze omezenou informaci o měřeném neutronovém spektru - podobně jako například u aktivačních detektorů je třeba využít více reakcí s různými účinnými průřezy - především s různými závislostmi na energii. Při takovém využití lze ale zároveň kombinovat reakční rychlosti získané pomocí transmutačních detektorů s reakčními rychlostmi obdrženými pomocí jiných metod a neutronové spektrum pomocí těchto informací zpřesnit. [14]

Z výše uvedeného je zřejmé, že je třeba při použití transmutačních detektorů klást největší důraz na výběr vhodného prvku, respektive reakce. Především z materiálového hlediska je třeba, aby prvek splňoval následující požadavky:

- Transmutovaný nuklid musí v detektoru vzniknout jako následek jaderných reakcí během ozařování.
- Transmutační detektory by měly být mechanicky, chemicky i radiačně odolné.
- Transmutované nuklidy by měly být mechanicky stabilní v detektoru - tedy, měly by po svém vzniku v něm zůstat. Není vhodné, aby transmutovaný nuklid byl plyn.
- I když je možné zavést korekci na zastoupení transmutovaného nuklidu v terčovém materiálu (před ozařováním), je třeba, aby terčový materiál byl ve vztahu k němu co nejčistší. Jako hranice se udává maximálně desetkrát větší koncentrace transmutovaného nuklidu, než je koncentrace, která odpovídá zvýšení koncentrace transmutovaného nuklidu po ozáření, kdy je detektor ozářen takovou fluencí, aby se dosáhlo měřitelného minima pro daný detektor a vyhodnocovací analytickou metodu. [23]
- Výsledná koncentrace transmutovaného nuklidu musí být měřitelná pomocí některé z analytických metod.
- Pokud se během ozařování indukuje aktivita, je třeba, aby se stala zanedbatelnou v rozumném čase po ozařování.

Tyto požadavky jsou směřovány především pro použitelnost transmutačních detektorů v praxi a zohledňují praktické aspekty. Vzhledem k zamýšlenému použití transmutačních detektorů v neutronových polích s vysokými toky neutronů (v jaderných reaktorech) je třeba dobře zvažovat stabilitu použitých materiálů i následnou radiační ochranu při práci s těmito materiály. Z těchto základních požadavků - a dalších, které jsou kladeny v oblasti účinných průřezů - vyvstávají omezení pro použité materiály. [14] [25]

### 3 Reakce využitelné pro transmutační detektory

V principu je k transmutacím využitelná libovolná jaderná reakce, která vede na stabilní izotop (případně izotop s dlouhým poločasem rozpadu, hranice je podle [23] udáváná zhruba na 10 000 let). V praxi se nejčastěji používají reakce  $(n, \gamma)$ ,  $(n, \alpha)$  a  $(n, 2n)$ , často s využitím následného  $\beta$ -rozpadu. Méně často se lze setkat s reakcí  $(n, p)$ , kterou často doprovází následný  $\beta^-$  rozpad vedoucí zpět na terčový izotop. [26]

Je třeba, aby měla daná jaderná reakce vhodný účinný průřez. To znamená, aby ozařování v požadových časech vedlo na stabilní izotop, jehož koncentrace je měřitelná některou z analytických metod (výběr analytické metody se odvíjí i od daného ozařovaného prvku a jeho požadavku na měřitelné koncentrace). Ne vždy jsou vhodné například prahové reakce - s ohledem na energii prahu v porovnání s energiemi neutronů v jaderném reaktoru.

V Tab. 3.1 jsou uvedené reakce, které splňují požadavky plynoucí z patentu, tedy vznikající nuklid je stabilní či jeho poločas rozpadu převyšuje 10 000 let. Z principu je ale možné použít i nuklidy s kratšími poločasy rozpadu, ty jsou dále uvedeny v Tab. 3.2. Všechny reakce jsou dále rozebrány v této kapitole.

V Tab. 3.1 dále nejsou schématicky uvedeny reakce vedoucí na  $^{199}\text{Hg}$  a  $^{200}\text{Hg}$ , jejichž mechanismus využívá složitější jaderné reakce (dvojitého a trojitého radičního záchytu a následného  $\beta^-$  rozpadu). Podrobněji jsou tyto reakce na zlatě rozvedeny dále v textu.

V následujících odstavcích jsou reakce podrobněji popsány pro jednotlivé prvky.

#### Beryllium

U berylia lze využít izotop  $^9\text{Be}$ . Problém s využitím tohoto prvku spočívá v jeho značné toxicitě. Pro transmutační detektory lze využít dvě reakce. Při radičním záchytu vzniká  $^{10}\text{Be}$ , izotop berylia s poločasem rozpadu 1,51.10<sup>6</sup> let a bez přírodního zastoupení. Druhá možnost spočívá ve využití reakce  $(n, \alpha)$ , která vede na  $^6\text{He}$ . To se s poločasem přeměny 806,7 ms přeměňuje  $\beta^-$  rozpadem na stabilní  $^6\text{Li}$ . Reakce  $(n, \alpha)$  je prahová, energie prahu je přibližně 667 keV.

#### Bor

U boru se využívá izotop  $^{10}\text{B}$ . I u něj je třeba zohlednit toxicitu berylia, neboť dvě u něj využitelné reakce vedou na izotopy tohoto prvku. Reakcí  $(n,p)$  vzniká dlouho žijící  $^{10}\text{Be}$ ,  $(n,d)$  pak stabilní  $^9\text{Be}$ . Reakce  $(n,d)$  je prahová s hodnotou prahu - 4,8 MeV. Třetí reakcí je bezprahová  $(n, \alpha)$ , při které vzniká stabilní  $^7\text{Li}$ .

#### Uhlík

U uhlíku se mohou využívat reakce na dvou jeho stabilních izotopech -  $^{12}\text{C}$  a  $^{13}\text{C}$ . V obou případech se mohou využívat prahové reakce  $(n, \alpha)$ . Velikost prahu je pro  $^{12}\text{C}$  6,2 MeV, pro  $^{13}\text{C}$  pak 4,1 MeV. Další možností je využití radičního záchytu na  $^{13}\text{C}$ , který vede na  $^{14}\text{C}$ , který lze uvažovat s přihlédnutím k jeho poločasu rozpadu (5730 let).

| Prvek | Výchozí nuklid    | Transmutovaný nuklid | Reakce              |
|-------|-------------------|----------------------|---------------------|
| Be    | <sup>9</sup> Be   | <sup>6</sup> Li      | n,α+β <sup>-</sup>  |
|       |                   | <sup>10</sup> Be     | n,γ                 |
| B     | <sup>10</sup> B   | <sup>10</sup> Be     | n,p                 |
|       |                   | <sup>9</sup> Be      | n,d                 |
|       |                   | <sup>7</sup> Li      | n,α                 |
| C     | <sup>12</sup> C   | <sup>9</sup> Be      | n,α                 |
|       | <sup>13</sup> C   | <sup>10</sup> Be     | n,α                 |
| N     | <sup>14</sup> N   | <sup>11</sup> B      | n,α                 |
| O     | <sup>16</sup> O   | <sup>13</sup> C      | n,α                 |
| F     | <sup>19</sup> F   | <sup>16</sup> O      | n,α                 |
| Al    | <sup>27</sup> Al  | <sup>24</sup> Mg     | n,α+β <sup>-</sup>  |
|       |                   | <sup>26</sup> Al     | n,2n                |
|       |                   | <sup>28</sup> Si     | n,γ+β <sup>-</sup>  |
|       |                   | <sup>25</sup> Mg     | n,α                 |
| Si    | <sup>28</sup> Si  | <sup>26</sup> Mg     | n,α                 |
|       | <sup>29</sup> Si  | <sup>31</sup> P      | n,γ+β <sup>-</sup>  |
|       | <sup>30</sup> Si  | <sup>27</sup> Al     | n,α+β <sup>-</sup>  |
| K     | <sup>39</sup> K   | <sup>36</sup> Cl     | n,α                 |
| Ca    | <sup>40</sup> Ca  | <sup>40</sup> K      | n,p                 |
|       |                   | <sup>37</sup> Cl     | n,α                 |
|       |                   | <sup>41</sup> Ca     | n,γ                 |
| Mn    | <sup>55</sup> Mn  | <sup>52</sup> Cr     | n,α                 |
| Fe    | <sup>54</sup> Fe  | <sup>56</sup> Fe     | n,γ+β <sup>-</sup>  |
|       |                   | <sup>54</sup> Cr     | n,p                 |
|       |                   | <sup>51</sup> V      | n,α                 |
| Ni    | <sup>56</sup> Fe  | <sup>53</sup> Cr     | n,α                 |
|       | <sup>57</sup> Fe  | <sup>54</sup> Cr     | n,α                 |
|       | <sup>58</sup> Ni  | <sup>58</sup> Fe     | n,p+β <sup>+</sup>  |
|       | <sup>58</sup> Ni  | <sup>59</sup> Ni     | n,γ                 |
| Cu    | <sup>63</sup> Cu  | <sup>57</sup> Fe     | n,α                 |
|       |                   | <sup>64</sup> Ni     | n,γ+β <sup>+</sup>  |
|       |                   | <sup>64</sup> Zn     | n,γ+β <sup>-</sup>  |
| Ge    | <sup>70</sup> Ge  | <sup>62</sup> Ni     | n,2n+β <sup>+</sup> |
|       |                   | <sup>67</sup> Zn     | n,α                 |
|       |                   | <sup>71</sup> Ga     | n,γ+β <sup>+</sup>  |
| Nb    | <sup>93</sup> Nb  | <sup>92</sup> Nb     | n,2n                |
|       |                   | <sup>94</sup> Nb     | n,γ                 |
|       |                   | <sup>93</sup> Zr     | n,p                 |
| In    | <sup>115</sup> In | <sup>116</sup> Sn    | n,γ+β <sup>-</sup>  |
| Au    | <sup>197</sup> Au | <sup>196</sup> Pt    | n,2n+β <sup>+</sup> |
|       |                   | <sup>196</sup> Hg    | n,2n+β <sup>-</sup> |
|       |                   | <sup>198</sup> Hg    | n,γ+β <sup>-</sup>  |
|       |                   | <sup>199</sup> Hg    |                     |
|       |                   | <sup>200</sup> Hg    |                     |

Tabulka 3.1: Přehled jaderných reakcí využitelných pro transmutační detektory, které vedou na stabilní nuklidy či na nuklidy s poločasem rozpadu delším než 10 000 let

| Prvek | Výchozí nuklid   | Transmutovaný nuklid | Reakce      | Poločas rozpadu<br>[rok] |
|-------|------------------|----------------------|-------------|--------------------------|
| C     | $^{13}\text{C}$  | $^{14}\text{C}$      | n, $\gamma$ | 5730                     |
| N     | $^{14}\text{N}$  | $^{14}\text{C}$      | n,p         | 5730                     |
| O     | $^{17}\text{O}$  | $^{14}\text{C}$      | n, $\alpha$ | 5730                     |
| K     | $^{39}\text{K}$  | $^{39}\text{Ar}$     | n,p         | 269                      |
| Ni    | $^{62}\text{Ni}$ | $^{63}\text{Ni}$     | n, $\gamma$ | 100,1                    |
| Cu    | $^{63}\text{Cu}$ | $^{63}\text{Ni}$     | n,p         | 100,1                    |
| Nb    | $^{93}\text{Nb}$ | $^{91}\text{Nb}$     | n,3n        | 680                      |

Tabulka 3.2: Přehled jaderných reakcí využitelných pro transmutační detektory, které vedou na nuklidy s poločasem rozpadu kratším než 10 000 let

### Dusík

U dusíku se využívají reakce probíhající na  $^{14}\text{N}$ . Reakce (n,  $\alpha$ ) s prahem 170 keV vede na stabilní  $^{11}\text{B}$ . Reakcí (n,p) pak vzniká  $^{14}\text{C}$ .

### Kyslík

I když využití plynů jako transmutačních detektorů není vhodné, lze uvážit teoretické využití různých sloučenin obsahujících kyslík. U něj připadají v úvahu reakce (n,  $\alpha$ ) na dvou stabilních izotopech -  $^{16}\text{O}$  a  $^{17}\text{O}$ . Hodnota prahu pro  $^{16}\text{O}$  je 2,36 MeV, dochází ke vzniku stabilního  $^{13}\text{C}$ . Reakce na druhém izotopu je bezprahová a vzniká při ní  $^{14}\text{C}$ .

### Fluor

U fluoru jde teoreticky využít reakce (n,  $\alpha$ ) na  $^{19}\text{F}$ , která má práh 1,6 MeV a vede na  $^{16}\text{O}$ . Při praktickém využití by bylo třeba dát důraz na zachování kyslíku v měřeném vzorku.

### Hliník

U  $^{27}\text{Al}$  lze využít tři jaderné reakce, které vedou na stabilní izotopy a v jednom případě na izotop s velmi dlouhým poločasem rozpadu. Reakce (n, 2n) vede na  $^{26}\text{Al}$ , který má poločas rozpadu 7,17.10<sup>5</sup> let, zároveň se jedná o prahovou energii s vysokou hodnotu prahu - 13,5 MeV. Druhou využitelnou prahovou reakcí je (n,  $\alpha$ ) s prahem 3,25 MeV vede na  $^{24}\text{Na}$ , který se s poločasem 14,96 hodin rozpadá na stabilní  $^{24}\text{Mg}$ . Poslední využitelnou reakcí je radiční záchyt následován  $\beta^-$  rozpadem, který vede na stabilní  $^{28}\text{Si}$  - jedná se o bezprahovou reakci.

### Křemík

U křemíku lze využít tři jeho izotopy - u každého z nich se využívá reakce (n,  $\alpha$ ). U  $^{28}\text{Si}$  vede na stabilní  $^{25}\text{Mg}$  s prahem 2,74 MeV. Izotop  $^{29}\text{Si}$  se při stejné reakci přeměňuje na stabilní  $^{26}\text{Mg}$  s prahem reakce 1,3 MeV. U  $^{30}\text{Si}$  je situace složitější, (n,  $\alpha$ ) s prahem 4,35 MeV vede na nestabilní  $^{27}\text{Mg}$ , který se s poločasem 9,46 minut přeměňuje na stabilní  $^{27}\text{Al}$ , který je jako možný transmutační detektor zmíněn v předchozím odstavci. Kromě (n,  $\alpha$ ) se u  $^{30}\text{Si}$  uplatňuje ještě bezprahový

radiační záchyt a následný  $\beta^-$  rozpad vedoucí na stabilní  $^{31}\text{P}$ .

### Draslík

U draslíku lze využít  $(n, \alpha)$  na  $^{39}\text{K}$ , která vede na  $^{36}\text{Cl}$  s poločasem rozpadu  $3,01 \cdot 10^5$  let. Reakce je bezprahová, má ale velmi nízkou hodnotu účinného průřezu pro tepelné neutrony. Na stejném izotopu lze uvažovat reakci  $(n, p)$  vedoucí na  $^{39}\text{Ar}$ , který má poločas rozpadu 269 let. Reakce je prahová, hodnota prahu je přibližně 1 MeV.

### Vápník

U  $^{40}\text{Ca}$  se jako perspektivní jeví tři reakce.  $(n, p)$  vede na  $^{40}\text{K}$ , který má poločas rozpadu  $1,28 \cdot 10^9$  let, práh reakce činí 679 keV. I  $(n, \gamma)$  vede na izotop s velmi dlouhým poločasem rozpadu konkrétně na  $^{41}\text{Ca}$  s poločasem rozpadu  $1,03 \cdot 10^5$  let. Reakce  $(n, \alpha)$  vede na stabilní  $^{37}\text{Cl}$ .

### Mangan

Na  $^{55}\text{Mn}$  lze využít dvě reakce vedoucí na stabilní prvky.  $(n, \alpha)$  vede na  $^{52}\text{Cr}$  s prahem reakce 3 MeV. Druhou možnou reakcí je radiační záchyt následován  $\beta^-$  rozpadem na  $^{56}\text{Fe}$ .

### Železo

U železa lze využít reakce na třech jeho izotopech, všechny vedou na stabilní izotopy. Na  $^{54}\text{Fe}$  jsou využitelné  $(n, p)$  vedoucí na  $^{54}\text{Cr}$  s prahem 699 keV a  $(n, \alpha)$ , při které vzniká  $^{51}\text{V}$ , s prahem reakce přibližně 1000 eV.  $(n, \alpha)$  se pak využívají i u zbylých dvou izotopů železa. U  $^{56}\text{Fe}$  vede na  $^{53}\text{Cr}$ , práh reakce přibližně 1000 eV. U  $^{57}\text{Fe}$  vede na  $^{54}\text{Cr}$ , tedy tento izotop je v případě ozařování železa produkován dvěma jadernými reakcemi. Práh reakce je stejný jako u předchozích  $(n, \alpha)$  reakcí.

### Nikl

U niklu se jako perspektivní jeví reakce na třech jeho izotopech. Radiační záchyt na  $^{58}\text{Ni}$  vede na  $^{59}\text{Ni}$  s poločasem rozpadu  $7,6 \cdot 10^4$  let. U stejného izotopu lze využít reakci  $(n, p)$  s prahem 812 keV, která vede na radiaktivní  $^{58}\text{Co}$ , který se s poločasem 70,86 dne přeměňuje na  $^{58}\text{Fe}$ . Dále lze využít reakce  $(n, \alpha)$  na  $^{60}\text{Ni}$  při které vzniká  $^{57}\text{Fe}$ . Práh této reakce je 800 keV. U  $^{62}\text{Ni}$  lze pak využít radiační záchyt vedoucí na  $^{63}\text{Ni}$ , který má poločas rozpadu 100,1 let.

### Měď

U mědi lze využít reakce  $^{63}\text{Cu}$  - v případě  $(n, \gamma)$  reakce vede na  $^{64}\text{Cu}$ . Tento izotop má dva rozpadové módy - s pravděpodobností 61 % podléhá  $\beta^+$  přeměně vedoucí na stabilní  $^{64}\text{Ni}$ . S pravděpodobností 39 % se naproti tomu uplatňuje  $\beta^-$  rozpad na stabilní  $^{64}\text{Zn}$ . Další možnou reakcí je  $(n, 2n)$  a následný  $\beta^+$  rozpad na  $^{62}\text{Ni}$ , přičemž  $(n, 2n)$  je prahová s prahem 11 MeV. U tohoto izotopu lze také využít jedné reakce bez potřeby následného rozpadu a to  $(n, p)$ , která vede na  $^{63}\text{Ni}$ . Práh reakce je přibližně 100 keV.



## Germanium

U germania se jako perspektivní jeví reakce  $^{70}\text{Ge}$ .  $(n, \alpha)$  vede na stabilní  $^{67}\text{Zn}$  s prahem reakce přibližně 992 eV. Při využití radiačního záchytu a následného  $\beta^+$  rozpadu vzniká stabilní  $^{71}\text{Ga}$ .

## Niob

U niobu lze uvažovat o reakcích na  $^{93}\text{Nb}$ . Reakce  $(n, 2n)$  vede na  $^{92}\text{Nb}$  s poločasem rozpadu  $3,47 \cdot 10^7$  let a s prahem reakce 8,9 MeV. Reakce  $(n, 3n)$  pak vede na  $^{91}\text{Nb}$ , která má poločas rozpadu 680 let a práh reakce 16,9 MeV. Radiační záchyt produkuje  $^{94}\text{Nb}$  s poločasem rozpadu  $2,03 \cdot 10^4$  let. Reakce  $(n, p)$  vede na  $^{93}\text{Zr}$ , jehož poločas rozpadu je  $1,53 \cdot 10^6$  let a práh reakce 6,99 keV.

## Indium

U india lze využít radiační záchyt na  $^{115}\text{In}$  a následnou  $\beta^-$  přeměnu na stabilní  $^{116}\text{Sn}$ .

## Zlato

U  $^{197}\text{Au}$  se lze setkat s využitím dvou reakcí a následných rozpadů. Při reakci  $(n, 2n)$  vzniká  $^{196}\text{Au}$ , u kterého jsou možné dva druhy následného rozpadu. S pravděpodobností 92,8 % dochází k  $\beta^+$  rozpadu na stabilní  $^{196}\text{Pt}$ , s pravděpodobností 7,2 % dochází k  $\beta^-$  přeměně na  $^{196}\text{Hg}$ .  $(n, 2n)$  je prahová reakce s velikostí prahu 8,1 MeV.

Druhou možností je radiační záchyt a následný  $\beta^-$  rozpad. Kromě jednoduchého radiačního záchytu a následného rozpadu na  $^{198}\text{Hg}$  je třeba u  $^{197}\text{Au}$  uvažovat i dvojitý, respektive trojitý kaskádní radiační záchyt, vedoucí na  $^{199}\text{Hg}$ , respektive  $^{200}\text{Hg}$ . Pravděpodobnost těchto komplikovanějších procesů je nižší než u jednoduchého radiačního záchytu, rozhodně ale není zanedbatelná. [27]

Zmíněné hodnoty pro jednotlivé prvky byly převzaty z následujících zdrojů: hodnoty prahů reakcí a charakteristiky účinných průřezů byly převzaty z knihovny ENDF/B-VIII.0 s využitím programu JANIS. Hodnoty poločasu rozpadů a pravděpodobnosti jednotlivých rozpadů byly převzaty z [28]. Všechny hodnoty poločasu rozpadů byly uvedeny pro základní stavy, ne pro metastabilní.

Souhrně lze říci, že pro transmutační detektory jsou nejvíce perspektivní reakce  $(n, \alpha)$ , případně  $(n, \gamma)$  následovaný beta přeměnou. Při vzniku stabilních prvků, kdy je využíváno beta přeměny, je nutno vzít tuto skutečnost v úvahu s ohledem na dobu mezi ozářením a měřením - zvláště u těch přeměn, kdy je delší poločas rozpadu u nuklidu vzniklého z radiačního záchytu (či jiné reakce).

U některých reakcí je třeba také vzít v úvahu jejich vysoký práh vzhledem k využití v jaderném reaktoru - zvláště u reakcí s prahem řádu MeV. Vysoký práh má například  $(n, 3n)$  na  $^{93}\text{Nb}$  (16,9 MeV),  $(n, 2n)$  na  $^{27}\text{Al}$  (13,5 MeV),  $(n, 2n)$  na  $^{63}\text{Cu}$  (11 MeV), ostatní reakce zmíněné v této kapitole mají práh do 10 MeV.

## 4 Knihovny jaderných dat a nejistoty

Tato kapitola se zabývá možnostmi odhadu nejistoty stanovení fluence pomocí transmutačních detektorů plynoucí z nejistot tabelovaných hodnot účinných průřezů. K tomu lze použít nejistoty účinných průřezů uváděné danou knihovnou či srovnání účinných průřezů pro některé vybrané reakce z různých knihoven jaderných dat. Základní myšlenka vychází z [14], kdy je pro transmutační detektory zmíněná nejistota 20 % vycházející z nejistot stanovení koncentrace, účinných průřezů a složení původního materiálu. Použité účinné průřezy pak mohou ovlivňovat výslednou fluenci, která je pomocí metody transmutačních detektorů stanovena, a to jak tabelovanými nejistotami účinného průřezu, tak i samotným výběrem knihovny. Účinné průřezy uvedené v knihovnách jaderných dat se pro jednotlivé reakce mohou někdy významně lišit.

Pro srovnání do této kapitoly byly použity následující verze knihoven: ENDF/B-VII.1, ENDF/B-VIII.0, JEFF-3.2, JENDL-4.0, TENDL-2014, TENDL-2017, pro které další výpočetní srovnání vychází z programu FISPACT, a ENDF/B-VII.0, které je dále využíváno výpočetním programem MCNP.

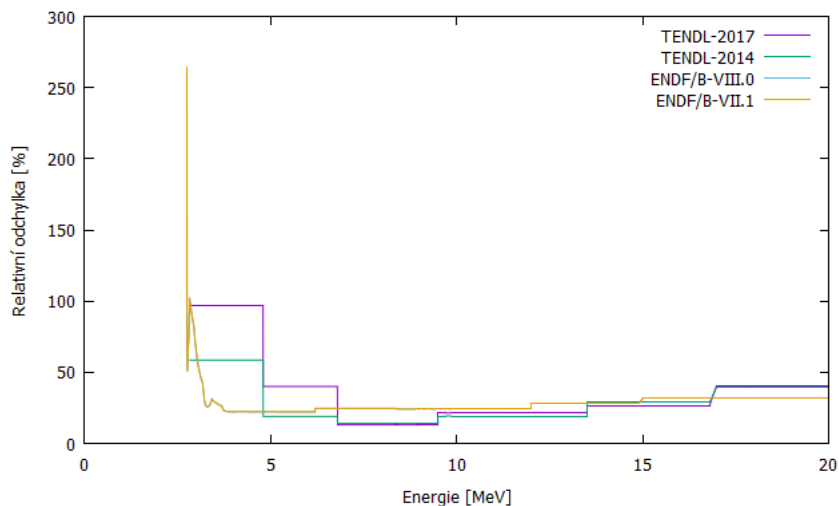
### 4.1 Nejistoty účinných průřezů uváděné knihovnami jaderných dat

Některé knihovny jaderných dat pro některé zkoumané reakce uvádějí kromě hodnot samotných účinných průřezů i nejistotu jeho určení. Z výše uvedených knihoven byly do srovnání nejistot tabelovaných účinných průřezů použity všechny knihovny s výjimkou JEFF-3.2 a ENDF/B-VII.0, které neudávají účinné průřezy spolu s nejistotou jejich určení pro dále zkoumané reakce. Srovnání nejistot je uvedeno pro čtyři reakce na křemíku, které jsou dále zkoumány, především v kapitole 5.

Knihovny udávají nejistoty v absolutních hodnotách. Z povahy účinných průřezů, kdy dosahují řádově nízkých hodnot (pro sledované reakce se maximum nachází v desetínách barnů, v jednom případě pak v desítkách), je velmi obtížné odhadnout závislost nejistoty na energii, stejně tak odhadnout skutečný vliv na nejistotu veličin, které s účinnými průřezy dále počítají.

Z tohoto důvodu byly absolutní odchylky převedeny na relativní. Toto bylo provedeno pro čtyři reakce, přičemž závislost relativní odchylky na energii je dále znázorněna v grafech. Zároveň je nutné říci, že v některých případech došlo k nezobrazení krajních dat v případě, kdy tato hodnota se řádově výrazně lišila oproti relativním odchylkám pro vyšší energii. U jedné reakce není uvedena na grafu jedna knihovna (konkrétně JEFF-3.2) a to z toho důvodu, že relativní odchylky dosahovaly řádově vyšších hodnot pro větší počet bodů. Všechny tyto opravy, plynoucí z požadavku na dobrou čtenost grafů, jsou výslovně uvedeny u jednotlivých grafů.

Všechny relativní odchylky byly zkoumány pro energie do 20 MeV.



Graf 4.1: Závislost relativní odchylky účinného průřezu na energii pro reakci  $^{28}\text{Si}(n,\alpha)^{25}\text{Mg}$

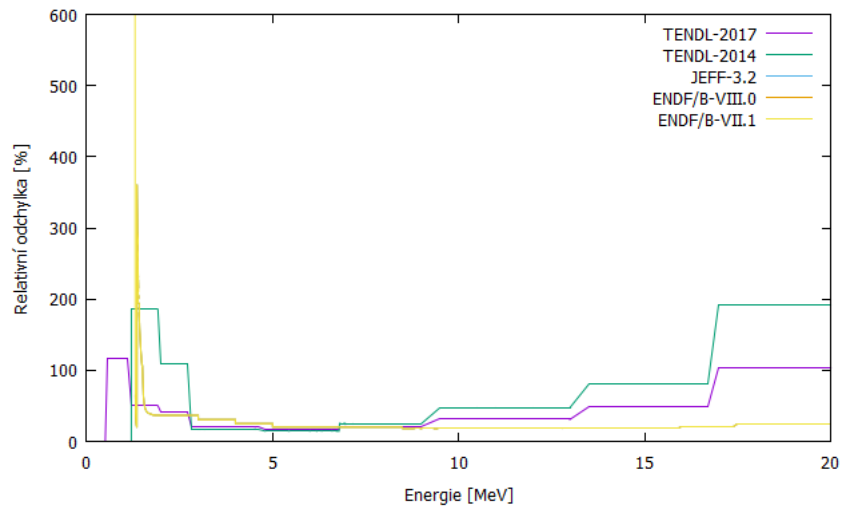
### $^{28}\text{Si}(n,\alpha)^{25}\text{Mg}$

Závislosti relativní odchylky účinného průřezu na energii jsou vyobrazeny na Grafu 4.1 s výjimkou knihovny JEFF-3.2 a prvních dvou bodů knihoven ENDF/B. V případě knihoven ENDF/B, tak i v obou verzích (ENDF/B-VIII.0 i ENDF/B-VII.1) má první tabulovaná hodnota odchylku 1062 %, následující hodnoty v oblasti prahu reakce už mají odchylky nižší a jsou vyobrazeny na grafu. V případě JEFF-3.2 dochází k tomu, že tabuluje řádově stejnou absolutní hodnotu jako knihovny ENDF/B pro řádově odlišnou hodnotu účinného průřezu. Toto vede k tomu, že relativní odchylka se pohybuje v řádově vyšších hodnotách. Konkrétně je pro tuto knihovnu určen účinný průřez pro 1879 hodnot energie (v oblasti do 20 MeV), přičemž 1221 má odchylku do 100 %, 477 hodnot je větších než 1000 % a 17 je větších než  $10^5$  %. V případě hodnot do 100 %, které se vyskytují u vyšších energií, jsou hodnoty srovnatelné jako s knihovnami ENDF/B.

Pro ostatní knihovny je stanoven průměr - hodnoty průměru a maximální a minimální hodnoty relativních odchylek pro jednotlivé knihovny jsou uvedeny v Tab. 4.1.

|            | ENDF/B-VIII.0 | ENDF/B-VII.1 | TENDL-2017 | TENDL-2014 |
|------------|---------------|--------------|------------|------------|
| Max [%]    | 1062          | 1062         | 97         | 59         |
| Min [%]    | 22            | 22           | 13         | 14         |
| Průměr [%] | 30            | 30           | 60         | 37         |

Tabulka 4.1: Maximální, minimální a průměrné hodnoty relativních odchylek účinného průřezu pro jednotlivé knihovny pro reakci  $^{28}\text{Si}(n,\alpha)^{25}\text{Mg}$



Graf 4.2: Závislost relativní odchylky účinného průřezu na energii pro reakci  $^{29}\text{Si}(n,\alpha)^{26}\text{Mg}$

### $^{29}\text{Si}(n,\alpha)^{26}\text{Mg}$

Závislosti relativní odchylky účinného průřezu na energii jsou vyobrazeny na Grafu 4.2. Výjimku v tomto případě tvoří první hodnota u knihoven ENDF/B-VIII.0 a JEFF-3.2, která má shodnou hodnotu 627290 %. Dále pak první dvě hodnoty z knihovny ENDF/B-VII.1, které dosahují hodnot 7236 % a 1545 %. Ve všech ostatních případech jsou hodnoty vyobrazeny na grafu.

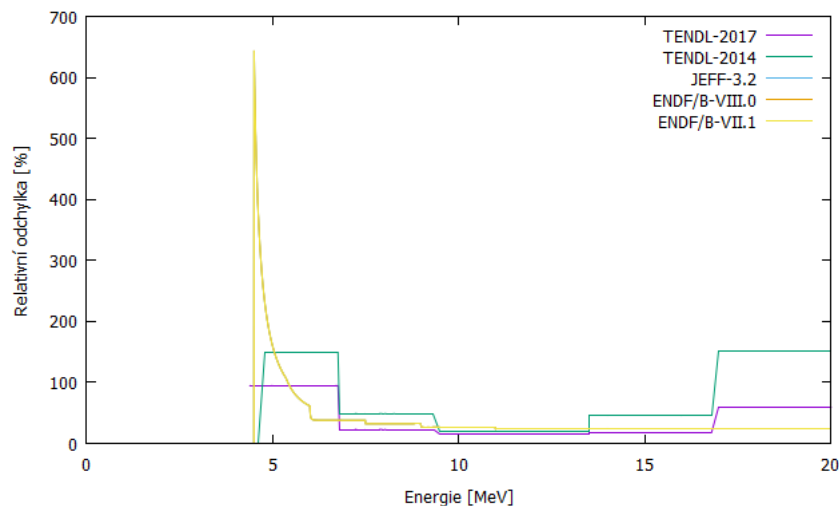
Maximální, minimální a průměrné hodnoty relativní odchylky pro jednotlivé knihovny jsou pro tuto reakci uvedeny v Tab. 4.2. Je třeba opatrně nahlížet na hodnoty u knihovny TENDL-2014, které mají velmi nízký průměr - ten je způsoben tím, že pro 1664 hodnot z celkových 1831 je odchylka tabelována na hodnotu 0. Spíše než na reálnou hodnotu odchylky je ale třeba toto brát spíše jako nestanovení absolutní odchylky pro dané hodnoty účinného průřezu.

|            | ENDF/B-VIII.0 | ENDF/B-VII.1 | JEFF-3.2 | TENDL-2017 | TENDL-2014 |
|------------|---------------|--------------|----------|------------|------------|
| Max [%]    | 627290        | 7236         | 627290   | 116        | 191        |
| Min [%]    | 18            | 18           | 18       | 17         | 0          |
| Průměr [%] | 317           | 40           | 317      | 38         | 5          |

Tabulka 4.2: Maximální, minimální a průměrné hodnoty relativních odchylek účinného průřezu pro jednotlivé knihovny pro reakci  $^{29}\text{Si}(n,\alpha)^{26}\text{Mg}$

### $^{30}\text{Si}(n,\alpha)^{27}\text{Mg}$

Závislosti relativní odchylky účinného průřezu na energii jsou vyobrazeny na Grafu 4.3. V tomto případě jsou na grafu vyobrazeny všechny hodnoty relativních odchylek - žádné se, ani v oblasti prahu, řádově výrazně neodlišují.



Graf 4.3: Závislost relativní odchylky účinného průřezu na energii pro reakci  $^{30}\text{Si}(n,\alpha)^{27}\text{Mg}$

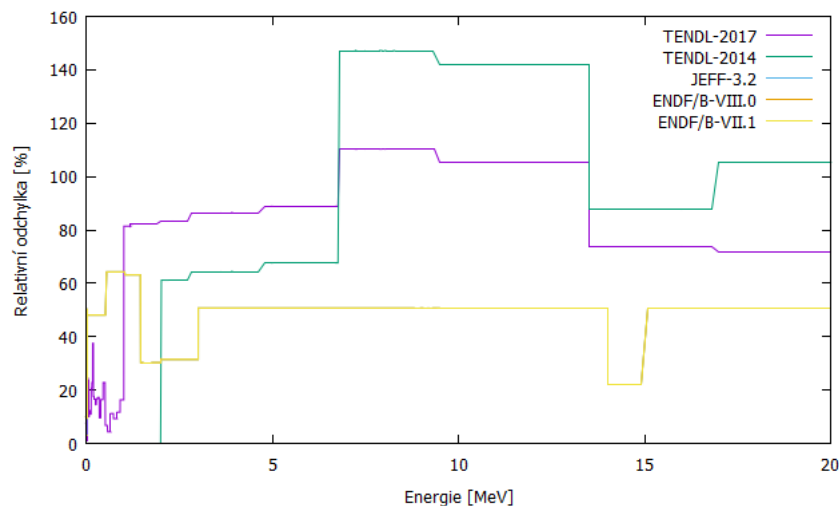
V případě knihoven ENDF/B-VIII.0, ENDF/B-VII.1 a JEFF-3.2 má prvních 42 tabelovaných hodnot stanovenou absolutní (a tím pádem i relativní) odchylku na hodnotu 0. V případě knihovny TENDL-2014 se toto jedná jen prvních dvou bodů. Maxima, minima a průměrné hodnoty relativních odchylek jsou pro tuto reakci uvedeny v Tab. 4.3.

|            | ENDF/B-VIII.0 | ENDF/B-VII.1 | JEFF-3.2 | TENDL-2017 | TENDL-2014 |
|------------|---------------|--------------|----------|------------|------------|
| Max [%]    | 644           | 644          | 644      | 95         | 151        |
| Min [%]    | 0             | 0            | 0        | 15         | 0          |
| Průměr [%] | 99            | 99           | 99       | 42         | 75         |

Tabulka 4.3: Maximální, minimální a průměrné hodnoty relativních odchylek účinného průřezu pro jednotlivé knihovny pro reakci  $^{30}\text{Si}(n,\alpha)^{27}\text{Mg}$

### $^{30}\text{Si}(n,\gamma)^{31}\text{Si}$

Závislosti relativní odchylky účinného průřezu na energii jsou vyobrazeny na Grafu 4.4. Oproti předchozím reakcím nejsou hodnoty relativních odchylek tak velké a všechny jsou znázorněny na grafu. Maximální, minimální a průměrné hodnoty relativních odchylek jsou uvedeny v Tab. 4.4. V případě knihovny TENDL-2014 nastává, stejně jako u jedné z předchozích reakcí, situace, kdy většina tabelovaných hodnot (konkrétně 3466 z 3698) má nulovou absolutní odchylku. Z tohoto důvodu může dojít ke zkreslení hodnot u této konkrétní knihovny.



Graf 4.4: Závislost relativní odchylky účinného průřezu na energii pro reakci  $^{30}\text{Si}(n,\gamma)^{31}\text{Si}$

|            | ENDF/B-VIII.0 | ENDF/B-VII.1 | JEFF-3.2 | TENDL-2017 | TENDL-2014 |
|------------|---------------|--------------|----------|------------|------------|
| Max [%]    | 64            | 64           | 64       | 110        | 147        |
| Min [%]    | 3             | 3            | 3        | 1          | 0          |
| Průměr [%] | 49            | 49           | 49       | 19         | 6          |

Tabulka 4.4: Maximální, minimální a průměrné hodnoty relativních odchylek účinného průřezu pro jednotlivé knihovny pro reakci  $^{30}\text{Si}(n,\gamma)^{31}\text{Si}$

## Shrnutí

Z výše uvedeného je patrné, že relativní odchylky tabelovaných hodnot účinných průřezů mohou v některých případech nabývat velmi vysokých hodnot - více než  $10^3$  %. Ve většina případů se ale jedná o několik bodů, které se navíc vyskytují především u prvních hodnot účinných průřezů prahových reakcí - především u knihoven ENDF/B, u knihoven TENDL se tento jev u sledovaných reakcí nevyskytuje. V jednom případě se lze setkat s tím, že řádově vysoké relativní odchylky se vyskytují u více tabelovaných hodnot.

Dalším pozorovaným jevem je, že ačkoliv knihovna uvádí, že zahrnuje absolutní odchylky účinného průřezu, může se u některých reakcí vyskytnout, že část z nich určí jako nulu. Toto pak může zkreslit případné průměry či vyhodnocování hodnot odchylek.

Ze sledovaných reakcí má nejnižší hodnoty relativních odchylek radiační záchyt, prahové reakce  $(n,\alpha)$  mají zpravidla vyšší hodnoty. Pokud bychom měli orientačně určit přibližnou relativní odchylku pro celé spektrum, lze se částečně řídit vypočteným průměrem - při zanedbání řádově vyšších hodnot v několika mála bodech. V případě knihoven, které mají nižší odchylky, se tyto hodnoty pohybují v rozmezí 20 až 30 %. U knihoven s vyššími odchylkami se pak hodnoty pohybují zhruba od 40 do 60 %. V případě knihoven ENDF/B a JEFF-3.2 u reakce  $(n,\alpha)$  na  $^{30}\text{Si}$  je průměr ještě větší - především ale z důvodu vyšších hodnot (řádově  $10^2$  %) v širším rozsahu energií (přibližně až do 6 MeV).

Tyto odhady mohou být v dalším kroku použity ke stanovení nejistoty určení fluence pomocí transmutačních detektorů. Pro toto stanovení by bylo třeba ještě určit korelační matici nejistot účinných průřezů, toto již ale není obsahem této práce.

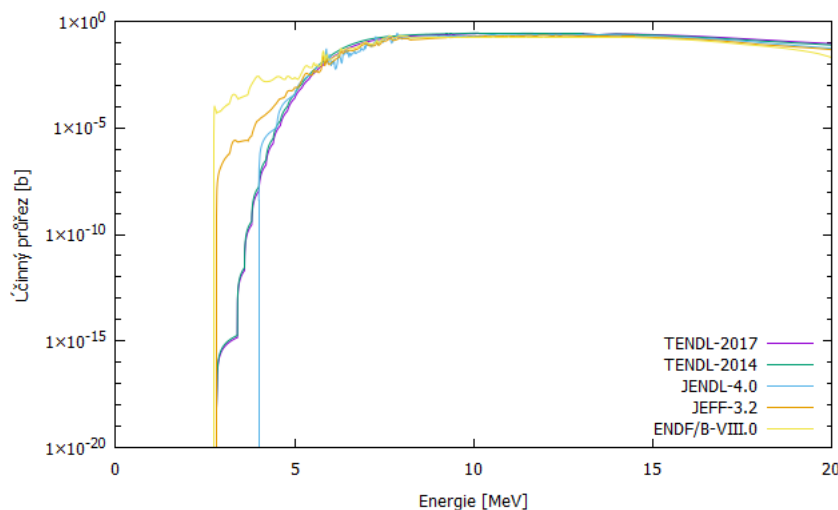
## 4.2 Srovnání účinných průřezů pro vybrané jaderné reakce

S ohledem na srovnání výsledků experimentu s výsledky obdržnými pomocí výpočetních programů, které jsou dále popsány v kapitole 5, je v této podkapitole zobrazeno srovnání účinných průřezů pro čtyři reakce, které jsou dále v textu zkoumány. Pro srovnání byly použity knihovny uvedené výše, s výjimkou u knihovny ENDF/B, kde je u srovnání uvedena pouze knihovna ENDF/B-VIII.0. K tomu bylo přistoupeno z důvodu přehlednosti dále vyobrazených grafů a také z faktu, že jednotlivé verze této knihovny se pro použité reakce neliší v hodnotách účinných průřezů.

Veškerá srovnání byla pro účinné průřezy provedena pouze do energie 20 MeV, která se považuje za horní energii uvažovanou v reaktorové fyzice, vzhledem k použití transmutačních detektorů tedy není nutnost zabývat se vyššími energiemi.

Všechny dále použité grafy využívají dat získaných z databáze JANIS 4.0, data pak byla dále zpracována v programu Gnuplot.

### $^{28}\text{Si}(n,\alpha)^{25}\text{Mg}$

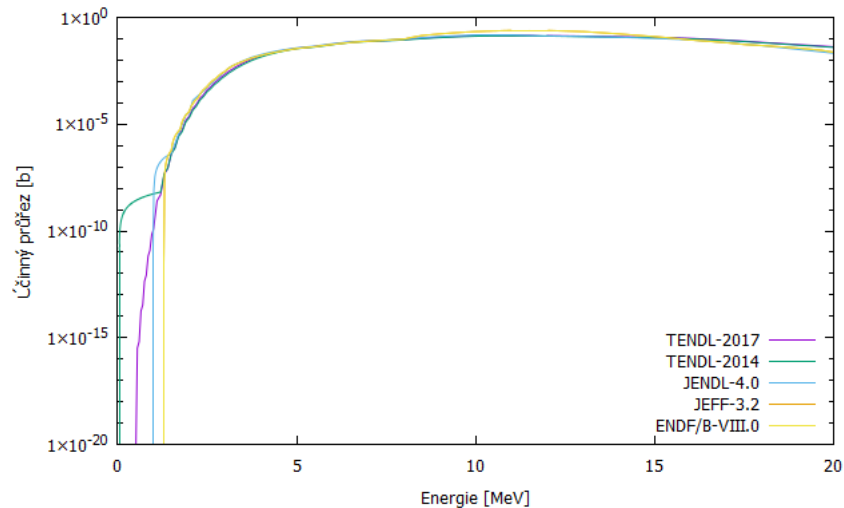


Graf 4.5: Závislost účinného průřezu na energii pro reakci  $^{28}\text{Si}(n,\alpha)^{25}\text{Mg}$

Závislost účinného průřezu reakce  $^{28}\text{Si}(n,\alpha)^{25}\text{Mg}$  na energii pro použité knihovny je vyobrazena na Grafu 4.5. Jedná se o prahovou reakci s hodnotou prahou v rozmezí od 2,7 MeV (ENDF/B-VIII.0) do 4 MeV (JENDL-4.0) pro použité knihovny. Jednotlivé knihovny se odlišují v charakteru vzrůstu hodnoty účinného průřezu. Výjimku tvoří knihovna TENDL, jejíž dvě verze se v tomto případě od sebe výrazně neodlišují. Hodnota účinného průřezu obecně nejprve prudce roste a to až téměř

k hodnotě 0,3 b, následně pozvolna klesá.

### $^{29}\text{Si}(n,\alpha)^{26}\text{Mg}$



Graf 4.6: Závislost účinného průřezu na energii pro reakci  $^{29}\text{Si}(n,\alpha)^{26}\text{Mg}$

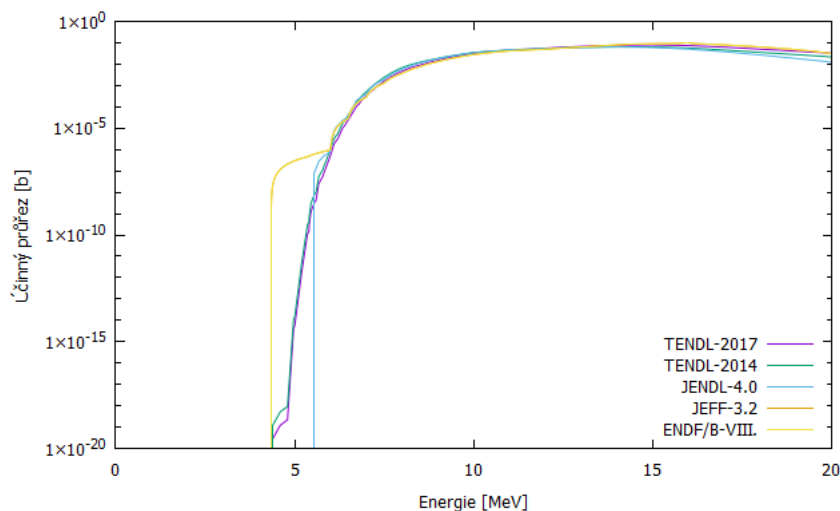
Závislost účinného průřezu reakce  $^{29}\text{Si}(n,\alpha)^{26}\text{Mg}$  na energii pro použité knihovny je vyobrazena na Grafu 4.6. Jedná se stejně jako v předešlém případě o prahovou reakci. Hodnota prahu se dle jednotlivých knihoven pohybuje od 0,04 MeV (TENDL-2014) do 1,3 MeV (ENDF/B-VIII.0) - rozsah uvažovaných hodnot prahů je tedy oproti předchozí reakci podstatně širší. Zároveň si ale lze povšimnout, že knihovna TENDL-2017 udává už hodnotu 0,5 MeV, o řád se tedy přibližuje hodnotám z ostatních použitých knihoven. U této reakce také splývají hodnoty knihoven ENDF/B-VIII.0 a JEFF-3.2.

Další charakter závislosti účinného průřezu je obdobný jako v předchozím případě, přibližuje se ve vrcholu závislosti k hodnotě 0,2 b.

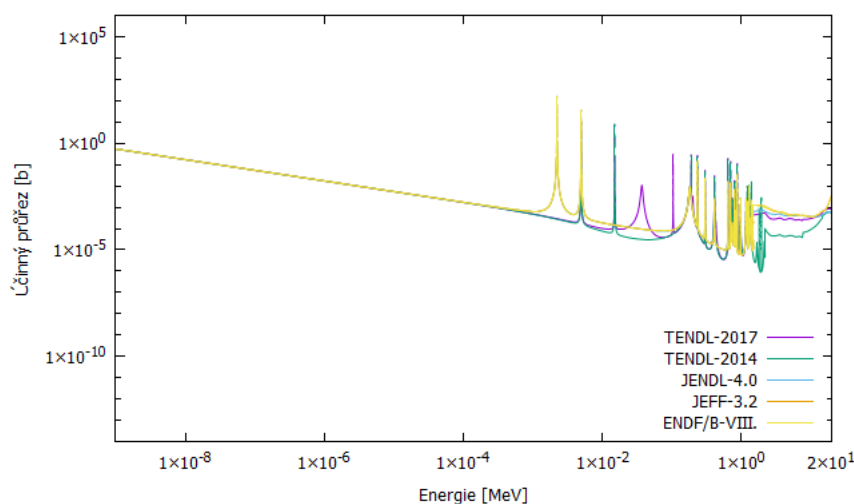
### $^{30}\text{Si}(n,\alpha)^{27}\text{Mg}$

Závislost účinného průřezu reakce  $^{30}\text{Si}(n,\alpha)^{27}\text{Mg}$  na energii pro použité knihovny je vyobrazena na Grafu 4.7. Práh reakce je v tomto případě vyšší než u předešlých reakcích - s výjimkou JENDL-4.0 je ostatními knihovnami udávána hodnota 4,3 MeV, zmíněná knihovna pak udává hodnotu 5,5 MeV. Hodnoty účinných průřezů z jednotlivých knihoven se shodují od zhruba 6 MeV - s výjimkou JEFF-3.2, která stejně jako u předchozí reakce splývá s ENDF/B-VIII.0.





Graf 4.7: Závislost účinného průřezu na energii pro reakci  $^{30}\text{Si}(n,\alpha)^{27}\text{Mg}$



Graf 4.8: Závislost účinného průřezu na energii pro reakci  $^{30}\text{Si}(n,\gamma)^{31}\text{Si}$

### $^{30}\text{Si}(n,\gamma)^{31}\text{Si}$

Závislost účinného průřezu reakce  $^{30}\text{Si}(n,\gamma)^{31}\text{Si}$  na energii pro použité knihovny je vyobrazena na Grafu 4.8. Jedná se v tomto srovnání o jediný radiční záchyt, charakter účinného průřezu se tedy podstatně liší od předchozích  $(n,\alpha)$  reakcí. Liší se i samotnou hodnotou účinného průřezu - u předešlých reakcí hodnota nepřesahuje 1 b, v tomto případě u nejvyšší rezonance hodnota lehce přesahuje 100 b.

Stejně jako v předešlých případech splývají závislosti účinného průřezu na energii z knihoven JEFF-3.2 a ENDF/B-VIII.0. U ostatních knihoven se liší účinné průřezy především v oblasti rezonancí. První rezonance je knihovnou ENDF/B-VIII.0 určena zhruba na energii 2 keV.

Co se týče obecného srovnání pro všechny reakce, účinné průřezy se pro  $(n,\alpha)$  reakce liší především v hodnotě prahu, případně rychlosti růstu hodnoty účinného průřezu v okolí prahu. Naopak charakter u vyšších energií je u jednotlivých kniho-

ven velmi obdobný a hodnotově účinné průřezy splývají. Rozdílné hodnoty prahu se právě u aplikace transmutačních detektorů mohou výrazně projevit - s ohledem na neutronové spektrum v jaderném reaktoru, které má střední hodnotu 2 MeV. V případě štěpných spekter se ale nejedná o Maxwellovské rozdělení (používá se například formule pro Wattovo štěpné spektrum) a rozdělení energií je nesymetrické, přičemž vyšší energie jsou zastoupeny méně.

Rozdíl v hodnotě prahu reakce může tedy částečně ovlivnit vypočtené hodnoty - především pak pro reakci  $^{29}\text{Si}(n,\alpha)^{26}\text{Mg}$ , kde je mezi dvěma knihovnami zachycen rozdíl o 2 řády v hodnotě prahu reakce.

Oproti tomu rozdíl u zkoumané  $(n,\gamma)$  reakce vychází především z existence rezonancí na daných energiích, případně hodnot účinného průřezu v nich. Ne ve všech případech je rezonance zachycena všemi knihovnami - může dojít k tomu, že její potenciální existenci uvádí pouze jedna knihovna ze zkoumaných. I když jsou rezonance specifické ve své úzké energii, z pohledu jaderných reakcí je významná řádově vyšší hodnota účinného průřezu v nich. Protože ostatní oblasti závislosti účinného průřezu na energii jsou prakticky shodné pro všechny knihovny, lze rozdíly mezi knihovnami (respektive případnými výsledky pomocí nich obdržených) připisovat rozdílům v oblasti rezonancí.

### 4.3 Srovnání výsledků pro FISPACT

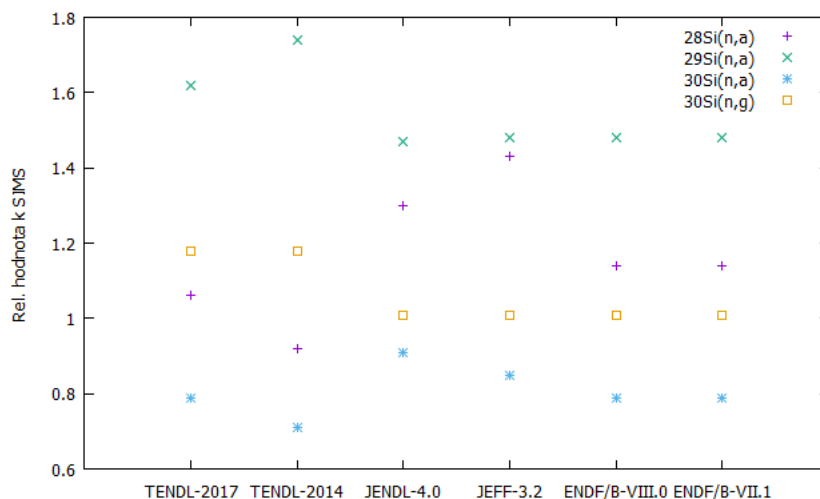
Pro srovnání byly použity výsledky pro program FISPACT-II a spektrum neutronů stanovené pomocí aktivačních detektorů a programu STAYSL. [29] Jedná se o výsledky výpočtu, který byl uskutečněn pro srovnání s experimentem, který je dále popsán v kapitole 5. Srovnávány jsou koncentrace transmutovaných nuklidů a to pro čtyři reakce, které byly popsány v předchozích podkapitolách. Pro výpočty byly použity tyto knihovny: ENDF/B-VII.1, ENDF/B-VIII.0, JEFF-3.2, JENDL-4.0, TENDL-2014, TENDL-2017. Výpočet je pro danou reakci vždy stejně zadán, liší se pouze v použité knihovně.

Výsledné hodnoty pro jednotlivé knihovny jsou uvedeny v Tab. 4.5. Lze si povšimnout, že hodnoty jsou shodné pro knihovny ENDF/B-VII.1 a ENDF/B-VIII.0, ve dvou případech se tyto knihovny shodují i s hodnotami získanými pomocí JEFF-3.2. Naopak knihovny TENDL udávají různé hodnoty v závislosti na použité verzi a knihovna JENDL-4.0 udává také své vlastní hodnoty odlišné od ostatních.

Ve všech případech se vypočtené hodnoty řádově shodují. Pro názornější srovnání vůči referenční hodnotě byly všechny vypočtené hodnoty vyděleny příslušnými hodnotami z provedeného experimentu. Podrobnosti o experimentu jsou dále uvedeny v kapitole 5. V tomto případě se jedná jen o jistou referenční hodnotu, která slouží k porovnání vypočtených hodnot. Nejedná se o hodnocení, která z použitých knihoven se nejvíce blíží "reálnému" výsledku. Relativní hodnoty vůči experimentálním datům jsou uvedeny na Grafu 4.9.

| c [ppm]              | $^{28}\text{Si}(n,\alpha)$ | $^{29}\text{Si}(n,\alpha)$ | $^{30}\text{Si}(n,\alpha)$ | $^{30}\text{Si}(n,\gamma)$ |
|----------------------|----------------------------|----------------------------|----------------------------|----------------------------|
| <b>TENDL-2017</b>    | $7,36 \cdot 10^{-2}$       | $6,00 \cdot 10^{-3}$       | $2,40 \cdot 10^{-3}$       | $4,94 \cdot 10^{-1}$       |
| <b>TENDL-2014</b>    | $8,50 \cdot 10^{-2}$       | $5,56 \cdot 10^{-3}$       | $2,69 \cdot 10^{-3}$       | $4,93 \cdot 10^{-1}$       |
| <b>JENDL-4.0</b>     | $6,02 \cdot 10^{-2}$       | $6,58 \cdot 10^{-3}$       | $2,08 \cdot 10^{-3}$       | $5,72 \cdot 10^{-1}$       |
| <b>JEFF-3.2</b>      | $5,46 \cdot 10^{-2}$       | $6,56 \cdot 10^{-3}$       | $2,24 \cdot 10^{-3}$       | $5,72 \cdot 10^{-1}$       |
| <b>ENDF/B-VIII.0</b> | $6,84 \cdot 10^{-2}$       | $6,56 \cdot 10^{-3}$       | $2,42 \cdot 10^{-3}$       | $5,72 \cdot 10^{-1}$       |
| <b>ENDF/B-VII.1</b>  | $6,84 \cdot 10^{-2}$       | $6,56 \cdot 10^{-3}$       | $2,42 \cdot 10^{-3}$       | $5,72 \cdot 10^{-1}$       |

Tabulka 4.5: Vypočtené hodnoty koncentrace pomocí programu FISPACT-II pro jednotlivé knihovny jaderných dat



Graf 4.9: Relativní hodnoty vypočtených hodnot vůči experimentální hodnotě pro jednotlivé reakce a použité knihovny jaderných dat

V rámci knihoven jsou nejvíce konzistentní výsledky pro radiační záchyt na  $^{30}\text{Si}$ , u ostatních reakcí se některé knihovny odlišují výrazněji. Reakce  $(n,\alpha)$  na  $^{30}\text{Si}$  i stejná reakce na  $^{29}\text{Si}$  mají o něco větší odchylky - u znázorněných relativních hodnot je rozdíl mezi maximální a minimální uvedenou hodnotou 0,21, respektive 0,27. Největší rozdíl těchto hodnot je pro poslední reakci -  $(n,\alpha)$  na  $^{28}\text{Si}$  - a činí 0,51. V tomto případě se výrazně odlišují knihovny JENDL-4.0 a JEFF-3.2.

Toto srovnání názorně ukazuje rozdíly v knihovnách jaderných dat uvedené pro konkrétní výpočet. Rozdíly pro některé reakce mohou být značné - v některých případech se výsledky mohou lišit až o 50 %, což je třeba brát v úvahu při provádění výpočtů. Zároveň se mohou vyskytnout rozdíly mezi výsledky, i když z pouhého náhledu na průběh účinného průřezu se může zdát, že jsou pro jednotlivé knihovny velmi podobné. U prahových reakcí může hrát značnou roli i výraznější posun hodnoty prahu - v případě knihovny JENDL-4.0 je toto patrné u reakcí  $(n,\alpha)$  na  $^{28}\text{Si}$  a  $^{30}\text{Si}$ , kdy tato knihovna udává vyšší prah než ostatní použité knihovny, a následně se výrazněji odlišuje svými vypočtenými hodnotami pro tyto reakce.

## 5 Monte Carlo N-Particle Transport Code

Monte Carlo N-Particle Transport Code (MCNP) je výpočetní kód vyvinutý v Los Alamos National Laboratory zaměřený na analýzu a simulaci transportu neutronů a záření gama a založený na metodě Monte Carlo. I když je primárně určen pro simulaci neutrálních částic a na produkty z případných interakcí s nimi (například sekundární gama záření), je schopen modelovat i nabitě částice (elektrony, protony), případně i jiné (neutrino, miony, různé antičástice,...). Nicméně v aplikacích se MCNP používá především v neutronové fyzice, v částicové fyzice se používají jiné výpočetní kódy. Mezi časté konkrétní aplikace patří reaktorové výpočty, simulace štěpení, výpočty kritičnosti, radiační ochrana - výpočty stínění.

MCNP je založen na programovacím jazyku Fortran 90, nicméně po uživateli nevyžaduje žádnou znalost programovacího jazyka. Je vyvíjen od konce 50. let a za tu dobu se objevilo mnoho různých verzí. Zpočátku byl výlučně zaměřen na neutronové aplikace, jiné částice, včetně možnosti simulace těžkých iontů, přinesl program Monte Carlo N-Particle eXtended (MCNPX). Mnou použitá verze, MCNP6.2, v sobě zahrnuje jak MCNPX, tak i předchozí verzi MCNP5. [30]

### 5.1 Vstupní soubor

Zadání MCNP je ve formě vstupního souboru, který má jasně danou strukturu. Sestává z několika částí, takzvaných karet. Nejprve je třeba správně definovat geometrii úlohy. To se děje na prvních dvou kartách. První slouží k definování buněk, u kterých je třeba zadat jejich číslo, pozici vůči později zdefinovaným plochám, importance vůči sledovaným částicím, materiál, hustota materiálu, případně další atributy. Zároveň platí, že pro úlohu je nutné, aby celý prostor byl pokryt buňkami - z toho důvodu se mimo sledovanou úlohu umísťuje buňka vyplňující okolní prostor (void), s nulovou importancí vůči všem sledovaným typům částic - tedy, pokud do ní v částice vletí, pro výpočet zanikne.

V druhé kartě se definují samotné plochy. MCNP nabízí různé typy ploch, kromě jednoduchých jako je rovina, kulová plocha, válcová plocha, lze definovat i kvádry, krychle, válce a jiné. Lze tedy použít dva přístupy - buď zdefinovat větší množství základních prvků, například rovin, mezi kterými definovat buňku, či použít jednu plochu, která bude ale vlastně třírozměrná - například kvádr místo definování šesti různých ploch. Co se týče vztahu mezi buňkami a plochami, buňky je nutno vůči plochám specifikovat. Každá plocha rozděluje prostor na kladnou a zápornou část (vůči ní). Kladná je "vně", záporná "uvnitř". Známénko je tedy třeba pro správnou definici pozice buňky.

Třetí karta slouží k samotnému nastavení výpočtu. Zadávají se zde materiály - respektive jejich izotopické složení, hustoty jsou zadány u jednotlivých buněk. Důležitým atributem je dále určení typu sledovaných částic (fotony, neutrony, elektrony) - pokud není určeno jinak, program simuluje transport neutronů. Dále se zde uvádí žádaný počet historií, energetické či jiné cutoffy.

Zároveň jsou tam definovány dva důležité prvky - zdroj a tally. Zdroje lze definovat s různými geometriemi (bodový, plošný, objemový), tak i fyzikálními atributy

včetně možnosti kritického zdroje pro reaktorové aplikace. Tally plní úlohu detektorů. Zaznamenají jednotlivé částice a jejich příspěvky vůči zadanému povrchu či buňce. V základním nastavení registrují počet částic, příkon fluence či fluenci energie. Každou tally lze již v zadání modifikovat, tedy použít přepočtení, díky kterému jako výsledek obdržíme například kermu či dávku. Mesh tally pak umožňují sledovat i prostorovou distribuci (emitovaných částic, průměrné fluence, deponované energie) v zadané síti, případně lze využít rentgenografickou tally. Obecně MCNP umožňuje sledování mnoha veličin a jejich případný okamžitý přepočtení, stejně tak lze výsledky z tally zobrazit v integrovaném grafickém modulu či exportovat do jiných formátů pro následné zobrazení v jiných programech (například gnuplot).

## 5.2 Výstupní soubor

MCNP vrací výsledky výpočtu ve formě výstupního souboru, který obsahuje přepis vstupního souboru, další parametry načtené pro výpočet, některé průběžné výsledky, pokud je tak žádáno na specifických vstupních kartách, výsledné hodnoty tally, upozornění na možné chyby a další. [31]

Při použití tally také výstupní soubor obsahuje informace o statistických testech, kterým jsou výsledky podrobeny, a jejich splnění. Statistické testy jsou důležité z hlediska posouzení přesnosti obdrženého výsledku, nicméně posouzení na vhodnosti použití výsledku je vždy na uživateli. V některých případech je také vhodné používat přísnější kritéria na statistické testy, než jaké jsou MCNP doporučeny. [32]

Kritéria a jednotlivé statistické testy vychází ze statistických základů metody Monte Carlo a skórování daných veličin. Hodnotí se při nich přesnost obdrženého výsledku (střední hodnoty), ne správnost - výpočet může být zatížen systematickou chybou, která může způsobit, že ačkoliv je obdržen přesný výsledek (s nízkou hodnotou standardní odchylky), může se od reálné hodnoty výrazně lišit. [33]

Přehled statistických testů a kritérií je uveden v Tab. 5.1, kde  $N$  označuje počet historií/částic. Ze základních statistických veličin je určena střední hodnota a standardní odchylka. Další statistické testy slouží k posouzení kvality těchto dvou veličin.

| Statistický test    |                  | Kritérium                       |
|---------------------|------------------|---------------------------------|
| Střední hodnota     | chování          | nemonotónní v závislosti na $N$ |
| Standardní odchylka | hodnota          | $< 0,10$                        |
|                     | pokles           | ano                             |
|                     | rychlost poklesu | $1 / \sqrt{N}$                  |
| VOV                 | hodnota          | $< 0,10$                        |
|                     | pokles           | ano                             |
|                     | rychlost poklesu | $1/N$                           |
| FOM                 | hodnota          | konstantní v závislosti na $N$  |
|                     | chování          | nemonotónní v závislosti na $N$ |
| Slope               | hodnota          | $\geq 3,00$                     |

Tabulka 5.1: Přehled statistických testů v MCNP a kritérií jejich splnění

Variance of the variance (VOV) slouží k odhadu relativního rozptylu odhadované střední hodnoty - jedná se o měřítko relativní statistické nejistoty této veličiny. Oproti standardní odchylce je citlivější na fluktuace velkých příspěvků do tally. [33] [32]

Figure of merit (FOM) charakterizuje chování standardní odchylky  $R$ . Je definována předpisem

$$FOM = \frac{1}{R^2 T} \quad (5.1)$$

kde  $T$  označuje čas výpočtu, přičemž platí  $T \sim N$ . Definice FOM tedy vychází z požadavku na charakter poklesu hodnoty standardní odchylky. FOM musí být přibližně konstantní - s výjimkou začátku výpočtu. Charakterizuje efektivnost výpočtu a lze z ní určit čas potřebný k dosažení určené hodnoty  $R$ . [33] [32]

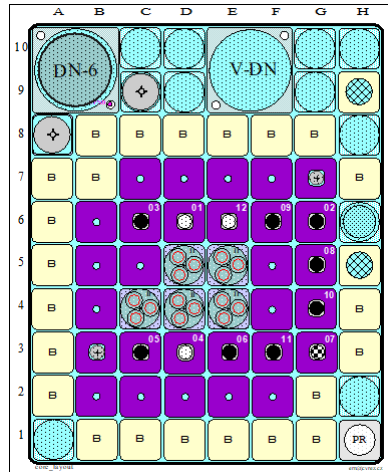
Slope vychází ze vzorkování funkce hustoty pravděpodobnosti. V tomto případě se vyšetřuje především chování pro velké příspěvky do tally a dostatečné vzorkování tally. Slope vychází z fitu funkce hustoty pravděpodobnosti a její hodnoty leží v intervalu 0 až 10, přičemž pro splnění statistického testu je třeba dosáhnout hodnoty vyšší než 3. Nulová hodnota znamená, že tally obsahuje nedostatečný počet bodů pro výpočet, obecné nesplnění kritéria značí nedostatečné navzorkování oblasti s největšími příspěvky do tally. Nejlepší skóre naopak značí, že sto největších příspěvků do tally má rozptyl menší než 1 %. [33] [32]

### 5.3 Reaktor LVR-15

Pro výzkumný reaktor LVR-15 je v MCNP sestaven základní vstup, který je možno modifikovat pro použití pro danou kampaň. Ve vstupu se pro danou kampaň modifikuje rozložení aktivní zóny, jednotlivé prvky, které se mění v závislosti na aktuálních potřebách (ozařování, experimenty), poloha regulačních tyčí, použité palivo a jeho aktuální vyhoření. Podstata programu MCNP také dovoluje přidat libovolné tally, které umožní sledování požadovaných veličin v určeném místě (například v ozařovacím kanálu reaktoru).

V praxi je kampaň (trvajících obvykle 2 až 3 týdny) rozdělena do jednotlivých fází (délka v dnech), které se od sebe obvykle odlišují složením aktivní zóny. Jedná se zpravidla o změny v obsazení ozařovacích prvků, poloha paliva se příliš nemění. Zároveň lze od sebe odlišit i jednotlivé kroky dané fáze, které se pak liší polohou regulačních tyčí a aktuálním vyhořením paliva. Pro praktické použití se výpočty provádějí pro danou fázi pouze pro jeden vybraný krok, obvykle volený ze středu fáze.

Rozložení prvků v aktivní zóně je znázorněno v kartogramech. Ukázka kartogramu je na Obrázku. 5.1.



Obrázek 5.1: Ukázka kartogramu aktivní zóny pro třetí fázi kampaně proběhlé od 16.7. do 7.8 2018

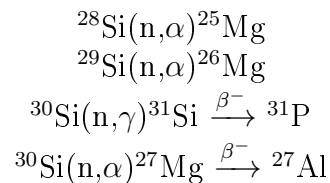
Kartogramy v sobě nesou informaci pouze o rozložení aktivní zóny. Je v nich znázorněno rozložení paliva, stejně jako informace, zda se jedná o šesti- či osmi-proutkové palivo; rozložení beryliových bloků či ozařovacích kanálů. Samotný model reaktoru je ale obsáhlejší a obsahuje i prvky mimo aktivní zóny. Tyto se ale pro různé výpočty nemění a zůstávají beze změny.

## 5.4 Výsledky výpočtu pomocí MCNP

V praxi lze program MCNP použít pro odhad výsledků experimentu, konkrétně pro transmutační detektory lze pomocí něj odhadnout obdrženou koncentraci přeměněného stabilního nuklidu. Dílčím úkolem této práce je porovnat výsledky z reálného experimentu s výsledky obdržených pomocí výpočtů v MCNP.

Experiment se zabíral využitím křemíku jako transmutačního detektoru. Křemík byl ozařován po celou dobu jedné kampaně, která proběhla od 16.7. do 7.8. 2018. Kus křemíku o rozměrech 0,5 mm x 10 mm x 10 mm byl umístěn do ozařovacího kanálu, který je v kartogramu umístěn na pozici H5. Křemík měl přírodní složení, tedy 92,223 %  $^{28}\text{Si}$ , 4,685 %  $^{29}\text{Si}$  a 3,092 %  $^{30}\text{Si}$ . [34] [29]

Pro křemík byly zkoumány následující reakce:



Všechny nuklidy vzniklé v těchto reakcích jsou stabilní. Všechny (n,  $\alpha$ ) reakce na křemíku mají práh řádu jednotky MeV - přesné hodnoty jsou uvedeny v kapitole 3. Pro beta rozpady dále platí, že poločas rozpadu  $^{31}\text{Si}$  činí 157,3 minut, pro  $^{27}\text{Mg}$  pak 9,458 minut. [28]

Provedený experiment byl zaměřen na porovnání výsledků obdržných s využitím transmutačních detektorů s výsledky získaných pomocí aktivačních detektorů a výpočetního programu FISPACT-II. Transmutační detektory byly zhotoveny z křemíku, germania a niklu a byly vyhodnoceny pomocí hmotnostní spektrometrie sekundárních iontů. Aktivační detektory pak z titanu, železu, niklu a kobaltu. Pro výpočty v programu FISPACT-II bylo použito několik knihoven, s ohledem na rozdíly v hodnotách účinných průřezů. [29]

Pro výpočet v programu MCNP byl do příslušného ozařovacího kanálu přidán křemík s požadovaným přírodním složením. Pro tento prvek byl pak použit výpočet s pomocí tally typu 4, která zaznamenává fluenci průměrovanou přes příslušnou buňku. Zadání pak dále dovoluje ji dále modifikovat. Pro potřeby výpočtu byly tally doplněny o kartu FM, která dovoluje vypočítat libovolnou veličinu  $X$  v následující formě:

$$X = C \int \phi(E)R_m(E)dE \quad (5.2)$$

kde  $\phi(E)$  je fluence (částice/cm<sup>2</sup>),  $R_m(E)$  představuje operátor funkce z knihoven MCNP pro účinné průřezy, případně specificky určené hodnoty,  $C$  je libovolná konstanta, která může sloužit k normalizaci. [31]

Pro účely výpočtu byly karty FM použity k tomu, aby skórované veličiny byly pro daný materiál přenásobeny účinným průřezem sledované reakce. Pro každé zadání tally byl jako materiál použit čistý izotop pro danou reakci (buňka naproti tomu obsahovala křemík s přírodním složením). Hodnoty jednotlivých tally tedy již v sobě zahrnují účinný průřez.

Hodnota samotné tally udává počet neutronů na jednotku objemu za jednotku času a na jednu zdrojovou částici. Při využití karty FM je ještě hodnota přenásobena barny (výchozí jednotkou MCNP pro účinné průřezy).

Z hodnot tally (doplněných o kartu FM) lze vypočítat reakční rychlost následujícím způsobem:

$$RR = T_{FM} \cdot N \cdot 10^{-24} \quad (5.3)$$

kde  $T_{FM}$  je hodnota tally s kartou FM,  $N = 7,575 \cdot 10^{17}$  je počet emitovaných neutronů za sekundu potřebných v reaktoru LVR-15 k dosažení výkonu 10 MWt a  $10^{-24}$  zohledňuje převod z barnů na cm<sup>2</sup>. Reakční rychlost je tedy normována na počet neutronů v soustavě s uvažovaným výkonem reaktoru 10 MWt.

Výsledná koncentrace  $c$  transmutovaného nuklidu se pak z reakční rychlosti obdrží pomocí předpisu:

$$c = RR \cdot t \cdot V \quad (5.4)$$

kde  $t$  označuje celkový čas ozařování a  $V$  objem ozařovaného vzorku.

Pro celkový výpočet jsou nejprve vypočteny koncentrace z jednotlivých fází (pomocí odpovídajících časů trvání fáze), tyto koncentrace jsou sečteny a je obdržena celková koncentrace pro celou dobu ozařování. Při tomto postupu je zanedbán postupný úbytek terčových nuklidů, který je způsoben reakcemi vedoucími na stabilní nuklidy - a to s ohledem na malé hodnoty výsledných koncentrací (řádově ppm).

Jednotlivé časy trvání fází, které byly k výpočtu použity, jsou uvedeny v Tab. 5.2 a byly obdrženy zpětně na základě informací o výkonu reaktoru LVR-15.



| Fáze    | 1    | 2    | 3    | 4    | 5    | 6    | 7    | 8    | Celkově      |
|---------|------|------|------|------|------|------|------|------|--------------|
| T [den] | 1,92 | 2,37 | 3,33 | 2,01 | 3,01 | 2,01 | 5,00 | 2,01 | <b>21,65</b> |

Tabulka 5.2: Doby trvání T jednotlivých fází během ozařovací kampaně

Jednotlivé výsledky z programu MCNP byly obdrženy i s relativními chybami určených programem. S ohledem na statistické zpracování byla snaha obdržet co nejmenší hodnoty relativních chyb v jednotlivých fázích. Toto se nepodařilo u všech tally - chyby u tally, která počítala reakci  $^{30}\text{Si}(n,\alpha)^{27}\text{Mg}$  překračovaly jednotlivé chyby 10 %. Toto se dělo i přes vysoký počet cyklů - výpočet v MCNP byl zadán pomocí karty kcode a to na hodnoty 1500000 historií na cyklus, přičemž počet neaktivních cyklů byl stanoven na 50 a celkový počet cyklů na 700. Vysoký počet historií na cyklus je podpořen manuálem programu, který doporučuje velké počty neutronů pro reaktorové výpočty. [31]

Co se týče ostatních statistických testů vyhodnocených programem, v případě již zmíněné reakce  $(n,\alpha)$  na  $^{30}\text{Si}$  byla u dvou fází obdržena vyšší hodnota VOV - 0,13 u druhé fáze a 0,11 u čtvrté fáze. Tentýž statistický test nevycházel u reakce  $^{30}\text{Si}(n,\gamma)^{31}\text{Si}$  a to u všech počítaných fází. Hodnoty VOV se v tomto případě pohybovaly od 0,1 do 0,46. U této reakce se stejně tak objevovaly nižší hodnoty slope - všechny dosahovaly obdobných čísel, průměr činil 1,74. Ostatní statistické testy, včetně charakteru poklesu VOV, vyšly pro tuto reakci správně. S ohledem na to, že ostatní tally v těch samých výpočtech vyšly ve zmíněných testech bez problémů, lze polemizovat, zda svou roli u této reakce nehraje zkoumaná reakce a rezonanční charakter účinného průřezu. Násobení hodnotami účinného průřezu, jehož hodnoty v oblasti rezonancí se mohou výrazně lišit i pro blízké energie, by mohlo vnášet výslednou vyšší hodnotu VOV. Jedná se ale jen o domněnku, kterou by bylo třeba dále prověřit - například odlišným zadáním výpočtu, či zadání výpočtů jiné reakce s obdobnou závislostí účinného průřezu.

Výsledné chyby stanovení koncentrací pomocí MCNP byly stanoveny pomocí výpočtů, kdy byly pomocí získaných relativních chyb určeny absolutní chyby výpočtu. Následně byly stanoveny maximální a minimální hodnoty  $T_{FM}$ , pro obě z nich byly vypočtené maximální  $c_{max}$  a minimální  $c_{min}$  výsledné hodnoty koncentrace. Původně určená koncentrace je pak jejich průměrem a odečtením lze získat absolutní chybu.

Výsledné hodnoty koncentrace  $c$  a relativní chyby jsou uvedeny v Tab. 5.3, přičemž uvedené relativní chyby v tomto případě vychází pouze ze statistických chyb výpočtu pomocí MCNP a nejsou v nich zahrnuty další možné zdroje nejistot.

| Izotop           | Reakce       | $c_{min}$ [ppm]      | $c_{max}$ [ppm]      | $c$ [ppm]            | Chyba [%] |
|------------------|--------------|----------------------|----------------------|----------------------|-----------|
| $^{28}\text{Si}$ | $(n,\alpha)$ | $5,59 \cdot 10^{-3}$ | $6,17 \cdot 10^{-3}$ | $5,88 \cdot 10^{-3}$ | 5,0       |
| $^{29}\text{Si}$ | $(n,\alpha)$ | $1,07 \cdot 10^{-2}$ | $1,12 \cdot 10^{-2}$ | $1,09 \cdot 10^{-2}$ | 2,7       |
| $^{30}\text{Si}$ | $(n,\gamma)$ | $7,77 \cdot 10^{-1}$ | $8,64 \cdot 10^{-1}$ | $8,20 \cdot 10^{-1}$ | 5,3       |
| $^{30}\text{Si}$ | $(n,\alpha)$ | $2,01 \cdot 10^{-4}$ | $2,54 \cdot 10^{-4}$ | $2,27 \cdot 10^{-4}$ | 11,6      |

Tabulka 5.3: Výsledné hodnoty koncentrace  $c$  transmutovaných nuklidů, relativní chyba a maximální a minimální hodnota výsledné koncentrace

S ohledem na další srovnání koncentrací je nutno uvést, že u výpočtu pomocí MCNP jsou u izotopu  $^{30}\text{Si}$  počítány pouze jaderné reakce - následný beta rozpad není v programu zahrnut. Zároveň ale předpokládáme, že nestabilní izotopy, které v jaderné reakci vzniknou, se přemění a koncentrace výsledných nuklidů bude stejná jako nestabilních mezičlánků. Problém by v této úvaze mohl vzniknout v případě, kdyby prostřední člen měl delší poločas rozpadu, nicméně v tomto případě vznikají izotopy s krátkými poločasy rozpadu.

## 5.5 Srovnání výsledků experimentu s výsledky z MCNP

Experiment proběhl v období od 16.7. do 17.8. 2018, kdy v průběhu jedné kampaně byl ozářen křemík o rozměrech 0,5 mm x 10 mm x 10 mm. Výsledné koncentrace transmutovaných nuklidů byly zjištěny za využití hmotnostní spektrometrie sekundárních iontů (dále SIMS hodnoty).

Pro srovnání s experimentem byl v první řadě použit program FISPACT-II a spektrum neutronů stanovené pomocí aktivačních detektorů a programu STAYSL (dále FISPACT hodnoty). [29]. Program FISPACT-II nabízí možnost použití různých knihoven účinných průřezů. Pro srovnání s výpočty z MCNP (dále MCNP hodnoty) byly použity výsledky z knihovny ENDF/B-VII.1, přičemž MCNP používá knihovnu ENDF/B-VII.0 - účinné průřezy pro sledované reakce na křemíku se v těchto knihovnách neliší žádným výrazným způsobem, který by mohl výrazně ovlivnit vypočtené hodnoty. V [29] jsou pro srovnání uvedeny výsledky obdržené pomocí knihovny TENDL-2014.

V Tab. 5.4 jsou uvedeny výsledné koncentrace v *ppm* pro všechny tři metody a jejich poměrové srovnání. V případě reakce  $(n,\alpha)$  na  $^{30}\text{Si}$  není uvedeno srovnání MCNP se SIMS (důvod je dále diskutován).

| c [ppm]             | $^{28}\text{Si}(n,\alpha)$ | $^{29}\text{Si}(n,\alpha)$ | $^{30}\text{Si}(n,\gamma)$ | $^{30}\text{Si}(n,\alpha)$ |
|---------------------|----------------------------|----------------------------|----------------------------|----------------------------|
| <b>MCNP</b>         | $5,88 \cdot 10^{-3}$       | $1,09 \cdot 10^{-2}$       | $8,20 \cdot 10^{-1}$       | $2,27 \cdot 10^{-4}$       |
| <b>SIMS</b>         | $7,80 \cdot 10^{-2}$       | $9,70 \cdot 10^{-3}$       | $5,80 \cdot 10^{-1}$       | $1,90 \cdot 10^{-3}$       |
| <b>FISPACT</b>      | $6,84 \cdot 10^{-2}$       | $6,56 \cdot 10^{-3}$       | $5,72 \cdot 10^{-1}$       | $1,38 \cdot 10^{-4}$       |
| <b>MCNP/SIMS</b>    | 0,075                      | 1,129                      | 1,414                      | -                          |
| <b>MCNP/FISPACT</b> | 0,086                      | 1,669                      | 1,433                      | 1,653                      |
| <b>FISPACT/SIMS</b> | 0,877                      | 0,676                      | 0,987                      | -                          |

Tabulka 5.4: Přehled výsledných koncentrací obdržených z MCNP, experimentu a výpočtu pomocí FISPACT-II a aktivačních detektorů a jejich srovnání. Všechny koncentrace jsou uvedeny v *ppm*.

Co se týče samotného srovnání, rozdíl mezi MCNP a SIMS hodnotami je přijatelný s výjimkou reakce  $(n,\alpha)$  na  $^{28}\text{Si}$ . Důvod velkého rozdílu pro tuto reakce dosud nebyl zjištěn.

V případě reakce  $(n,\alpha)$  na  $^{30}\text{Si}$  jsou použité jen hodnoty, které počítají pouze s danou reakcí - ty z MCNP a hodnoty z FISPACTu, kdy je výsledná koncentrace vztažená pro čistý  $^{30}\text{Si}$  a vynásobená koncentrací tohoto izotopu v přírodním křemíku. Při použití tohoto srovnání pak obdržíme podobný poměr pro hodnoty MCNP/FISPACT jako pro reakci  $^{29}\text{Si}(n,\alpha)$ . Nebylo použito srovnání se SIMS hodnotami a to z toho důvodu, že výsledný transmutovaný nuklid by vzniká i v dalších reakcích (konkrétně  $^{28}\text{Si}(n,2n)$  a  $^{28}\text{Si}(n,2d)$ ) - ty se projeví i kvůli výrazně větší koncentraci  $^{28}\text{Si}$  ve vzorku.

U zbylých dvou reakcí, kdy odchylky nejsou tak vysoké, došlo k nadhodnocení vzniklé koncentrace. Nadhodnocení je v tomto případě ale méně výrazné než podhodnocení v předešlém případě (odchylka u  $^{29}\text{Si}$  činí 13 %, u  $^{30}\text{Si}$  pak 41 %). Částečnou roli by zde mohl hrát fakt, že v případě výpočtu MCNP je uvažován konstantní výkon po celou dobu - ten ovlivňuje počet neutronů potřebný k dosažení požadovaného výkonu. Zpřesnění by zde mohla přinést úprava výpočtu s ohledem na lehce nekonstantní výkon v průběhu kampaně. Nutno podotknout, že závislost koncentrace na výkonu je uvažována pouze u výpočtu pomocí MCNP, neboť je z něj odvozován počet neutronů v soustavě.

S výjimkou reakce na  $^{29}\text{Si}$  lze také říci, že pro MCNP vychází srovnání s výsledky experimentu obdobně jako pro výsledky obdržené pomocí FISPACT. Částečnou roli v tom může hrát fakt, že u této reakce vychází nejvyšší odchylka při srovnání FISPACT/SIMS - v tomto případě lze tvrdit, že MCNP dosahuje lepší shody se SIMS (při zvolení stejných knihoven). U ostatních reakcí dochází k tomu, že výpočet pomocí FISPACT se od experimentálně zjištěných koncentrací liší méně, v případě reakce  $(n,\gamma)$  na  $^{30}\text{Si}$  lze dokonce výsledky považovat za téměř shodné.

Vyšší odchylky získané pomocí MCNP mohou být souhrnně způsobeny různými příčinami. Jak již bylo řečeno, v případě podhodnocení odezev se odchylka může objevit z toho důvodu, kdy k transmutaci přispívají i další jaderné reakce. V případě jejich vyhledání je možné je doplnit jako další tally do výpočtu, otázkou pak zůstává fakt, jestli budou pomocí MCNP spočítatelné s přijatelnou statistickou chybou. To zvláště platí v případě, kdy by k výsledné koncentraci přispívalo více reakcí, každá s nízkou pravděpodobností, dohromady by ale tvořily větší odchylku.

I ze samotných statistických chyb, uvedených v Tab. 5.3, je vidět částečná závislost na účinném průřezu, respektive pravděpodobnosti dané reakce. Reakce  $(n,\alpha)$  na  $^{30}\text{Si}$  má největší statistickou chybu, současně pak nejvyšší práh reakce (z využitých reakcí). Ten pak ovlivňuje počet reakcí, respektive počet historií, které jsou do tally počítány a které ovlivňují statistické výsledky. Co se týče zbylých  $(n,\alpha)$  reakcí, tak ta probíhající na  $^{29}\text{Si}$  má nižší statistickou chybu a zároveň i nižší práh reakce, což tuto hypotézu potvrzuje. Toto je pak případně třeba zohlednit při počítání dalších reakcí s nižší pravděpodobností výskytu (ať kvůli velmi nízkým hodnotám účinného průřezu či kvůli vysokým hodnotám prahu reakce).

## Závěr

V první části byla nastíněna problematika transmutačních detektorů v teoretické rovině, byl uveden princip těchto detektorů a seznam možných použitelných reakcí pro tyto detektory. Shrnuje výhody i nevýhody detektorů, stejně tak požadavky na používané reakce a materiály.

Další část práce se zabývala knihovnamí jaderných dat. S ohledem na rozsah práce bylo uvedeno srovnání pro čtyři jaderné reakce na křemíku, které se dále používaly i pro srovnání ve výpočetní části práce. Kromě srovnání hodnot účinných průřezů byly uvedeny i jejich nejistoty a závislost na použité knihovně jaderných dat.

Pro již proběhlý experiment byl proveden výpočet pomocí programu MCNP. Výsledky z něj obdržené byly dále srovnány s výsledky experimentu a taktéž s výsledky z programu FISPACT-II, který využívá znalosti neutronového spektra obdrženého pomocí aktivačních detektorů. Cílem bylo zjistit, zda je pro transmutační detektory možné použití výpočtu pomocí MCNP, případně za jakých podmínek.

Souhrnně lze říci, že MCNP představuje nástroj, pomocí kterého lze v určitých případech odhadnout výsledné koncentrace transmutovaných nuklidů. Do budoucna je ale třeba zohlednit i detaily provozu reaktoru a rozšířit výpočet na více reakcí, které by teoreticky mohly na transmutovaný nuklid vést. Zároveň je třeba lépe prozkoumat problematiku  $(n,\gamma)$  při použití FM karty při výpočtu tally a případně u reakcí s malou pravděpodobností výskytu zohlednit dobu výpočtu, případně hledat metody urychlení výpočtu. Lze také uvažovat o provedení výpočtu v MCNP s využitím jiné knihovny než ENDF/B-VII.0 a to z důvodu rozdílu při použití FISPACT a experimentálně zjištěných koncentrací. Lze například uvažovat o využití knihovny TENDL-2014, pro kterou srovnání s experimentem vychází lépe.

## Reference

- [1] CODATA value: neutron mass. *Fundamental Physical Constants* [online]. Gaithersburg: National Institute of Standards and Technology [cit. 2019-07-31]. Dostupné z: [https://physics.nist.gov/cgi-bin/cuu/Value?mn—search\\_for=neutron+mass](https://physics.nist.gov/cgi-bin/cuu/Value?mn—search_for=neutron+mass)
- [2] CHEN, Sophia. Sorting Out the Neutron Lifetime. *APS News: A Publication of the American Physical Society*. 2019, (Series II, Vol. 28, No. 7), 3. ISSN 1058-8132.
- [3] HAYES, Christopher B. Neutron Beta-Decay. In: *THEORETICAL HIGH ENERGY PHYSICS Strings and Quantum Gravity* [online]. Knoxville: The University of Tennessee, 2012 [cit. 2019-09-03]. Dostupné z: <http://aesop.phys.utk.edu/ph611/2012/projects/Hayes.pdf>
- [4] The characteristics and capabilities of neutrons. *Paul Scherrer Institut* [online]. Switzerland: Paul Scherrer Institut [cit. 2019-07-31]. Dostupné z: <https://www.psi.ch/en/media/the-characteristics-and-capabilities-of-neutrons>
- [5] Neutron Energy. *Nuclear Power* [online]. c2019 [cit. 2019-09-03]. Dostupné z: <https://www.nuclear-power.net/nuclear-power/reactor-physics/atomic-nuclear-physics/fundamental-particles/neutron/neutron-energy/>
- [6] RÜEGG, Christian. Neutron Scattering. In: *MaNEP Switzerland Network* [online]. Saas Fee: MaNEP Winter School, 2015 [cit. 2019-10-03]. Dostupné z: <https://www.manep.ch/saasfee15/pdf/Ruegg-2x2.pdf>
- [7] LAMARSCH, John R. a Anthony J. BARATTA. *Introduction to Nuclear Reactor Theory*. Third edition. New Jersey: Prentice Hall, 2001. ISBN 0-201-82498-1.
- [8] ASTM Standard E170-17. *Standard Terminology Relating to Radiation Measurements and Dosimetry*. ASTM International, WestConshohocken, PA, 2017.
- [9] ASTM STANDARD E261-16. *Standard Practice for Determining Neutron Fluence, Fluence Rate, and Spectra by Radioactivation Techniques*. West Conshohocken, PA: ASTM International, 2016. DOI: 10.1520/E0261-16.
- [10] MUSÍLEK, Ladislav. *Dozimetrie neutronů*. Praha: České vysoké učení technické, 1998. ISBN 80-010-1750-8.
- [11] *Národní zpráva České republiky pro účely Úmluvy o jaderné bezpečnosti*. Praha: Státní úřad pro jadernou bezpečnost, 2019. č.j. SÚJB/JB/3278/2019.
- [12] Reaktor LVR-15. *Reaktory CVŘ: Infrastruktura CVŘ* [online]. Řež: Centrum výzkumu Řež, 2020 [cit. 2020-02-02]. Dostupné z: <http://reaktory.cvrez.cz/reaktor-lvr-15/>
- [13] KNOLL, Glenn F. *Radiation Detection and Measurement*. Third edition. Wiley India Pvt., 2009. ISBN 9780471073383.

- [14] VIERERBL, L., Z. LAHODOVÁ, V. KLUPÁK, F. SUS, J. KUČERA, P. KŮS a M. MAREK. Transmutation detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. 2011, **632**(1), 109-111. DOI: 10.1016/j.nima.2010.12.142. ISSN 01689002. Dostupné také z: <https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0168900210029220>
- [15] GERLACH, D.C., J.B. CLIFF, D.E. HURLEY, B.D. REID, W.W. LITTLE, G.H. MERIWETHER, A.J. WICKHAM a T.A. SIMMONS. Secondary ionization mass spectrometric analysis of impurity element isotope ratios in nuclear reactor materials. *Applied Surface Science*. 2006, **252**(19), 7041-7044. DOI: 10.1016/j.apsusc.2006.02.221. ISSN 01694332. Dostupné také z: <https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0169433206005435>
- [16] CLIFF, J.B., D.P. FRANK, C. GESH, et al. *Isotope Ratio Method Analysis of the Ford Nuclear Reactor*. TRTR-IGORR 2005, September 12—16, 2005: Joint Meeting Of The National Organization of Test, Research, and Training Reactors And The International Group on Research Reactors.
- [17] GESH, Christopher J. *A Graphite Isotope Ratio Method: A Primer on Estimating Plutonium Production in Graphite Moderated Reactors*. Pacific Northwest National Laboratory Richland, Washington, 2004, , 18. DOI: 10.2172/15010619.
- [18] Cross Section Evaluation Working Group (CSEWG). *National Nuclear Data Center* [online]. Brookhaven National Laboratory [cit. 2020-07-06]. Dostupné z: <https://www.nndc.bnl.gov/csewg/>
- [19] ENDF/B-VIII.0 Evaluated Nuclear Data Library. *National Nuclear Data Center* [online]. Brookhaven National Laboratory [cit. 2020-07-06]. Dostupné z: <https://www.nndc.bnl.gov/endl/b8.0/index.html>
- [20] JEFF Nuclear Data Library. *Nuclear Energy Agency* [online]. OECD, 2019 [cit. 2020-07-06]. Dostupné z: <https://www.oecd-nea.org/dbdata/jeff/>
- [21] JENDL. *JAEA Nuclear Data Center* [online]. Nuclear Data Center 2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1195, Japan: Japan Atomic Energy Agency, c1995-2020 [cit. 2020-07-06]. Dostupné z: <https://www.nndc.jaea.go.jp/jendl/jendl.html>
- [22] *TENDL-2019* [online]. Villigen: PSI, 2019 [cit. 2020-07-06]. Dostupné z: [https://tendl.web.psi.ch/tendl\\_2019/tendl2019.html](https://tendl.web.psi.ch/tendl_2019/tendl2019.html)
- [23] ÚJV ŘEŽ, A.S., HUSINEC - ŘEŽ, CZ. Způsob měření dozimetrických veličin. Původce: RNDr. Ladislav Viererbl, CSc. Česká republika. Patentový spis CZ 304 991 B6. 4.2.2015
- [24] TOMANDL, I., L. VIERERBL, P. KUDĚJOVÁ, Z. LAHODOVÁ, V. KLUPÁK a M. FIKRLE. Determination of trace concentrations of transmuted stable nuclides in TMD detectors using PGAA. *Journal of Radioanalytical and*

*Nuclear Chemistry*. 2014, **300**(3), 1141-1149. DOI: 10.1007/s10967-014-3090-5. ISSN 0236-5731. Dostupné také z: <http://link.springer.com/10.1007/s10967-014-3090-5>

- [25] L. VIERERBL, Z. LAHODOVÁ, J. KUČERA, F. SUS, V. KLUPÁK, M. MAREK, Transmutation detector method of neutron fluence measurement. In: *11th Neutron and Ion Dosimetry Symposium*, 12.10. - 16.10. 2009, Kapské město, Jižní Afrika.
- [26] KLUPÁK, Vít, Ladislav VIERERBL, Zdena LAHODOVÁ, Jaroslav ŠOLTÉS, Ivo TOMANDL, Petra KUDĚJOVÁ a A. LYOUSSI. Nickel Foil as Transmutation Detector for Neutron Fluence Measurements. *EPJ Web of Conferences*. 2016, **106**. DOI: 10.1051/epjconf/201610605013. ISSN 2100-014X. Dostupné také z: <http://www.epj-conferences.org/10.1051/epjconf/201610605013>
- [27] KARAMIAN, S. A., N. V. AKSENOV a G. A. BOZHIKOV. Double-neutron capture reaction and natural abundance of <sup>183</sup>W, <sup>195</sup>Pt and <sup>199</sup>Hg isotopes. *Journal of Physics: Conference Series*. 2016, **724**, 5. DOI: 10.1088/1742-6596/724/1/012022. ISSN 1742-6588. Dostupné také z: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1742-6596/724/1/012022>
- [28] CHU, S.Y.F, L.P. EKSTRÖM a R.B. FIRESTONE. The Lund/LBNL Nuclear Data Search: Version 2.0. *Decay data search* [online]. LBNL, Berkeley, USA, 1999 [cit. 2020-04-26]. Dostupné z: <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/>
- [29] LORINCIK, Jan, Ladislav VIERERBL, Vít KLUPÁK, Hana Assmann VRATISLAVSKA, Klara REZANKOVA, Kristina SIHELKA a Ivan ELANTYEV. Quantification of trace amounts of transmuted nuclides in transmutation detectors using SIMS. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. 2020, **959**. DOI: 10.1016/j.nima.2020.163471. ISSN 01689002. Dostupné také z: <https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0168900220300413>
- [30] JAMES, Michael R. MCNPX 2.7.X — New Features Being Developed. *Los Alamos National Laboratory* [online]. Orlando: IEEE/NSS, 2009 [cit. 2019-08-19]. Dostupné z: [https://laws.lanl.gov/vhosts/mcnp.lanl.gov/pdf\\_files/la-ur-09-6788.pdf](https://laws.lanl.gov/vhosts/mcnp.lanl.gov/pdf_files/la-ur-09-6788.pdf)
- [31] WERNER, Christopher J, ed. *MCNP® USER-S MANUAL: Code Version 6.2*. Manual Rev. 0. Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico: Oak Ridge National Laboratory, 2017.
- [32] KLUSOŇ, Jaroslav. Metoda Monte Carlo v radiační fyzice [přednáška]. Praha: FJFI ČVUT v Praze. In: <https://behounek.fjfi.cvut.cz/> [online] [28.6.2020]. Dostupné z: <https://behounek.fjfi.cvut.cz/course/view.php?id=50>
- [33] SHULTIS, J. K. a R. E. FAW. *An MCNP Primer*. Kansas State University: Dept. of Mechanical and Nuclear Engineering, 2006.

- [34] Silicon - Element information, properties and uses. *Periodic Table - Royal Society of Chemistry* [online]. Royal Society of Chemistry, 2020 [cit. 2020-05-17]. Dostupné z: <https://www.rsc.org/periodic-table/element/14/silicon>