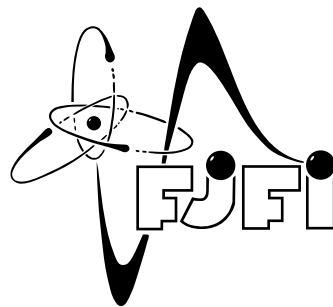


České vysoké učení technické v Praze  
Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská

Katedra jaderných reaktorů

Obor: Jaderné inženýrství



**Aktivační a prahové reakce v poli urychlovačem  
řízeného zdroje rychlých neutronů s  $p + \text{Be}$  reakcí**

**Activation and Threshold Reactions in the Field of  
the Accelerator-Based Fast Neutron Source with  
the  $p + \text{Be}$  Source Reaction**

BAKALÁŘSKÁ PRÁCE

Vypracovala: Kateřina Orságová  
Vedoucí práce: Ing. Milan Štefánik, Ph.D.  
Rok: 2021





## ZADÁNÍ BAKALÁŘSKÉ PRÁCE

Student: **Kateřina Orságová**

Studijní program: Aplikace přírodních věd

Obor: Jaderné inženýrství

Název práce česky: **Aktivační a prahové reakce v poli urychlovačem řízeného zdroje rychlých neutronů s  $p + \text{Be}$  reakcí**

Název práce anglicky: Activation and Threshold Reactions in the Field of the Accelerator-based Fast Neutron Source with the  $p + \text{Be}$  Source Reaction

### Pokyny pro vypracování:

1. Seznamte se s metodou neutronových aktivačních měření s prahovými detektory, se základy jaderné gama spektrometrie a s prací s gama-spektrometrem. Prostudujte základní problematiku účinných průřezů, neutronových spektrálních výtěžků a jaderných dat.
2. Seznamte se s generátory rychlých neutronů NG-2 provozovaných na Ústavu jaderné fyziky AV ČR, které jsou zapojené do soustavy s urychlovačem nabitých částic, zejména s jejich charakteristikami a s výzkumnými činnostmi na nich probíhajícími. Prostudujte problematiku neutronových polí zdrojových reakcí  $p+\text{Be}$  a  $d+\text{Be}$  používaných ve světě s ohledem na možnosti jejich aplikací a využívané energie svazků nabitých částic.
3. Seznamte se s prací s polovodičovým HPGe detektorem Canberra na ÚJF a s obslužným softwarem Genie-2000 a stanovte absolutní detekční účinnost použitého HPGe spektrometrického systému pro zvolené vzdálenosti detektor-vzorek.
4. Pod vedením vedoucího práce navrhnete a zrealizujete ozařovací experiment s vhodnou sadou aktivačních fólií v poli  $p + \text{Be}$  neutronového generátoru s beryliovou terčovou stanicí na ÚJF. Na základě rešeršního přehledu vyberte pro experiment vhodnou energii protonového svazku (např. 22 MeV nebo 24 MeV apod.). Ozářené vzorky změřte pomocí HPGe detektoru a proveďte rozbor alespoň tří prahových reakcí ve zvolených aktivačních materiálech.

## Doporučená literatura:

- [1] Knoll G. F.: Radiation Detection and Measurement, John Wiley & Sons, Inc., USA, 1999, ISBN 0-471-07338-5
- [2] Graves R. G. et al.: Neutron energy spectra of d(49)-Be and p(41)-Be neutron radiotherapy sources, Medical Physics 6 (1970), p. 123-128
- [3] Lone M. A. et al.: Thick target neutron yields and spectral distributions from  ${}^7\text{Li}(d,n)$ ,  ${}^7\text{Li}(p,n)$  and  ${}^9\text{Be}(d,n)$ ,  ${}^9\text{Be}(p,n)$  reactions, Nuclear Instruments and Methods 143 (1977), p. 331-344
- [4] Ibarra A. et al.: The IFMIF-DONES project: preliminary engineering design, Nuclear Fusion 58 (2018), 105002
- [5] Peter R. et al.: Neutron energy spektra of d(49)-Be and p(41)-Be neutron radiotherapy sources, Medical Physics Vol. 6, 123 (1979), p. 123-128
- [6] Štefánik M. et al.: Neutron field study of p(35)+Be source reaction at the NPI Rez, Radiation Physics and Chemistry 155 (2019), p. 294-298

Jméno a pracoviště vedoucího práce:

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

Jméno a pracoviště konzultanta:

**Ing. Jan Štursa**  
Odd. urychlovačů, ÚJF AV ČR, v.v.i.

Datum zadání bakalářské práce:

19.10. 2020

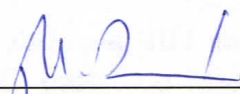
Datum odevzdání bakalářské práce:

7.7. 2021

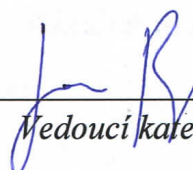
Doba platnosti zadání je dva roky od data zadání.

V Praze dne 19.10. 2020

doc. Ing. Martin Kropík, CSc.

  
\_\_\_\_\_  
Garant oboru

Ing. Jan Rataj, Ph.D.

  
\_\_\_\_\_  
Vedoucí katedry



prof. Ing. Igor Jex, DrSc.

  
\_\_\_\_\_  
Děkan

### **Prohlášení**

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

V Praze dne .....

.....  
Kateřina Orságová

## **Poděkování**

Tímto bych chtěla vyjádřit své upřímné poděkování panu Ing. Milanu Štefánikovi, Ph.D., za nedocenitelnou všestrannou pomoc při tvorbě této bakalářské práce. Děkuji rovněž vedení Ústavu jaderné fyziky AV ČR za umožnění provést v plném rozsahu veškeré experimentální práce i za mimořádně nepříznivé epidemické situace; můj dík patří také konzultantu Ing. Janu Štursovi a celému týmu Oddělení urychlovačů a Oddělení jaderných reakcí za pomoc se zajištěním ozařovacího experimentu.

Experimentální činnosti realizované při řešení bakalářské práce byly podpořeny v rámci projektů CANAM-OP (reg. č. CZ.02.1.01/0.0/0.0/16-003/0001812) a ADAR (reg. č. LTAUSA18198).

Kateřina Orságová

*Název práce:*

**Aktivační a prahové reakce v poli urychlovačem řízeného zdroje rychlých neutronů s  $p + \text{Be}$  reakcí**

*Autor:* Kateřina Orságová

*Studijní program:* Aplikace přírodních věd

*Obor:* Jaderné inženýrství

*Druh práce:* Bakalářská práce

*Vedoucí práce:* Ing. Milan Štefánik, Ph.D.  
KJR FJFI ČVUT v Praze

*Konzultant:* Ing. Jan Štursa  
Oddělení urychlovačů, ÚJF AV ČR, v. v. i.

*Abstrakt:*

Na Ústavu jaderné fyziky Akademie věd České republiky jsou provozovány urychlovačem řízené zdroje rychlých neutronů. V bakalářské práci byly technikou aktivačních fólií zkoumány parametry nového neutronového pole, produkovaného protonovým svazkem o energii 22 MeV na tlustém beryliovém terči. Při experimentu bylo v těsné blízkosti terče ozářeno 11 aktivačních materiálů (Ni, Co, Au, In, Ti, Al, Y, Lu, Fe, Nb, Cu), jejichž spektra byla následně získávána proměřováním na gama spektrometrickém systému s HPGe detektorem Canberra. Náplní bakalářské práce byla analýza spekter hliníkových, zlatých a indiových fólií s důrazem na stanovení reakčních rychlostí pro identifikované aktivační a prahové reakce. V budoucnu bude v navazujících pracích proveden rozbor reakcí na zbylých materiálech a pomocí specializovaných výpočetních kódů bude rekonstruováno neutronové spektrum generátoru. Znalost tohoto spektra výrazně rozšíří výzkumné možnosti pracoviště, neboť poskytne dobře definovaný nástroj pro validaci jaderných dat v rámci programů ITER a IFMIF, studium radiačního poškození nebo neutronovou aktivační analýzu rychlými neutrony.

*Klíčová slova:* urychlovačem řízený zdroj rychlých neutronů, protonový svazek, beryliový terč, technika aktivačních fólií, jaderná gama spektrometrie, reakční rychlost

*Title:*

**Activation and Threshold Reactions in the Field of the Accelerator-Based Fast Neutron Source with the  $p + \text{Be}$  Source Reaction**

*Author:* Kateřina Orságová

*Study Programme:* Applied Sciences

*Branch of Study:* Nuclear Engineering

*Type of Thesis:* Bachelor's Thesis

*Supervisor:* Ing. Milan Štefánik, Ph.D.

Department of Nuclear Reactors FNSPE CTU in Prague

*Consultant:* Ing. Jan Štursa

Department of Accelerators, NPI CAS, p. r. i.

*Abstract:*

At the Nuclear Physics Institute of the Czech Academy of Sciences, accelerator-driven fast neutron sources are operated. In the bachelor's thesis, a neutron field generated by a 22 MeV proton beam on a thick beryllium target was investigated employing the multi-foil activation technique. A set of 11 activation materials (Ni, Co, Au, In, Ti, Al, Y, Lu, Fe, Nb, Cu) was irradiated in close source-to-sample distance and corresponding gamma-ray spectra were measured subsequently using HPGGe Canberra spectrometric system. The spectra of aluminium, gold and indium foils were analysed in the bachelor's thesis with emphasis put on obtaining reaction rates for identified activation and threshold reactions. In future works, analysis of reactions on the remaining materials shall be performed as well as reconstruction of the neutron spectrum utilizing specialized computational codes. Providing a well-defined tool for nuclear data validation within the ITER and IFMIF programmes, radiation damage studies or fast-neutron activation analysis, the reconstructed spectrum will greatly extend the research possibilities of the facility.

*Key Words:*

accelerator-driven fast neutron source, proton beam, beryllium target, multi-foil activation technique, nuclear gamma-ray spectrometry, reaction rate



# Obsah

Seznam veličin	xi
Seznam zkratek	xiii
Seznam obrázků	xv
Seznam tabulek	xv
Úvod	1
<b>I Teorie</b>	<b>3</b>
<b>1 Kinetika aktivačních reakcí</b>	<b>5</b>
1.1 Problematika aktivačních měření . . . . .	5
1.1.1 Neutronová aktivační analýza . . . . .	6
1.1.2 Spektrometrie neutronů . . . . .	7
1.2 Reakční rychlost . . . . .	8
1.2.1 Spektrometrické korekce . . . . .	10
<b>2 Jaderná gama spektrometrie</b>	<b>11</b>
2.1 Interakce gama záření s látkou . . . . .	11
2.1.1 Fotoelektrický jev . . . . .	12
2.1.2 Comptonův rozptyl . . . . .	13
2.1.3 Tvorba elektron-pozitronových párů . . . . .	13
2.2 Spektrometry gama záření . . . . .	15
2.2.1 Účinnostní kalibrace gama spektrometrického řetězce . . . . .	17
<b>3 Laboratoře s urychlovačem řízenými zdroji neutronů</b>	<b>19</b>
3.1 Ústav jaderné fyziky AV ČR . . . . .	21
3.2 Pracoviště v Evropě . . . . .	22
3.2.1 Pracoviště NFS GANIL . . . . .	23
3.3 Pracoviště ve světě . . . . .	23
<b>II Experiment</b>	<b>25</b>
<b>4 Ozařovací experiment na Ústavu jaderné fyziky AV ČR</b>	<b>27</b>
4.1 Kalibrace spektrometrického řetězce . . . . .	27
4.2 Příprava aktivačních materiálů . . . . .	31
4.3 Ozařovací experiment . . . . .	32
4.4 Měření aktivovaných vzorků . . . . .	34

---

<b>5</b>	<b>Vyhodnocení naměřených dat</b>	<b>37</b>
5.1	Hliník . . . . .	38
5.2	Zlato . . . . .	41
5.3	Indium . . . . .	43
5.4	Shrnutí finálních výsledků . . . . .	45
	<b>Závěr</b>	<b>47</b>
	<b>Bibliografie</b>	<b>49</b>

# Seznam veličin

$A$	Aktivita (Bq)
$A_0$	Počáteční aktivita vzorku v čase $t = 0$ (Bq)
$A_{\text{ref}}$	Referenční aktivita kalibračního zářiče (kBq)
$A_{\text{sat}}$	Saturovaná aktivita (Bq)
$a_k$	Koeficienty kalibrační funkce $\gamma$ -spektrometrického systému (-)
$c$	Rychlost světla ve vakuu ( $\text{m s}^{-1}$ )
$E_-$	Kinetická energie elektronu (MeV)
$E_+$	Kinetická energie pozitronu (MeV)
$E_{e^-}$	Energie fotoelektronu (keV)
$E_{\text{max}}$	Maximální energie (MeV)
$E_{\text{prah}}$	Prahová energie (MeV)
$E_\gamma$	Energie gama záření (keV)
$E_{\text{p}}^{\text{start}}$	Energie protonů v okamžiku zahájení ozařovacího experimentu (MeV)
$E_{\text{p}}^{\text{stop}}$	Energie protonů v okamžiku ukončení ozařovacího experimentu (MeV)
$E_{\text{v}}$	Energie vazby elektronu v obalu (keV)
$f_{\text{irr}}$	Korekční faktor na nerovnoměrnost ozařování (-)
$I$	Proud protonů na terči ( $\mu\text{A}$ )
$I_\gamma(E_\gamma)$	Intenzita gama linky o energii $E_\gamma$ (%)
$M_{\text{int}}$	Počet ozařovacích intervalů (-)
$M_{\text{target}}$	Hmotnost terčové částice ( $\text{MeV } c^{-2}$ )
$m$	Hmotnost (mg)
$m_0$	Klidová hmotnost částice ( $\text{MeV } c^{-2}$ )
$m_{\text{n}}$	Hmotnost neutronu ( $\text{MeV } c^{-2}$ )
$N$	Počet radioaktivních jader ve vzorku (-)
$N_0$	Původní počet radioaktivních jader ve vzorku v čase $t = 0$ (-)
$Q$	$Q$ -hodnota neboli energie reakce (keV)
$Q_i^{\text{p}}$	Počet protonů zasahujících terč v $i$ -tém ozařovacím intervalu (-)
$Q_{\text{total}}^{\text{p}}$	Počet protonů zasahujících terč za celou dobu ozařování (-)
$R$	Produkční rychlost radioaktivních jader ve vzorku ( $\text{s}^{-1}$ )

---

$R_R$	Reakční rychlost na jedno terčové jádro ( $s^{-1}$ )
$S(E_\gamma)$	Plocha píku příslušné energii $E_\gamma$ (imp)
$T_{1/2}$	Poločas rozpadu (h)
$t$	Čas (s)
$t_a$	Doba ozařování (aktivace) vzorku (s)
$t_i$	Délka $i$ -tého ozařovacího intervalu (s)
$t_i^e$	Čas zbývající od konce $i$ -tého ozařovacího intervalu do konce ozařování (s)
$t_{\text{live}}$	Čistá doba měření na detektoru po odečtení mrtvé doby (s)
$t_m$	Doba měření (s)
$t_{\text{real}}$	Doba měření na detektoru (s)
$t_v$	Doba vymírání (s)
$Y$	Spektrální výtěžek neutronů ( $\text{MeV}^{-1} \text{C}^{-1} \text{sr}^{-1}$ )
$\Delta t$	Doba vymírání kalibračního zářiče (d)
$\varepsilon_{\text{FEP}}^\gamma(E_\gamma)$	Absolutní píkova detekční účinnost v závislosti na energii $E_\gamma$ (-)
$\theta$	Úhel Comptonova rozptylu (rad)
$\lambda$	Rozpadová konstanta ( $s^{-1}$ )
$\nu$	Frekvence (Hz)
$\sigma(E)$	Mikroskopický účinný průřez v závislosti na energii ( $1 \text{ b} = 10^{-24} \text{ cm}^2$ )
$\sigma_{A_{\text{ref}}}$	Nejistota referenční aktivity kalibračního zářiče (-)
$\sigma_{I_\gamma}$	Nejistota intenzity gama přechodu (-)
$\sigma_{R_R}$	Nejistota reakční rychlosti (-)
$\sigma_S$	Nejistota plochy píku (-)
$\sigma_{T_{1/2}}$	Nejistota poločasu rozpadu (-)
$\sigma_\varepsilon$	Nejistota absolutní píkove detekční účinnosti (-)
$\phi(E)$	Spektrální neutronový tok ( $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1} \text{MeV}^{-1}$ )

# Seznam zkratek

<b>AME2016</b>	Evaluace atomových hmotností 2016 – Atomic Mass Evaluation 2016
<b>AV ČR</b>	Akademie věd České republiky – The Czech Academy of Sciences
<b>CERN</b>	Evropská organizace pro jaderný výzkum – Conseil Européen Pour la Recherche Nucléaire
<b>CHANDA</b>	Výzvy v oblasti jaderných dat pro bezpečnost evropských jaderných zařízení – Challenges in Nuclear Data for the Safety of European Nuclear Facilities
<b>CYRIC</b>	Cyklotronové a radioizotopové centrum – Cyclotron and Radioisotope Center
<b>DEP</b>	Pík dvojitého úniku – Double Escape Peak
<b>EAF-2010</b>	Evropský aktivační soubor 2010 – European Activation File 2010
<b>ELBE</b>	Elektronový lineární urychlovač pro svazky s vysokou briliancí a nízkou emitancí – Electron Linac for Beams with High Brilliance and Low Emittance
<b>ENSDF</b>	Evaluovaný datový soubor jaderné struktury – Evaluated Nuclear Structure Data File
<b>ERINDA</b>	Evropské výzkumné infrastruktury pro aplikace v oblasti jaderných dat – European Research Infrastructures for Nuclear Data Applications
<b>ESS</b>	Evropský spalační zdroj – European Spallation Source
<b>EUFRAT</b>	Evropská zařízení pro měření jaderných reakcí a rozpadových dat – European Facilities for Nuclear Reaction and Decay Data Measurements
<b>FEP</b>	Pík plné absorpce – Full Energy Peak
<b>GANIL</b>	Velký národní urychlovač iontů v Lurdech – Grand Accélérateur National d'Ions Lourds
<b>HPGe</b>	Germanium s vysokou čistotou – High-Purity Germanium
<b>HZDR</b>	Helmholtzovo centrum v Drážďanech a Rossendorfu – Helmholtz Zentrum Dresden Rossendorf
<b>IFA-TSL</b>	Ústav fyziky a astronomie, Svedbergova laboratoř – Institutionen för Fysik och Astronomi, The Svedberg-Laboratoriet
<b>IFMIF</b>	Mezinárodní zařízení pro ozařování fúzních materiálů – International Fusion Materials Irradiation Facility

---

<b>ITER</b>	Mezinárodní termonukleární experimentální reaktor – International Thermonuclear Experimental Reactor
<b>JANIS</b>	Informační systém jaderných dat založený na programovacím jazyce Java – Java-Based Nuclear Data Information System
<b>JCANS</b>	Japonská spolupráce na urychlovačem řízených neutronových zdrojích – Japan Collaboration on Accelerator-Driven Neutron Sources
<b>JRC-Geel</b>	Ústav spojených výzkumů Geel – Joint Research Centre Geel
<b>KUANS</b>	Urychlovačem řízený neutronový zdroj Kjótské univerzity – Kyoto University Accelerator-Driven Neutron Source
<b>LABS</b>	Laboratoře pro urychlovačové vědní obory – Laboratories for Accelerator Based Sciences
<b>LANSCE</b>	Neutronové vědecké centrum v Los Alamos – Los Alamos Neutron Science Center
<b>LENS</b>	Nízkoenergetický neutronový zdroj – Low Energy Neutron Source
<b>LINAC</b>	Lineární urychlovač – Linear Accelerator
<b>MCA</b>	Multikanálový analyzátor – Multi-Channel Analyser
<b>n-TOF</b>	Neutronové pracoviště <i>time-of-flight</i> – The Neutron Time-of-Flight Facility
<b>NAA</b>	Neutronová aktivační analýza – Neutron Activation Analysis
<b>NFS</b>	Neutrony pro vědu – Neutrons for Science
<b>NIF</b>	Pracoviště neutronového ozařování – Neutron Irradiation Facilities
<b>NPL</b>	Národní fyzikální laboratoř – National Physics Laboratory
<b>OJR</b>	Oddělení jaderných reakcí – Department of Nuclear Reactions
<b>PIAF</b>	Pracoviště iontových urychlovačů PTB – PTB's Ion Accelerator Facility
<b>PTB</b>	Německý institut metrologie – Physikalisch-Technische Bundesanstalt
<b>QMN</b>	Kvazimonoenergetický neutron – Quasi-Monoenergetic Neutron
<b>RANS</b>	Urychlovačem řízený kompaktní neutronový zdroj, RIKEN – RIKEN Accelerator-Driven Compact Neutron Source
<b>RCNP</b>	Výzkumné centrum pro jadernou fyziku – Research Center for Nuclear Physics
<b>SEP</b>	Pík jednoduchého úniku – Single Escape Peak
<b>SNS</b>	Spalační neutronový zdroj – Spallation Neutron Source
<b>SPIRAL2</b>	Systém druhé generace pro on-line produkci urychlených radioaktivních iontů – Systèmes de Production d'Ions Radioactifs Accélérés en Ligne de 2e Génération
<b>TIARA</b>	Iontové urychlovače pro pokročilé radiační aplikace v Takasaki – Takasaki Ion Accelerators for Advanced Radiation Application
<b>ÚJF</b>	Ústav jaderné fyziky – Nuclear Physics Institute
<b>VDM</b>	Virtuální manažer dat – Virtual Data Manager
<b>WNR</b>	Neutronový výzkum v oblasti zbraní – Weapons Neutron Research

# Seznam obrázků

1.1	Srovnání účinných průřezů pro pět různých reakcí na $^{59}\text{Co}$ . . . . .	8
2.1	Spektrum hliníkové fólie . . . . .	14
2.2	Uživatelské rozhraní obslužného softwaru Genie-2000 . . . . .	16
3.1	Ukázková spektra reakcí typu $p + \text{Be}$ a $d + \text{Be}$ . . . . .	20
3.2	Cyklotron U-120M s připojenou beryliovou terčovou stanicí . . . . .	21
4.1	HPGe detektor Canberra s kalibračním zářičem . . . . .	28
4.2	Kalibrační křivka pro pozici p5 . . . . .	29
4.3	Kalibrační křivka pro pozici p8 . . . . .	30
4.4	Kalibrační křivka pro pozici p20 . . . . .	30
4.5	Sady aktivačních fólií použitých při ozařovacím experimentu . . . . .	31
4.6	Laserový paprsek znázorňující osu protonového svazku . . . . .	32
4.7	Časový záznam proudu na beryliovém terči . . . . .	33
4.8	Konfigurace ozařovacího experimentu . . . . .	33
4.9	HPGe gama spektrometrický systém Canberra během měření . . . . .	34
5.1	Excitační funkce pro neutrony iniciované reakce na $^{27}\text{Al}$ . . . . .	39
5.2	Proložení aktivit izotopu $^{24}\text{Na}$ křivkou ve tvaru $y = ae^{bx}$ . . . . .	40
5.3	Proložení aktivit izotopu $^{198}\text{Au}$ křivkou ve tvaru $y = ae^{bx}$ . . . . .	42
5.4	Proložení aktivit izotopu $^{115\text{m}}\text{In}$ křivkou ve tvaru $y = ae^{bx}$ . . . . .	45

# Seznam tabulek

4.1	Charakteristiky jednotlivých použitých kalibračních zářičů . . . . .	28
4.2	Koeficienty polynomů pro kalibrační křivky daných pozic . . . . .	29
5.1	Fólie vybrané k detailnímu rozboru . . . . .	37
5.2	Reakce pozorované při $\gamma$ -spektrometrické analýze fólií Al-103 a Al-104 . . . . .	39
5.3	Reakce pozorované při $\gamma$ -spektrometrické analýze fólií Au-143 a Au-144 . . . . .	41
5.4	Reakce na izotopu india $^{115}\text{In}$ . . . . .	43
5.5	Reakce na izotopu india $^{113}\text{In}$ . . . . .	44
5.6	Konečné hodnoty reakčních rychlostí pro všechny pozorované interakce . . . . .	46





# Úvod

Urychlovačem řízené generátory rychlých neutronů představují všestranný nejen experimentální nástroj moderních jaderných oborů. Činnosti na nich probíhající mají význam pro studium materiálového poškození, testování odolnosti elektroniky vůči neutronům i kalibraci detekčních systémů; široké uplatnění nacházejí urychlovačem řízené zdroje také v medicíně. V současnosti je však jejich dominantním úkolem validovat jaderná data v rámci fúzních výzkumných programů ITER a IFMIF. Na důležitosti přitom získává i možnost jejich využití pro neutronovou aktivační analýzu.

Všechny výše uvedené aplikace jsou podmíněny podrobnou znalostí energetického spektra generátorem produkováných neutronů. Za tímto účelem vznikl komplexní vědní obor spektrometrie neutronových polí, jednou z jejíchž metod je technika aktivačních detektorů. Princip aktivační metody spočívá v ozáření sady dozimetrických fólií ve zkoumaném poli neutronů, následném proměřování jejich indukované aktivity na gama spektrometrickém systému a rekonstrukci neutronového spektra na základě získaných dat pomocí specializovaných dekonvolučních kódů. Pracnost celého postupu je kompenzována jeho vysokou přesností, snížením ekonomických nákladů a možností získat informaci o spektru produkováných neutronů v takové blízkosti generátoru, jaká je pro jiné techniky zcela nedostupná.

Těmito skutečnostmi je motivována předkládaná bakalářská práce, jež si klade za cíl učinit první krok k determinování nového neutronového spektra generátoru NG-2 řízeného cyklotronem U-120M, provozovaného na Ústavu jaderné fyziky Akademie věd České republiky. Jako zdrojová reakce byla zvolena dosud málo probádaná interakce protonů o energii 22 MeV s tlustým beryliovým terčem, přičemž roli aktivačních detektorů hrály sady dozimetrických fólií celkem z 11 materiálů (Ni, Co, Au, In, Ti, Al, Y, Lu, Fe, Nb, Cu) a jejich následná  $\gamma$ -spektrometrická analýza probíhala na HPGe systému Canberra v rámci laboratoří Oddělení jaderných reakcí.

Ke zvládnutí aktivační metody spektrometrie je nutné porozumět celé řadě dílčích jaderných disciplín, což je cílem teoretické části bakalářské práce. První kapitola se věnuje kinetice aktivačních reakcí, vysvětluje principy prováděných spektrometrických měření a zavádí ústřední pojem reakční rychlosti na jedno terčové jádro včetně korekcí. Obsahem druhé kapitoly je jaderná gama spektrometrie a jsou v ní

charakterizovány především interakce  $\gamma$  záření s látkovým prostředím, doplněné o výklad polovodičových HPGe detektorů a jejich účinnostní kalibrace. Přehled o současném stavu problematiky poskytuje třetí kapitola, v rámci níž je možné se seznámit nejen s pracovištěm Ústavu jaderné fyziky, ale také s obdobně zaměřenými laboratořemi v Evropě i v dalších částech světa.

Experimentální část práce sestává ze dvou kapitol. Samotný ozařovací experiment je podrobně popsán v kapitole čtvrté, přičemž odpovídající prostor je věnován i kalibraci detekčního řetězce, rozsáhlým přípravným činnostem a následným dlouhodobým měřením. Vrcholem práce je pak vyhodnocení naměřených dat. V rámci jemu zasvěcené páté kapitoly je poskytnut detailní komentář k prvním analyzovaným vzorkům, všem reakcím na nich identifikovaným i k výsledným hodnotám stanovených reakčních rychlostí; tyto jsou poté společně shrnuty v tabulce konečných výsledků.

Práci uzavírá stručné zhodnocení všech dosažených cílů, které bude východiskem pro navazující akademické práce, završené získáním konkrétního tvaru nového neutronového spektra.

Část I

Teorie



# Kapitola 1

## Kinetika aktivačních reakcí

Pro úlohu spektrometrie neutronových polí se využívá řada experimentálních metod, které jsou založeny na různých typech interakcí neutronů s látkou, přičemž samotný neutron je detekován nejčastěji elektronicky díky konverzi na nabitou částici, resp. na foton. Reakce využívané těmito metodami se dělí na rozptylové a absorpční. Patrně nejvýznamnější rozptylovou interakcí je srážka neutronu s protonem, která je základem tzv. metody odražených protonů. Mezi absorpční reakce se řadí  $(n,\alpha)$ ,  $(n,p)$  a  $(n,\gamma)$ , případně  $(n,f)$  pro těžká jádra. Je-li neutron detekován na základě emitovaného gama záření, lze využít buď fotony emitované bezprostředně po jeho zachytu (*on-line*), nebo záření produkované při rozpadu radionuklidu vzniklého absorpcí tohoto neutronu stabilním atomem (*off-line*).

Druhá z popsaných metod se nazývá aktivační technika. [1] Jejím výsledkem nemusí být pouhá detekce neutronů; je-li použit vhodný aktivační detektor, tj. má-li materiál, se kterým neutrony interagují, dobře prozkoumané vlastnosti, lze ze studia emitovaného gama záření usuzovat také na energii iniciačního neutronu, v případě neutronového pole pak na neutronový tok jakožto funkci energie (tzv. spektrální neutronový tok  $\phi(E)$  v jednotkách  $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1} \text{MeV}^{-1}$ ). Pro studium těchto polí aktivační metodou se využívá technika dozimetrických fólií z různých materiálů, které jsou nejprve ozářeny ve zkoumaném neutronovém poli a následně je metodami gama spektrometrie (viz kapitolu 2) vyhodnocováno emitované záření. Tato metoda je obzvláště vhodná pro měření polí v malé vzdálenosti od neutronového zdroje, tj. v případech, kdy nelze tento zdroj uvažovat jako bodový a jeho velikost je srovnatelná s velikostí detektoru a jejich vzájemnou vzdáleností. [2]

### 1.1 Problematika aktivačních měření

Za možností provádět spektrometrii neutronových polí aktivační metodou stojí komplexní teorie neutronových aktivačních měření, která nachází rozsáhlé využití

i mimo tuto konkrétní oblast. Neutronová aktivační měření mají obecně několik fází, a to aktivaci, v níž figuruje zdroj neutronů a jimi ozařovaný materiál, transport vzorku do měřicí laboratoře a následně samotné měření, při němž je tento aktivovaný materiál zkoumán  $\gamma$ -spektrometrickými metodami. Celý experiment je završen vyhodnocením získaných údajů. Podle toho, zda je předmětem zájmu ozařovaný vzorek (tj. kvalitativní či kvantitativní analýza jeho chemického složení), nebo neutronový zdroj (resp. jím produkované neutronové pole), rozlišujeme v rámci těchto měření neutronovou aktivační analýzu (NAA) a právě měření spektrometrická.

### 1.1.1 Neutronová aktivační analýza

NAA je metoda umožňující zkoumat chemické složení neznámého vzorku; společně s identifikací jednotlivých prvků je přitom schopna určit i jejich množství. K jejím hlavním výhodám patří vysoká citlivost (detekuje i stopová množství prvků) a možnost provést příslušné experimenty nedestruktivně (bez fyzické separace prvků z ozářeného vzorku), což dělá z neutronové aktivační analýzy metodu obzvláště vhodnou např. pro zkoumání historicky cenných předmětů.

Ozařování vzorku se nejčastěji provádí v neutronových polích výzkumných reaktorů. Ta jsou pro NAA vhodná jak díky vysokému neutronovému toku, tak pro nízké energie neutronů, neboť účinné průřezy např. pro radiační záchyt neutronu jsou nejvyšší právě v tepelné oblasti. Kvalitativní analýza probíhá pomocí studia energií a intenzit píků v gama spektru ozářeného vzorku; k rozhodnutí o přítomnosti radionuklidu se taktéž často využívá jeho poločas rozpadu. Pro kvantitativní analýzu se buď odečítají počty pulsů pod jednotlivými píky a následně je analyticky spočtena hmotnost odpovídajícího prvku, nebo (v praxi častěji) je současně se zkoumaným vzorkem ozařován i vzorek obsahující známé množství právě toho prvku, jehož zastoupení je třeba určit. Samotný výpočet hmotnosti  $m_{\text{sample}}$  pak probíhá prostým vynásobením hmotnosti prvku ve známém vzorku  $m_{\text{standard}}$  podílem saturovaných aktivit zkoumaného a známého vzorku  $A_{\text{sat, sample}}$  a  $A_{\text{sat, standard}}$ , tedy podle rovnice

$$m_{\text{sample}} = m_{\text{standard}} \frac{A_{\text{sat, sample}}}{A_{\text{sat, standard}}} . \quad (1.1)$$

Saturované aktivity  $A_{\text{sat, } x}$  jsou přitom číselně rovny produkčním rychlostem  $R_x$  příslušných radionuklidů, jejichž hodnoty jsou získávány právě gama spektrometrickou analýzou vzorků. [3]

Pro tuto metodu je využíván také reaktor VR-1 Fakulty jaderné a fyzikálně inženýrské Českého vysokého učení technického v Praze, na němž byly aktivačně analyzovány například historické mince [4], ostatky mamuta srstnatého [5], meteority [3] nebo přípravky tibetské medicíny [6].

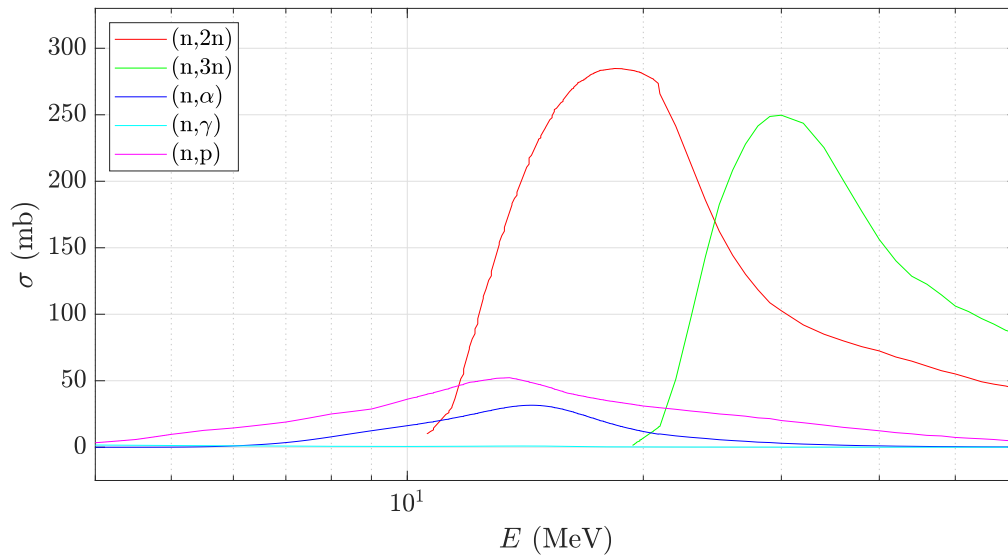
### 1.1.2 Spektrometrie neutronů

Při spektrometrických měřeních je na rozdíl od NAA předem známo složení ozařovaného vzorku (aktivačního detektoru, např. dozimetrické fólie) a předmětem zájmu se stává naopak neutronové pole. Průběh experimentu je stejný jako při aktivační analýze (ozařování, transport do laboratoře, měření prostřednictvím  $\gamma$ -spektrometrie), odlišuje se však zpracování výsledků. Ústřední rovnicí spektrometrie rychlých neutronů je vztah

$$R_R = \int_{E_{\text{prah}}}^{E_{\text{max}}} \phi(E)\sigma(E) dE, \quad (1.2)$$

kde  $R_R$  ( $s^{-1}$ ) představuje tzv. reakční rychlost na jedno terčové jádro (viz kapitolu 1.2),  $E_{\text{prah}}$  je prahová energie neutronu pro sledovanou spektrometrickou reakci v použitém aktivačním detektoru (MeV),  $E_{\text{max}}$  je maximální energie neutronů produkovaných generátorem (MeV),  $\sigma(E)$  označuje mikroskopický účinný průřez pro danou reakci v závislosti na energii neutronu ( $1 \text{ b} = 10^{-24} \text{ cm}^2$ ) a  $\phi(E)$  reprezentuje již diskutovaný spektrální neutronový tok. Nepřímo měřenou veličinou je přitom právě reakční rychlost  $R_R$ , s jejíž pomocí je možné při znalosti účinného průřezu  $\sigma(E)$  (jenž ve vztahu vystupuje jako jakási konverzní funkce) rekonstruovat kýžené neutronové spektrum  $\phi(E)$ . [7]

Účinné průřezy se za tímto účelem obvykle přebírají z knihoven jaderných dat. Pro pole rychlých neutronů je přitom mimořádně relevantní knihovna EAF-2010 (*European Activation File*) [8], efektivně pokrývající oblast vysokých energií až do 60 MeV, s níž je možné pracovat například prostřednictvím nástroje JANIS (*Java-Based Nuclear Data Information System*) [9]. Odtud byla získána data pro vykreslení grafu 1.1, který jako příklad zachycuje průběhy excitačních funkcí pro reakce (n,2n), (n,3n), (n, $\alpha$ ), (n, $\gamma$ ) a (n,p) na izotopu kobaltu  $^{59}\text{Co}$ . Ze srovnání jednotlivých křivek vyplývá, že v rozsahu jednotek až desítek MeV dosahují v případě tohoto izotopu nejvyšších hodnot účinné průřezy pro dvě prahové interakce s produkcí neutronů. Reakce vedoucí na produkci nabitých částic, tj. prahová (n,p) a bezprahová (n, $\alpha$ ), zde shodně nabývají přibližně pětikrát nižších hodnot. Téměř zanedbatelný je pak z hlediska tohoto grafu účinný průřez bezprahového radiačního záchyty, který dosahuje v regionu tepelných energií hodnot až stovek barnů, avšak s rostoucí energií neutronu rychle klesá až na úroveň pouhých desetitisícin barnu v zobrazované vysokoenergetické oblasti. Je to právě různorodost konkrétních tvarů funkce  $\sigma(E)$  pro jednotlivé reakce pozorované na použitých aktivačních materiálech, čím je zajištěno, že bude možné ze spočtených reakčních rychlostí pro všechny identifikované kombinace reakce-materiál extrahovat informace o neutronech v celém energetickém rozsahu zkoumaného pole.



**Obr. 1.1:** Srovnání účinných průřezů pro pět různých reakcí na  $^{59}\text{Co}$  [8, 9]

Znalost výše uvedeným způsobem rekonstruovaného neutronového spektra je možné dále využít pro testy odolnosti mikroelektroniky vůči neutronům, studium materiálového poškození, neutronovou aktivační analýzu nebo pro kalibraci nových detekčních systémů. [2] Především se však takto získaná data používají pro validaci jaderných dat pro výzkumné programy ITER a IFMIF, kdy se pro daný materiál ozařovaného vzorku při známém spektru  $\phi(E)$  a standardně měřené reakční rychlosti  $R_R$  validuje funkce  $\sigma(E)$  [10].

## 1.2 Reakční rychlost

Zásadním pojmem pro fyziku aktivačních měření je tzv. reakční rychlost. Probíhá-li v ozařovaném aktivačním detektoru reakce  $A(n,x)B$ , lze změnu počtu radioaktivních jader  $B$  v čase popsat rovnicí

$$\frac{dN}{dt} = R - \lambda N, \quad (1.3)$$

kde  $R$  označuje rychlost jejich vzniku a jejich rozpad je reprezentován členem  $\lambda N$ . Metodou integračního faktoru a užitím počáteční podmínky (v čase  $t = 0$  obsahuje systém  $N_0$  radioaktivních jader  $B$ ) je možné diferenciální rovnici vyřešit s výsledkem

$$N(t) = \frac{R}{\lambda}(1 - e^{-\lambda t}) + N_0 e^{-\lambda t}, \quad (1.4)$$



odkud lze pomocí vztahu  $A = \lambda N$  vyjádřit aktivitu detektoru v závislosti na čase jako

$$A(t) = R(1 - e^{-\lambda t}) + A_0 e^{-\lambda t}. \quad (1.5)$$

Při aktivačních měřeních se obvykle používají detektory, které jsou před započítáním ozařování neaktivní, lze tedy aplikovat předpoklad nulové počáteční aktivity ( $A_0 = 0$ ) a rychlost produkce radioaktivních jader ve vzorku vyjádřit jako

$$R = \frac{A(t)}{(1 - e^{-\lambda t})}. \quad (1.6)$$

Pro aktivační měření jsou zásadní tři časové intervaly, a to doba ozařování vzorku  $t_a$ , doba měření  $t_m$  a tzv. doba vymírání  $t_v$ , tedy časový úsek, během něž je vzorek po skončení ozařování transportován do měřicí laboratoře. Dle výpočtů výše je proto aktivita vzorku na konci ozařování

$$A(t_a) = \lambda N(t_a) = R(1 - e^{-\lambda t_a}). \quad (1.7)$$

Po ukončení ozařování se však už ve vzorku nová jádra typu B nevytvářejí (rovnice (1.3) přichází o člen  $R$ ) a změna počtu radioaktivních jader v čase se řídí analogicky odvozeným exponenciálním zeslabovacím zákonem

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t}. \quad (1.8)$$

Počet jader B v okamžiku zahájení měření je tedy  $N(t_v) = N(t_a) e^{-\lambda t_v}$  (tomu odpovídá  $A(t_v) = A(t_a) e^{-\lambda t_v}$ ) a aktivita vzorku v průběhu měření je popsána vztahem  $A(t) = A(t_v) e^{-\lambda t}$ . Odtud lze celkový počet radioaktivních rozpadů zaznamenaných detektorem vyjádřit jako

$$N_r = A(t_v) \int_0^{t_m} e^{-\lambda t} dt = A(t_v) \frac{(1 - e^{-\lambda t_m})}{\lambda}. \quad (1.9)$$

S využitím výše odvozeného je tedy možné tento vztah přepsat do tvaru

$$N_r = \frac{R(1 - e^{-\lambda t_a}) e^{-\lambda t_v} (1 - e^{-\lambda t_m})}{\lambda}. \quad (1.10)$$

Při zavedení reakční rychlosti na jedno terčové jádro  $R_R = \frac{R}{N_0}$  a vyjádření počtu rozpadů na základě  $\gamma$ -spektrometricky změřených veličin

$$N_r = t_{\text{real}} \frac{S(E_\gamma)}{t_{\text{live}} \varepsilon_{\text{FEP}}^\gamma(E_\gamma) I_\gamma(E_\gamma)} \quad (1.11)$$

lze takto získat finální rovnici pro  $R_R$  jako

$$R_R = \frac{S(E_\gamma)\lambda_{t_{\text{live}}}^{t_{\text{real}}}}{N_0\varepsilon_{\text{FEP}}^\gamma(E_\gamma)I_\gamma(E_\gamma)(1 - e^{-\lambda t_a})e^{-\lambda t_v}(1 - e^{-\lambda t_{\text{real}}})}, \quad (1.12)$$

kde  $S(E_\gamma)$  je plocha píku,  $t_{\text{real}}$  je doba měření vzorku na detektoru,  $t_{\text{live}}$  je čistá doba měření po odečtení mrtvé doby,  $\varepsilon_{\text{FEP}}^\gamma(E_\gamma)$  je detekční účinnost gama spektrometrického systému v závislosti na energii registrovaného  $\gamma$  záření a  $I_\gamma(E_\gamma)$  je intenzita gama linky o energii  $E_\gamma$ . [7]

### 1.2.1 Spektrometrické korekce

V ideálním případě, kdy by bylo možné produkční rychlost  $R$  položit rovnu saturované aktivitě  $A_{\text{sat}}$  a tuto chápat jako prostý podíl počtu pulsů zaznamenaných detektorem  $S(E_\gamma)$  a čisté doby měření  $t_{\text{live}}$ , by rovnice pro  $R_R$  měla v tomto nejjednodušším přiblížení tvar

$$R_R = \frac{S(E_\gamma)}{N_0 t_{\text{live}}}. \quad (1.13)$$

Vztah (1.12) lze tedy interpretovat jako součin této ideální reakční rychlosti a různých korekčních faktorů. Jejich prostřednictvím je zohledněna mrtvá doba detektoru, účinnost gama spektrometrického systému, rozpad pozorovaného radionuklidu během dob vymírání a měření, intenzita  $\gamma$  přechodu i skutečnost, že ozařováním není ve skutečnosti dosaženo saturované aktivity vzorku. [7]

V závislosti na dalších charakteristikách experimentu však může být třeba tuto rovnici dále korigovat. Tzv. spektrometrické korekce zahrnují korekční faktor na nerovnoměrnost ozařování, samoabsorpci gama záření ve vzorku, nebodovost jeho geometrie a další reálné jevy. Významný je přitom zejména vliv nerovnoměrnosti ozařování, která se respektuje přenásobením rovnice (1.12) opravným součinitelem

$$f_{\text{irr}} = \frac{1 - e^{-\lambda t_a}}{t_a \sum_{i=1}^{M_{\text{int}}} \frac{Q_i^p}{Q_{\text{tot}}^p} \frac{e^{-\lambda t_i^e}}{t_i} (1 - e^{-\lambda t_i})}, \quad (1.14)$$

kde  $t_a$  odpovídá již zavedené době ozařování, sumace probíhá přes všech  $M_{\text{int}}$  dílčích časových intervalů délky  $t_i$ , přičemž čas zbývající od konce  $i$ -tého intervalu do konce ozařování je označen  $t_i^e$ . Veličina  $Q_i^p$ , resp.  $Q_{\text{total}}^p$  je počet protonů zasahujících terč v  $i$ -tém intervalu, respektive za celou dobu ozařování a je dána jako součin proudu v  $i$ -tém intervalu s jeho délkou  $t_i$ , vydělený elementárním nábojem, resp. jako celkový součet hodnot  $Q_i^p$ . Jelikož se v předpisu vyskytuje taktéž rozpadová konstanta  $\lambda$ , je zřejmé, že korekční faktor  $f_{\text{irr}}$  se určuje pro každý pozorovaný radionuklid zvlášť. [11]

# Kapitola 2

## Jaderná gama spektrometrie

Samotné ozařování fólií by nemělo význam bez možnosti jejich indukovanou aktivitu pečlivě analyzovat; právě to je úkolem rozsáhlého vědního oboru zvaného jaderná gama spektrometrie. Cílem spektrometrického měření ozářeného vzorku je získat jeho tzv.  $\gamma$ -spektrum, tj. závislost počtu zaznamenaných gama fotonů na jejich energii. Díky znalosti  $\gamma$ -spektra lze určit nejen to, jaké radionuklidy se ve vzorku při ozařování naprodukovaly, ale také jejich konkrétní množství. Při úloze spektrometrie neutronového pole je pak nejdůležitějším výstupem ze spektrometrického měření právě již dříve odvozená reakční rychlost na jedno terčové jádro.

Princip spektrometrické analýzy vzorku obecně spočívá v několika krocích. Nejprve se jím emitované záření zachytí ve vhodném materiálu detektoru, poté jsou jeho interakce s látkou využity k vygenerování jistého charakteristického signálu a nakonec se všechny takovéto signály zpracují do výstupu reflektujícího energii iniciačních částic radiace. Gama záření se pro tyto účely s výhodou volí na základě skutečnosti, že mimořádně široká škála radionuklidů emituje právě  $\gamma$  fotony; významnou roli ovšem hraje také jeho značná pronikavost<sup>1</sup> a existence gama spektrometrů s vysokým rozlišením, umožňujícím podrobné přiřazení energií detekovaným gama kvantům. [12] V rámci následující kapitoly má tedy smysl dále zkoumat především to, jakými mechanismy je tento typ záření schopen s látkovým prostředím interagovat a které detektory lze použít coby spektrometry pro základ detekčního řetězce.

### 2.1 Interakce gama záření s látkou

Fotony  $\gamma$  záření vykazují při průchodu látkovým prostředím specifické chování, obzvláště ve srovnání s nabitými částicemi jakožto zprostředkovateli  $\alpha$  a  $\beta$  radiace. Zatímco zpomalování a současná ztráta energie nabitě částice jsou v látce díky

---

<sup>1</sup>V kontrastu například k nabitým částicím či rentgenovým paprskům.

kontinuálním srážkám s mnoha absorpčními atomy zpravidla postupné, pro foton jsou charakteristické náhlé a prudké změny pohybu či jeho úplný zánik. Přestože je známo mnoho typů interakcí fotonů s látkou, v jaderné gama spektrometrii mají zásadní úlohu pouze tři, a to fotoelektrický jev, Comptonův rozptyl a produkce elektron-pozitronových párů. Jejich společným rysem je emise sekundárního elektronu, díky čemuž lze detekovat původně nenabitý foton elektronickými metodami, tj. s využitím schopnosti elektronu ionizovat a excitovat atomy látkového prostředí, případně uvolňovat tzv. brzdné záření (*bremssstrahlung*). Právě to je základem práce převážné většiny dnes používaných detektorů. Kterým mechanismem bude foton ve spektrometru interagovat, závisí nejen na jeho energii, ale také na protonovém čísle materiálu detektoru. V nejjednodušším přiblížení lze říci, že v oblasti nižších energií fotonů převládá fotoelektrický jev, v rozmezí zhruba od 0,5 MeV do 5 MeV se dominantní interakcí stává Comptonův rozptyl a vysokoenergetické fotony reagují nejčastěji produkcí elektron-pozitronových párů. Pravděpodobnost všech tří interakcí se pak ostře zvyšuje s rostoucím protonovým číslem látkového prostředí, což je důvod, proč bývají v gama detektorech jako konverzní materiály používány zejména látky s vysokými počty protonů. [13]

### 2.1.1 Fotoelektrický jev

Při fotoelektrickém jevu foton vstupuje do interakce s atomem jako celkem. Principiálně dochází k absorpci celého  $\gamma$  kvanta, jehož energie je spotřebována na přerušování vazby jednoho z elektronů v obalu a rozpohybování tohoto elektronu s jistou kinetickou energií  $E_{e^-}$  podle rovnice

$$E_{e^-} = h\nu - E_v. \quad (2.1)$$

Výraz  $h\nu$  představuje v tomto vztahu původní energii fotonu, přičemž  $h$  označuje Planckovu konstantu a  $\nu$  frekvenci gama kvanta, zatímco  $E_v$  je energie vazby elektronu v jeho původní slupce<sup>2</sup>. Je-li energie  $\gamma$  kvanta vyšší než řádově několik stovek keV, stává se energie vazby obvykle zanedbatelnou a uvolněný elektron, někdy také nazývaný fotoelektron, nese převážnou většinu energie původního fotonu.

Emisí fotoelektronu se zpočátku neutrální atom mění na kladně nabitý ion. Ve snaze opět dosáhnout neutrality podstupuje takto vzniklý kation reakce s dalšími částicemi látkového prostředí, v průběhu nichž může docházet k přemístování elektronů mezi jednotlivými slupkami jeho obalu. To zpravidla vede k rychlému zaplnění vakance po uvolnění fotoelektronu, pročež je fotoelektrický jev obvykle doprovázen

<sup>2</sup>Nejčastěji jsou při fotoelektrickém jevu uvolňovány elektrony ze slupky nejbližší atomového jádra.

emisí charakteristického rentgenového záření, potenciálně schopného uvolňovat další fotoelektrony; je-li toto záření absorbováno jiným elektronem v obalu, pak je fotoefekt spojen taktéž s emitováním tzv. Augerových elektronů. Tyto sekundární emise zajišťují uvolnění i zbývající části energie primárního fotonu odpovídající energii vazby elektronu. Nedojde-li proto k úniku žádné z těchto částic z detektoru, suma jejich energií odpovídá energii původního gama fotonu, díky čemuž je fotoelektrický jev ideálním reakčním mechanismem pro  $\gamma$ -spektrometrická měření. V získávaných gama spektrech mu odpovídá tzv. pík plné absorpce (*full energy peak* – FEP). [13]

### 2.1.2 Comptonův rozptyl

V rámci Comptonova rozptylu interaguje foton s elektronem látkového prostředí. Gama kvantum vstupuje do reakce s původní energií  $h\nu$ , avšak na rozdíl od fotoelektrického jevu nedochází k jeho úplné absorpci, nýbrž k rozptylu právě na daném elektronu; z reakce vystupuje foton o jisté změněné energii  $h\nu'$ . Naproti tomu původně nehybný elektron interakcí získává určitou kinetickou energii, a proto bývá často označován jako odražený. Foton může být při Comptonově jevu rozptýlen do libovolného úhlu  $\theta$  vůči původnímu směru svého pohybu, přičemž závislost energie odraženého kvanta na tomto úhlu se řídí vztahem

$$h\nu' = \frac{h\nu}{1 + \frac{h\nu}{m_0c^2}(1 - \cos(\theta))}, \quad (2.2)$$

kde výraz  $m_0c^2$  odpovídá klidové energii elektronu. Rozptýlený foton má tedy největší energii pro úhel  $\theta = 0$  a naopak minimum energie je nabýváno při  $\theta = \pi$ . Závislost pro kinetickou energii odraženého elektronu je přesně opačná, přičemž její nejmenší možnou hodnotou je 0 a maximum, tzv. Comptonova hrana, je dáno rozdílem energie primárního fotonu a minimální možné energie fotonu sekundárního. Odražené elektrony tedy mezi těmito extrémy vytvářejí v gama spektrech kontinuum známé jako comptonovské pozadí. Mezi píkem plné absorpce a Comptonovou hranou je však často možné pozorovat efekty vícenásobného comptonovského rozptylu. [13]

### 2.1.3 Tvorba elektron-pozitronových párů

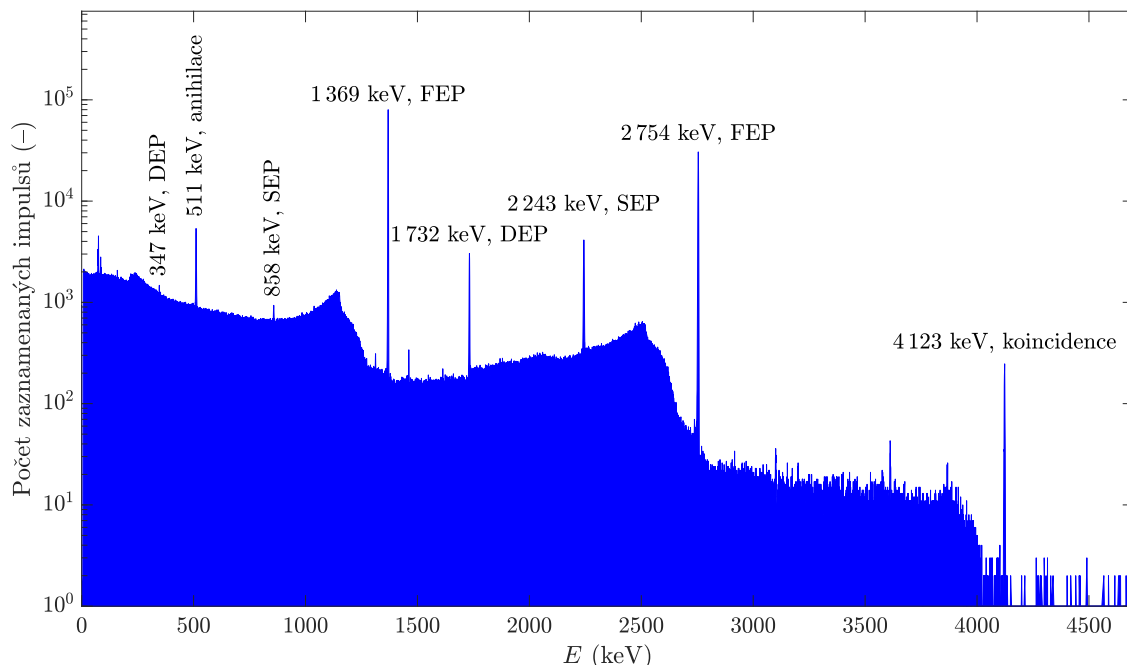
Elektron-pozitronový pár mohou vytvořit pouze fotony o energii odpovídající alespoň dvojnásobku klidové energie elektronu (resp. součtu klidových energií elektronu a pozitronu), tj.  $\gamma$  kvanta s energií vyšší nebo rovnou 1,022 MeV [13]. Dostane-li se takovýto foton do blízkosti jádra atomu látkového prostředí, může dojít k jeho rozložení a úplné přeměně na pár elektron-pozitron, přičemž přebytek energie fotonu nad hodnotou 1,022 MeV určuje kinetickou energii nově vzniklého elektronu ( $E_-$ ) a

pozitronu ( $E_+$ ) v souladu s energetickou bilancí

$$E_- + E_+ = h\nu - 1,022 \text{ MeV}. \quad (2.3)$$

Jelikož po zpomalení pozitronu dochází v látce nevyhnutelně k jeho anihilaci, je tento jev vždy spjat s emisí dvou anihilačních fotonů o energii 511 keV [13]. Odezva spektrometru na produkci elektron-pozitronového páru je pak značně závislá právě na těchto dvou fotonech. Za předpokladu, že veškerá kinetická energie elektronu i pozitronu bude deponována v detektoru, mohou nastat tři situace; buď se podaří oba anihilační fotony díky fotoefektu nebo Comptonově rozptylu zaznamenat, energie potřebná na vytvoření páru se navrátí do systému a výsledkem bude příspěvek do píku plné absorpce, anebo dojde k jednoduchému či ke dvojitému úniku, kdy jeden nebo oba fotony vzniklé anihilací uniknou z detektoru a ve spektru se objeví pík s energií sníženou oproti píku plné absorpce o 511 keV (SEP – *single escape peak*), resp. o 1,022 MeV (DEP – *double escape peak*). [13]

Většina těchto jevů je velmi dobře patrná i ve spektrech získaných v rámci experimentální části práce; graf 2.1 jako příklad zobrazuje výsledek měření ozářené hliníkové fólie.



**Obr. 2.1:** Spektrum hliníkové fólie s dobře viditelnými píky plné absorpce (FEP), comptonovským pozadím včetně Comptonových hran a čar jednoduchého (SEP) a dvojitého (DEP) úniku

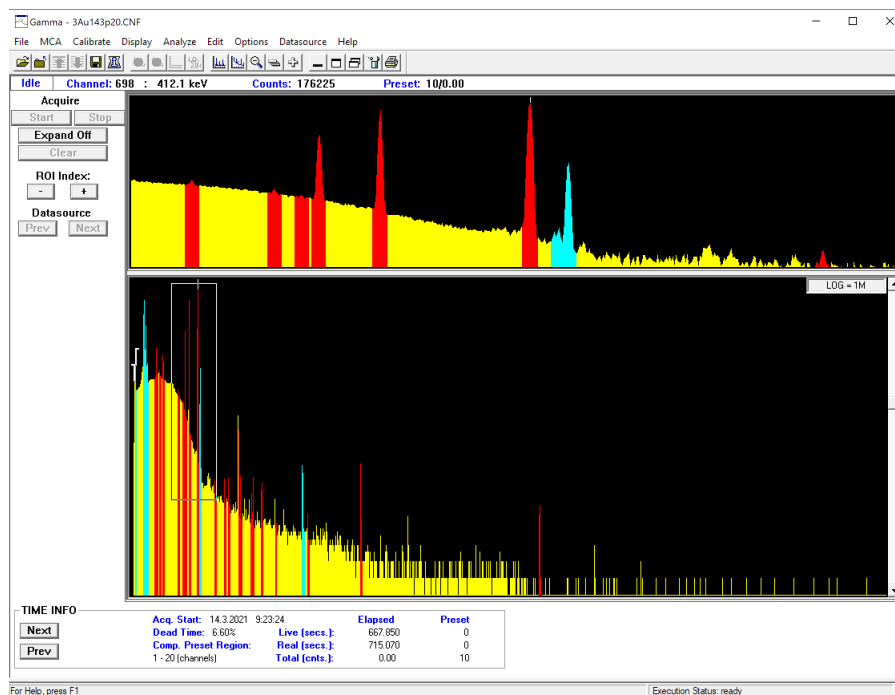
Spektru dominují dva píky plné absorpce o energiích 1 369 keV a 2 754 keV, doprovázené comptonovským pozadím se zřetelně viditelnými Comptonovými hra-

nami. Efekty jednoduchého a dvojitého úniku se pak projevují prostřednictvím linek 858 keV a 347 keV pro první FEP, resp. 2 243 keV a 1 732 keV pro druhý FEP. Jasně patrný je pak i samotný anihilační pík o energii 511 keV. Ve spektru se však krom výše vysvětlených jevů objevuje i pík reprezentující efekt tzv. koincidenčí. Je výsledkem zaznamenání více fotonů ve stejný časový okamžik, následkem čehož se v detektoru namísto dvou různě vysokých pulzů vytvoří jediný, kteréhož výška odpovídá jejich součtu. Z tohoto důvodu je možné ve spektru pozorovat pík o energii  $1\,369\text{ keV} + 2\,754\text{ keV} = 4\,123\text{ keV}$ .

## 2.2 Spektrometry gama záření

Jak již bylo popsáno dříve, úkolem gama spektrometru je konvertovat elektro-neutrální foton na nabitou částici, vytvořit jí odpovídající signál a z něj odvodit informaci o energii této částice, resp. o energii primárního kvanta. Onou částicí bývá zpravidla elektron, signálem napěťový puls a na energii fotonu se usuzuje z jeho velikosti. Z důvodu komplexity celého procesu jsou tedy  $\gamma$ -spektrometry velice sofistikovaná zařízení.

Detekční řetězec se obvykle skládá z pěti částí, a to ze zdroje vysokého napětí, detektoru, předzesilovače, zesilovače a multikanálového analyzátoru. Elektronické komponenty bývají u různých typů gama spektrometrů srovnatelné; předzesilovač zajišťuje vhodnou úpravu signálu pro jeho transport do zesilovače, v němž probíhá tvarování a zesilování pulzů tak, aby bylo možné je zaznamenat, uchovat a především roztřídit v multikanálovém analyzátoru (MCA). Ten je zodpovědný za vytvoření samotného  $\gamma$ -spektra, čehož dosahuje vyhodnocováním velikosti impulzů a jejich přiřazováním do příslušných tzv. kanálů, jejichž čísla jsou ve známém vztahu úměrnosti k energii primární částice, resp. původního kvanta. [1] Protože však žádaným výstupem z gama spektrometrického měření není obvykle pouhý seznam čísel kanálů a jim odpovídajících četností pulzů, nýbrž převedení dat do počítače pro jejich další analýzu, bývají MCA vybaveny ještě speciálními obslužnými softwary. Jako příklad lze uvést software Genie-2000 společnosti Canberra, mezi jehož funkce krom zobrazení měřených spekter patří i manipulace s nimi, jejich základní analýza a vytváření reportů neboli souborů typu RPT. Jejich obsahem může být například kompletní výpis píků, nalezených v surovém  $\gamma$ -spektru zkoumaného vzorku, společně s jim příslušnými energiemi, plochami včetně nejistot či úrovní pozadí v daném bodě. Jádrem Genie-2000 je modul zkráceně označovaný jako VDM (*Virtual Data Manager*), jenž je zodpovědný za datové toky v rámci celého systému, ke kterému jsou připojeny jednotlivé výpočetní moduly. Kombinací těchto modulů pak vznikají daná uživatelská rozhraní, jak je ilustrováno snímkem okna programu na obrázku 2.2. [14]



**Obr. 2.2:** Uživatelské rozhraní obslužného softwaru Genie-2000; zobrazena je základní píková analýza  $\gamma$ -spektra zlaté aktivační fólie

Čím se od sebe jednotlivé gama spektrometry nejvýrazněji odlišují, je tedy detektor; přestože však existuje značné množství různých typů detektorů<sup>3</sup>, jako vhodné pro potřeby jaderné  $\gamma$ -spektrometrie se ukázaly pouze dva, a to anorganické scintilátory a germaniové polovodičové detektory. [13] Především s ohledem na mnohonásobně vyšší energetické rozlišení<sup>4</sup> je ve spektrometrii preferována druhá jmenovaná skupina. Standardem se v současné době staly tzv. HPGe (*high-purity germanium*) detektory, jejichž základem je krystal ze superčistého germania o koncentraci nečistot pouze až  $10^{10}$  atomů na  $\text{cm}^3$  [13]. Mají-li tyto zbývající nečistoty charakter akceptorů, označuje se krystal jako polovodič typu  $\pi$  (superčistý polovodič P), jde-li naopak převážně o donory, hovoří se o polovodiči typu  $\nu$  (superčistém polovodiči N). V závislosti na typu vodivosti germania je pak jeden z kontaktů realizován jako oblast s vodivostí opačnou. Následným přiložením záporného napětí k regionu s děrovou vodivostí a kladného napětí na region vodivosti elektronové je pro příslušný P-N přechod docíleno zapojení v závěrném směru, čímž se podstatně rozšiřuje hradlová vrstva. Interakce dopadajících fotonů, resp. sekundárních elektronů v této vrstvě pak díky generování elektron-děrových párů jakožto nosičů náboje vytvářejí příslušné napěťové pulzy. Aby se zabránilo nežádoucí produkci elektronů a děr v důsledku tepelného pohybu samotných částic krystalu, provozují se HPGe detektory při velmi nízkých teplotách

<sup>3</sup>Běžně jsou používány zejména plynové, scintilační a polovodičové detektory, široké uplatnění však nacházejí také detektory jiskrové, termoluminiscenční či dráhové (kupříkladu mlžné či bublinové komory).

<sup>4</sup>Schopnost odlišit energii dvou fotonů v polyenergetickém spektru energií. [1]



(přibližně 77 K [1]). Krom energetického rozlišení je však při volbě detektoru pro konkrétní spektrometr třeba zvážit i jeho mrtvou dobu<sup>5</sup> a tzv. detekční účinnost, jejíž význam bude podrobně rozebrán dále.

### 2.2.1 Účinnostní kalibrace gama spektrometrického řetězce

Detekční účinnost je zpravidla experimentálně určovaná charakteristika  $\gamma$ -spektrometru, která respektuje skutečnost, že při reálném měření není nikdy možné zaznamenat úplně všechny fotony emitované zářičem. V první řadě nemusí být  $\gamma$  kvantum vždy vyzářeno ve směru detektoru, a k interakci tedy principiálně vůbec nedojde. I v případě, že foton do detektoru vstoupí, však může být jeho zaznamenání zabráněno řadou nežádoucích jevů; gama kvantum může detektorem projít bez interakce, signál jím generovaný nemusí být dostatečně silný pro zpracování použitou elektronikou anebo mu ve vstupu do aktivního objemu detektoru může zabránit jeho krycí materiál. [1] Ani při úspěšném zaznamenání fotonu však není zaručeno, že mu bude v gama spektru přiřazena jeho původní energie, neboť při interakci fotoefektem, Comptonovým rozptylem i produkcí elektron-pozitronového páru existuje jistá pravděpodobnost úniku sekundárních částic (elektronů či fotonů), a tedy i části energie gama kvanta z detektoru.

Účinnost gama spektrometrického systému je při dané geometrii měření, typu a rozměrech detektoru funkcí energie  $\gamma$  záření; zohlednění všech těchto faktorů umožňuje již dříve diskutovaná veličina absolutní píkova detekční účinnost  $\varepsilon_{\text{FEP}}^{\gamma}(E_{\gamma})$ . Slovně ji lze definovat jako

$$\varepsilon_{\text{FEP}}^{\gamma}(E_{\gamma}) = \frac{\text{počet pulzů zaznamenaných v píku plné absorpce o dané energii}}{\text{celkový počet fotonů emitovaných radionuklidem v etalonu}}. \quad (2.4)$$

Odvození konkrétního předpisu pro tzv. účinnostní kalibraci je možné provést na základě vztahů z kapitoly 1.2, konkrétně kombinací rovnic (1.9) a (1.11) a dosazením  $A(t_v) = A_{\text{ref}}e^{-\lambda\Delta t}$ , kde  $A_{\text{ref}}$  je referenční aktivita kalibračního zářiče k referenčnímu datu,  $\lambda$  označuje rozpadovou konstantu daného radionuklidu a  $\Delta t$  reprezentuje dobu vymírání kalibračního zářiče, tj. dobu uplynulou mezi referenčním datem a datem zahájení kalibračního měření. Takto se získá finální vztah ve tvaru

$$\varepsilon_{\text{FEP}}^{\gamma}(E_{\gamma}) = \frac{S(E_{\gamma})\lambda_{\text{live}}^{t_{\text{real}}}}{I_{\gamma}(E_{\gamma})(1 - e^{-\lambda t_{\text{real}}})} \cdot \frac{1}{A_{\text{ref}}e^{-\lambda\Delta t}}. \quad (2.5)$$

Kalibrační zářiče jsou zpravidla voleny tak, aby píky plné absorpce v jejich spektrech pokryly celou oblast energií, v níž je zamýšleno použití gama spektrometru. Pro získání finálního předpisu kalibrační funkce  $\varepsilon_{\text{FEP}}^{\gamma}(E_{\gamma})$  se následně tyto body prokládají

<sup>5</sup>Minimální časový úsek mezi dvěma pulzy nutný pro jejich oddělené zpracování. [13]

křivkou s obvyklým vyjádřením

$$\varepsilon_{\text{FEP}}^{\gamma}(E_{\gamma}) = \exp\left(\sum_{k=0}^n a_k (\ln(E_{\gamma}))^k\right), \quad (2.6)$$

kde  $a_k$  pro  $k$  jdoucí od 0 do  $n$  jsou koeficienty fitu, s jejichž pomocí lze napočítávat hodnoty absolutní píkové detekční účinnosti v celém rozsahu měřených energií fotonů. V zájmu optimalizace jsou jako parametry pro fitování zadávány rovněž nejistoty řídicích bodů detekční účinnosti  $\sigma_{\varepsilon}$ , určované podle vztahu

$$\sigma_{\varepsilon} = \sqrt{\sigma_{A_{\text{ref}}}^2 + \left(0,03 \left(\frac{t_{\text{real}}}{t_{\text{live}}} - 1\right)\right)^2 + (t_{\text{v}} \lambda \sigma_{T_{1/2}})^2 + \sigma_S^2 + \sigma_{I_{\gamma}}^2}. \quad (2.7)$$

Neurčitosti  $\sigma_{A_{\text{ref}}}$ ,  $\sigma_{T_{1/2}}$ ,  $\sigma_S$  a  $\sigma_{I_{\gamma}}$  přitom označují popořadě bezrozměrné nejistoty referenčních aktivit etalonů, poločasů rozpadu radionuklidů v nich obsažených, ploch pod píky odpovídajícími jejich  $\gamma$ -linkám a příslušných intenzit. [15]

# Kapitola 3

## Laboratoře s urychlovačem řízenými zdroji neutronů

Neutronové zdroje nacházejí uplatnění v mimořádně široké škále oborů, mezi něž patří například radioterapie, produkce radionuklidů pro medicínské aplikace, studium vlastností materiálů, design elektronických komponent se specifickými požadavky na radiační odolnost, jaderná energetika či neutronová radiografie [16]. Velká pozornost je přitom věnována zdrojům rychlých neutronů, které tvoří dominantní složku záření pronikajícího stíněním vysokoenergetických urychlovačů (včetně medicínských) a zároveň jsou ve značné míře přítomny v záření kosmickém, jež ovlivňuje letectví a kosmonautiku [16]. Z těchto důvodů jsou po celém světě budovány laboratoře s vlastními neutronovými zdroji, z nichž nejvýznamnější lze rozdělit do dvou kategorií, a to na zdroje založené na výzkumných reaktorech a zdroje řízené urychlovači.

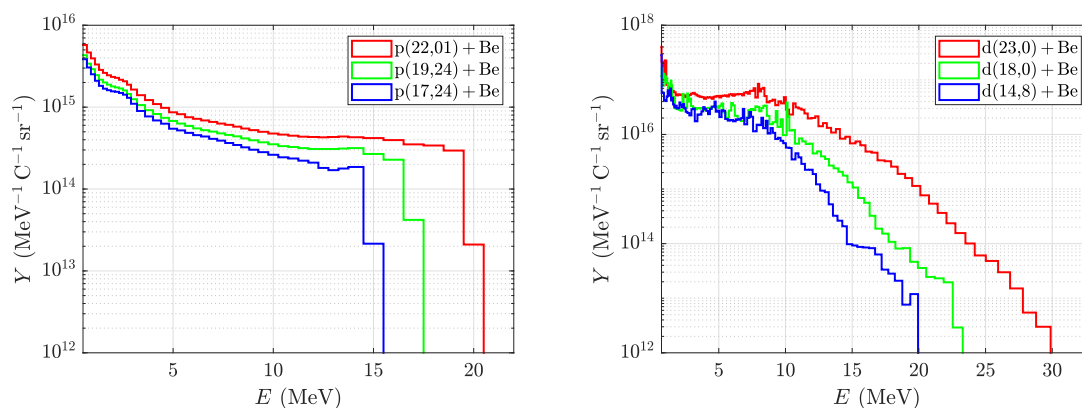
Princip generátorů využívajících urychlovače spočívá v tom, že urychlovač (lineární či cyklický) udělí nabitým částicím vhodnou energii tak, aby byly využitelné pro jadernou reakci s produkcí neutronů na odpovídajícím terčovém materiálu. Pro fúzní reakce jde typicky o tritium (reakce  $T(d,n)^4He$ ) nebo deuterium ( $D(d,n)^3He$ ). V případě reakcí typu (p,n), resp. (d,n) je obvyklou volbou lithium, které může s projektilem interagovat dle reakčního schématu  ${}^7Li(p,n){}^7Be$ , resp.  ${}^7Li(d,n){}^8Be$ , či berylium, pro něž mají nejčastěji využívané reakce zápis  ${}^9Be(p,n){}^9B$ , resp.  ${}^9Be(d,n){}^{10}B$ . [17] Právě reakce typu  $p + Be$  a  $d + Be$  jsou hlavním předmětem zájmu kapitoly.

Neutrony je však možné generovat i prostřednictvím řady dalších reakcí; stále větší zastoupení přitom získávají tzv. spalační neutronové zdroje, které produkují neutrony díky tříštění těžkých jader (wolfram, rtuť, olovo, případně také hliník). Jiné laboratoře pracují například s neutronovými svazky z inverzních kinematických reakcí (atypicky se neurychlují částice, nýbrž jádra) nebo využívají k iniciaci produkčních reakcí elektrony, resp. fotony jimi vytvořeného brzděného záření, indukující reakce typu  $(\gamma,n)$ . [18] Rozhodující parametry pro volbu konkrétního provedení generátoru

jsou prahová energie příslušné reakce, její výtěžek, energie produkovaných neutronů či vlastnosti příslušného terče. Právě konstrukce terče je přitom delikátním problémem, neboť při ozařování svazky částic s vysokou intenzitou se v něm generuje značný tepelný výkon, dochází k jeho aktivaci a v případě pevného terče taktéž ke zvětšování objemu (tzv. *blistering*) [19].

Nejvýznamnější charakteristikou urychlovačem řízených zdrojů je však bezesporu energetické spektrum produkovaných neutronů. V rámci analýzy tvaru spektra lze rozlišovat monoenergetické, kvazimonoenergetické či tzv. bílé (produkující spojitě spektrum) zdroje. Podle energetického rozsahu je pak možné spektra třídit na tepelná, epitermální a rychlá. Pro srovnání s generátory dostupnými na pracovišti Ústavu jaderné fyziky (ÚJF) Akademie věd České republiky (AV ČR) je relevantní vytvořit především přehled kvazimonoenergetických a bílých generátorů rychlých neutronů se zdrojovou reakcí typu (p,n) a (d,n), používaných v současné době v dalších světových institucích s podobně zaměřeným výzkumem. Takové laboratoře existují nejen na území Evropy, ale také v Severní Americe či v Asii.

Ukázky spekter neutronů, produkovaných svazky nabitých částic s různými energiemi na tlustých beryliových terčích, poskytuje obrázek 3.1. Graf vlevo prezentuje příklady spekter měřených týmem H. J. Bredeho na pracovišti PTB v německém Braunschweigu [20]. Zkoumány byly reakce typu p + Be pro energie protonového svazku od 17,24 MeV až po 22,01 MeV. Napravo jsou vyobrazena spektra získaná M. A. Lonem a kolektivem v jaderných zařízeních Chalk River v Kanadě [21]. V tomto případě byly předmětem zájmu reakce iniciované svazky deuteronů s energiemi mezi 14,8 MeV a 23,0 MeV.



**Obr. 3.1:** Ukázková spektra reakcí typu p + Be [20] a d + Be [21]

Oba autoři používali pro stanovení energie neutronů, vynášené na ose  $x$ , metodu doby letu; osa  $y$  pak pro oba grafy shodně představuje tzv. neutronový spektrální výtěžek  $Y$  v jednotkách  $\text{MeV}^{-1} \text{C}^{-1} \text{sr}^{-1}$ . Spektrum je tedy charakterizováno ener-

getickým rozdělením neutronů vztaženým na jednotku náboje svazku a jednotku prostorového úhlu. Obdobná měření byla pro vysokoenergetické svazky protonů a deutronů prováděna také výzkumným kolektivem R. G. Gravesa na pracovišti bioinženýrského oddělení v rámci Texas A & M University [22].

### 3.1 Ústav jaderné fyziky AV ČR

Oddělení jaderných reakcí (OJR) v současné době provozuje v rámci ÚJF AV ČR dva generátory rychlých neutronů NG-2. Oba jsou uzpůsobeny pro řízení izochronním cyklotronem U-120M, který je schopen urychlovat jak kladné, tak záporné ionty, přičemž k produkci neutronů se využívají svazky protonů (energie až do 35 MeV) či deutronů (s maximální energií 20 MeV) o proudech v řádech nižších desítek  $\mu\text{A}$ . [23] Konkrétní neutronový generátor vzniká připojením jedné ze dvou terčových stanic<sup>1</sup>. Při využití reakce  $p + \text{Li}$  je ústředním prvkem stanice tenký lithiový terčik opatřený uhlíkovým zhášečem svazku protonů, jenž umožňuje produkci kvazimonoenergetického spektra s maximálním neutronovým tokem  $10^9 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  v monoenergetickém píku [23]. Terčová stanice pro produkční reakci  $p + \text{Be}$  obsahuje naopak tlustý beryliový terč (o tloušťce 8 mm a průměru 50 mm) a umožňuje vytvořit spojitě neutronové spektrum, jehož maximální dosažitelný neutronový tok činí  $10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  [23]. K vybavení beryliové stanice patří také chladicí okruh terče (jako teplotní nosná látka slouží ethanol) a systémy pro monitorování průtoku, teploty a tlaku chladiva stejně jako proudu protonového svazku na terči a dvou uhlíkových kolimátorech [2].



**Obr. 3.2:** Cyklotron U-120M s připojenou beryliovou terčovou stanicí na Ústavu jaderné fyziky AV ČR

<sup>1</sup>V minulosti byla na pracovišti využívána ještě třetí, těžkovodní terčová stanice [24].

Vzhledem k energiím dominantních (p,n) reakcí na příslušných terčových materiálech, tj.  $Q = -1,64$  MeV (s korespondující prahovou energií  $E_{\text{prah}} = 1,88$  MeV) pro produkční reakci  ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ , resp.  $Q = -1,85$  MeV ( $E_{\text{prah}} = 2,06$  MeV) pro  ${}^9\text{Be}(p,n){}^9\text{B}$  [25], dosahují maximální energie generovaných neutronů hodnot přibližně o 2 MeV nižších, než je energie primárních protonů; na ÚJF AV ČR je tedy možné vyprodukovat neutrony o nejvyšší dosažitelné energii přibližně 33 MeV. Rozšíření experimentálních možností však slibuje nově vyvíjený generátor k cyklotronu TR-24, jenž by měl posunout současné hranice pracoviště především v oblasti dosažitelného neutronového toku, u kterého se předpokládá nárůst až na  $10^{12}$  n cm<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>. [23]

## 3.2 Pracoviště v Evropě

Na území Evropy je mezi laboratořemi s urychlovačem řízenými generátory rychlých neutronů často navázána úzká spolupráce prostřednictvím mezinárodních projektů, mnohdy zaměřených například na výzkum v oblasti jaderných dat. Jako příklady z posledních let lze jmenovat projekty ERINDA (*European Research Infrastructures for Nuclear Data Applications*), EUFRAT (*European Facilities for Nuclear Reaction and Decay Data Measurements*) nebo CHANDA (*Challenges in Nuclear Data for the Safety of European Nuclear Facilities*) [26]. Posledně jmenovaný projekt sdružoval například pracoviště JRC-Geel v Belgii (MONNET – zdroj kvazimonoenergetických neutronů s energií do 24 MeV na lithiovém, deuteriovém či tritiovém terči [27]) a PTB v německém Braunschweigu (pracoviště PIAF se zdrojem monoenergetických a kvazimonoenergetických neutronů o energii do 20 MeV na terčích z lithia, deuteria a tritia), resp. spolupracující instituci iThemba LABS v jihoafrickém Kapském Městě s maximální energií neutronů až 200 MeV a lithiovými či beryliovými terči [28]. Další výzkumná činnost pak probíhala v centrech NPL v Teddingtonu ve Velké Británii (monoenergetický generátor neutronů s energií do 20 MeV na lithiu, deuteriu a tritiu [29]) či NFS GANIL ve francouzském Caen (pro uhlík a berylium bílá, pro lithium monoenergetická spektra neutronů do energie 40 MeV [30]). [31]

Situace se však dynamicky vyvíjí v návaznosti na to, jak jsou dokončovány nové zdroje rychlých neutronů a ty staré jsou naopak vyřazovány z provozu. K takovým od roku 2016 patří i laboratoř IFA-TSL ve švédské Uppsale, jejíž pracoviště QMN poskytovalo řadu let na lithiových terčích kvazimonoenergetické svazky neutronů o nejvyšších dostupných energiích v Evropě, přičemž maxima dosahovala hodnot až do 175 MeV. [32] Nový neutronový zdroj, který v současnosti přitahuje největší část pozornosti vědeckých kruhů, není však založen na (p,n) či (d,n) reakci, ale opět na tříštění jader – v roce 2023 by mělo být ve švédském městě Lund uvedeno do

provozu pracoviště ESS (*European Spallation Source*), jež se tak připojí k dalším evropským spalačným zdrojům, provozovaným např. v laboratoři n-TOF v rámci švýcarského komplexu CERN nebo na německém pracovišti ELBE, zastřešovaném centrem HZDR.

### 3.2.1 Pracoviště NFS GANIL

Laboratoř NFS (*Neutrons For Science*) v rámci francouzského konceptu GANIL (*Grand Accélérateur National d'Ions Lourds*) se pro vysokou podobnost ukazuje jako mimořádně relevantní pro porovnání s pracovištěm v Řeži. Urychlování iniciačních nabitých částic probíhá v zařízení SPIRAL2 LINAC (*Linear Accelerator*); jde o lineární urychlovač iontů, který je protonům schopen udělit energii až 33 MeV a deuteronům 40 MeV, přičemž dosahované proudy se pohybují v nižších jednotkách mA. Produkce neutronů pak probíhá ve dvou módech – spojitým a kvazimonoenergetickým. Pro vytvoření generátoru s bílým spektrem se používají tlusté terče z uhlíku nebo berylia, přičemž nejvyšší možné energie produkovaných neutronů se blíží hranici 40 MeV. Na rozdíl od laboratoří ÚJF však není pro chlazení terčů používán proudící ethanol, ale terč je za stejným účelem konstruován jako rotační. Ve druhém módu probíhá generování téměř monoenergetických neutronů na 1 až 3 mm tenkém lithiovém terči. Vzhledem k nižšímu bodu tání lithia však přestává být chlazení rotací dostatečně efektivní, pročež se v NFS vyvíjejí terčová uspořádání s chladicí vodou. Nejvyšší neutronové toky jsou generovány v těsné blízkosti terče při použití berylia, kdy je možné dosáhnout hodnot vyšších než  $5 \cdot 10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ . Toto i jiná intenzivní neutronová pole lze stejně jako na Ústavu jaderné fyziky využít k měřením účinných průřezů aktivační technikou, neboť součástí pracoviště jsou i ozařovací stanice a gama spektrometrické systémy. [30]

## 3.3 Pracoviště ve světě

Obecně lze říci, že zastoupení urychlovačem řízených generátorů rychlých neutronů se zdrojovou reakcí typu (p,n) či (d,n) se v jednotlivých zemích velmi liší. Nejlepší shodu s evropskými zdroji vykazují laboratoře v Japonsku; kvazimonoenergetická spektra neutronů až do energie 400 MeV se produkují na lithiových terčích v laboratoři RCNP (*Research Center for Nuclear Physics*) ve městě Osaka [33] a dva obdobné zdroje se nacházejí v centrech CYRIC (*Cyclotron and Radioisotope Center*) v Tohoku a TIARA (*Takasaki Ion Accelerators for Advanced Radiation Application*) v Takasaki. I jejich generátory využívají k produkci kvazimonoenergetických neutronových svazků reakci typu (p,n) na lithiu a poskytují maximální energii neutronů

shodně do 90 MeV. [34, 35] Několik neutronových zdrojů je také dostupných pod správou společnosti JCANS (*Japan Collaboration on Accelerator-Driven Neutron Sources*), z nichž RANS (*RIKEN Accelerator-Driven compact Neutron Source*) a KUANS (*Kyoto University Accelerator-Driven Neutron Source*) využívají lineární urychlovače protonů a terče z berylia nikoli k produkci rychlých, ale (díky vrstvě moderátoru, např. polyethylenu) nízkoenergetických neutronových spekter s maximy pohybujícími se pouze v řádech kiloelektronvoltů [36]. Podobné centrum se pak nachází také v USA; v laboratoři LENS (*Low Energy Neutron Source*) je umístěn pulzní urychlovač protonů, který připojením jedné ze dvou terčových stanic produkuje buď tepelné a rychlé neutrony až do energie 11 MeV, anebo tzv. chladná spektra s velmi nízkými energiemi. Obě stanice obsahují beryliový terčik, avšak první je bez moderátoru, zatímco ve druhé je pro zpomalení neutronů přítomen pevný methan o extrémně nízké teplotě. [37] V USA se nachází i řada laboratoří zaměřených na produkci vysokoenergetických neutronů s maximy energií v hodnotách stovek MeV, dominantně jsou v nich však využívány spalační reakce. Příkladem mohou být pracoviště WNR (*Weapons Neutron Research*) jakožto součást LANSCE (*Los Alamos Neutron Science Center*) či SNS (*Spallation Neutron Source*) v rámci národní laboratoře Oak Ridge, na území Kanady jsou pak obdobná spektra produkována na pracovištích NIF (*Neutron Irradiation Facilities*), zastřešovaných národním centrem urychlovačů částic TRIUMF.



## Část II

# Experiment



## Kapitola 4

# Ozařovací experiment na Ústavu jaderné fyziky AV ČR

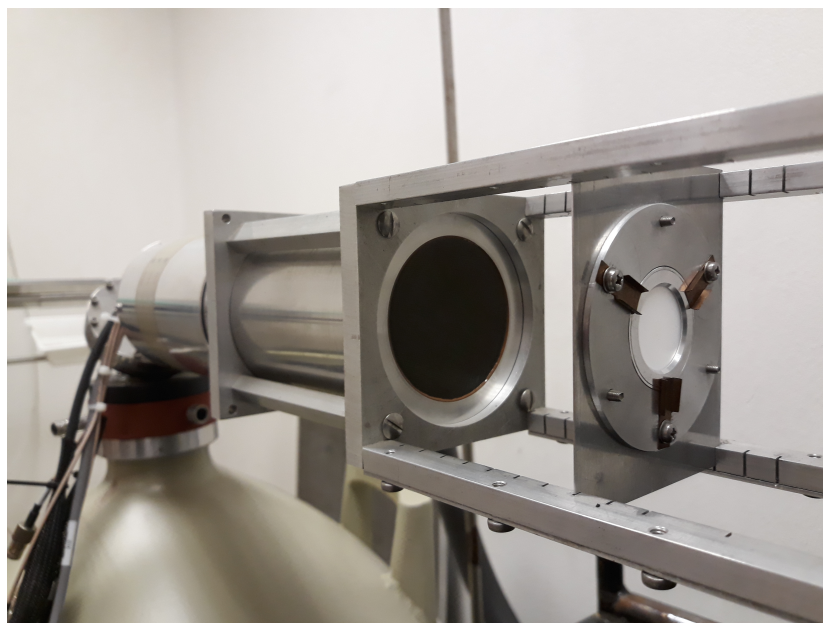
Primárním cílem praktické části i bakalářské práce jakožto celku bylo navrhnout a zrealizovat ozařovací experiment s vhodnou sadou aktivačních fólií v poli  $p + \text{Be}$  neutronového generátoru s beryliovou terčovou stanicí na ÚJF. Jelikož na tomto pracovišti již proběhl výzkum neutronových polí generovaných svazky protonů o energiích 20 MeV [38], 24 MeV [2], 30 MeV [39] a 35 MeV [40], byl pro tento experiment zvolen protonový svazek s energií 22 MeV. Tato volba byla učiněna především s ohledem na skutečnost, že výsledné neutronové spektrum s očekávanou maximální energií přibližně 20 MeV bude zejména vhodné pro validaci účinných průřezů v oblasti fúzních neutronů ( $\geq 12$  MeV), mimořádně relevantních pro výzkumné programy ITER a IFMIF [2]. Získá se tak rovněž dobře definované a snadno reprodukovatelné neutronové pole s výhodou využitelné v NAA rychlými neutrony.

Navržený ozařovací experiment proběhl ve dnech 12. a 13. 3. 2021. Jeho realizace však krom samotného ozařování aktivačních fólií v poli neutronového generátoru sestávala také z rozsáhlých přípravných činností a především následného dlouhodobého proměřování vzorků na gama spektrometru. Samostatnou kapitolu z tohoto důvodu tvořila účinnostní kalibrace použitého HPGe  $\gamma$ -spektrometrického systému, jejíž popis stejně jako popis všech ostatních jmenovaných fází experimentu je obsahem následujících stran.

### 4.1 Kalibrace spektrometrického řetězce

Pro gama spektrometrickou analýzu ozářených aktivačních fólií bylo zamýšleno použití detekčního řetězce s HPGe detektorem Canberra a obslužným softwarem Genie-2000, instalovaného v měřicí laboratoři Oddělení jaderných reakcí ÚJF. Za tímto účelem bylo nejprve nutno tento  $\gamma$ -spektrometrický systém zkalibrovat, tj. zjistit

jeho absolutní píkovou detekční účinnost pro všechny pozice detektor-vzorek, do nichž měly být po ozařování umístovány jednotlivé aktivační fólie. Účinnostní kalibrace pro pozice p5 a p8 byla provedena 4. 2. 2021, dne 6. 4. byla doplněna taktéž data pro zkalibrování pozice p20.<sup>1</sup>



**Obr. 4.1:** HPGe detektor Canberra s kalibračním zářičem umístěným na pozici p8

V roli etalonů byla použita sada kalibračních zářičů, souhrnně uvedených v tabulce 4.1 včetně jejich výrobních čísel, referenčních aktivit  $A_{\text{ref}}$  s příslušnými nejistotami a jejich referenčních dat.

**Tab. 4.1:** Charakteristiky jednotlivých použitých kalibračních zářičů

Radionuklid	Výrobní číslo	$A_{\text{ref}}$ (kBq)	$\sigma_A$ (%)	Referenční datum
$^{54}\text{Mn}$	160719-1630018	453,90	0,705	22. 8. 2019
$^{57}\text{Co}$	160719-1749026	54,77	0,402	22. 8. 2019
$^{60}\text{Co}$	250511-1311001	706,40	0,007	28. 6. 2011
$^{88}\text{Y}$	160719-1756013	667,30	0,495	22. 8. 2019
$^{133}\text{Ba}$	250511-1295001	246,00	0,020	28. 6. 2011
$^{137}\text{Cs}$	15012002-591003	401,70	0,001	24. 3. 2003
$^{152}\text{Eu}$	160719-1529047	185,30	0,702	22. 8. 2019
$^{241}\text{Am}$	856-01	85,24	0,006	24. 3. 2003

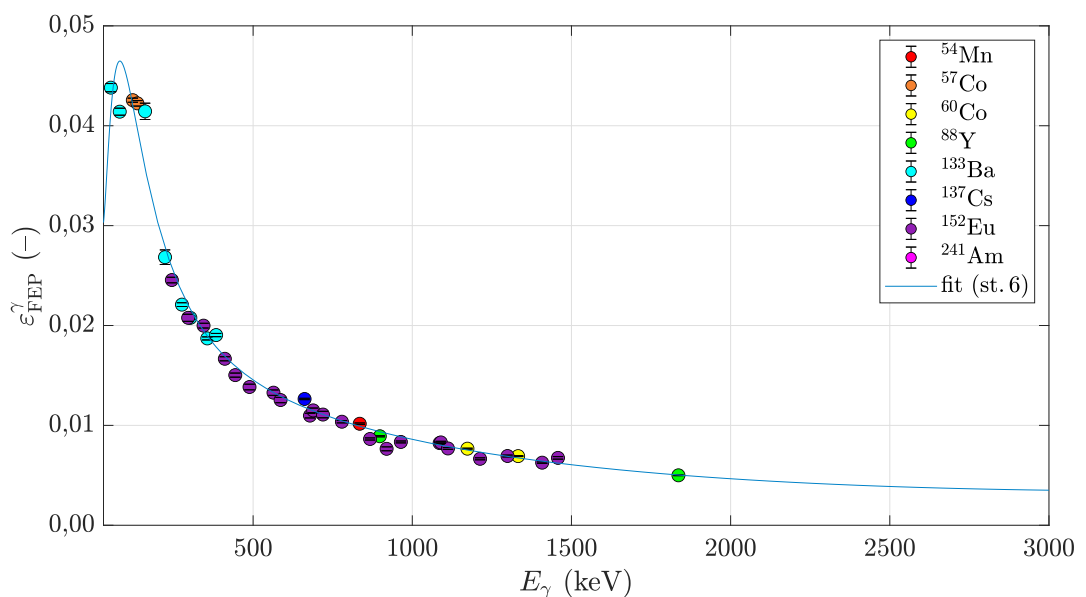
V souladu s teorií popsanou v kapitole 2.2.1 bylo pro každý kalibrační standard změřeno jeho  $\gamma$ -spektrum při umístění na pozici p5, p8 i p20. Spektra byla následně analyzována pomocí předdefinovaného algoritmu v rámci obslužného softwaru Genie;

<sup>1</sup>Čísllice v označení jednotlivých pozic indikují vzdálenost vzorku od detektoru. Pro první dvě jmenované polohy jde o vyjádření délky v jednotkách cm, tedy 5 cm pro pozici p5, 8 cm pro p8; pozice p20 se však od tohoto pravidla odchyluje, neboť vzorek v umístěný v poloze p20 se od detektoru nachází ve vzdálenosti 30 cm.

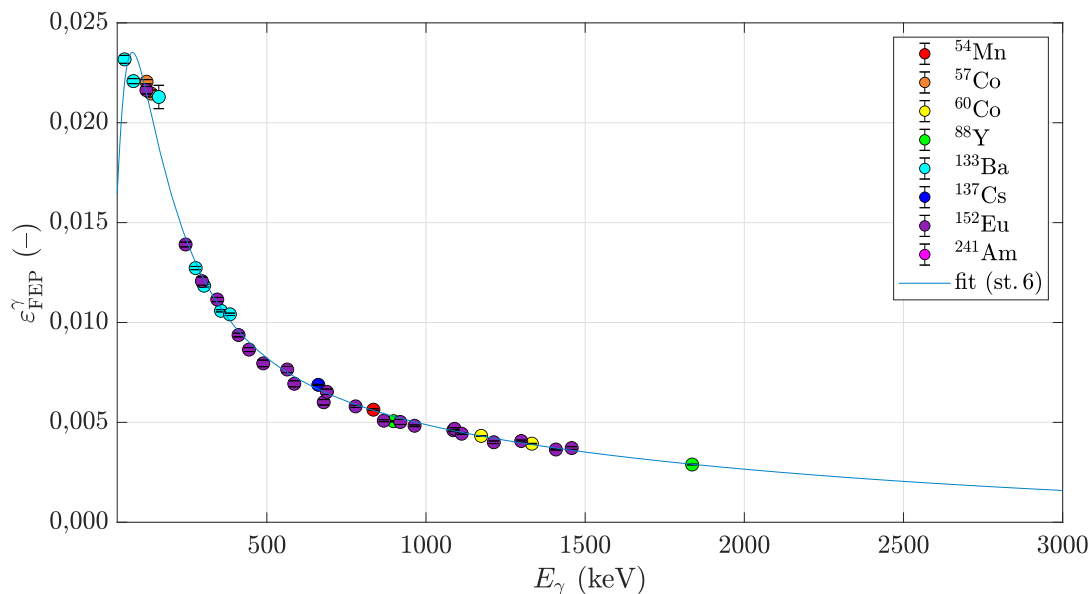
tímto způsobem se identifikovaly jednotlivé gama linky, přičemž krom jejich energie  $E_\gamma$  analýza poskytla i hodnoty jejich plochy  $S(E_\gamma)$  včetně nejistot. Při každém měření byly softwarem taktéž zaznamenávány časy  $t_{\text{real}}$  a  $t_{\text{live}}$ . Zbývající veličiny v rovnici (2.5), tj. rozpadovou konstantu  $\lambda$  a intenzity linek  $I_\gamma(E_\gamma)$ , poskytla databáze *The Lund/LBNL Nuclear Data Search* [41], založená na knihovně jaderných dat ENSDF (*Evaluated Nuclear Structure Data File*) [42]. Vzájemně korespondující údaje byly následně vkládány do vztahu (2.5), čímž vznikaly diskrétní body o souřadnicích  $[E_\gamma; \varepsilon_{\text{FEP}}^\gamma]$ , doplněné odpovídajícími vertikálními neurčitostmi. Výběrem všech bodů příslušejících jedné pozici pak vznikl soubor dat, jimiž byly prostřednictvím programu efekt32 prokládány kalibrační křivky ve známém tvaru (2.6). Pro pozice p5 a p8 se jako nejvhodnější fit ukázaly polynomy šestého stupně, zatímco data pro pozici p20 nejlépe vystihoval polynom stupně 5. Koeficienty příslušných polynomů, spočtené jmenovaným programem společně s jejich nejistotami, jsou uvedeny v tabulce 4.2.

**Tab. 4.2:** Koeficienty polynomů šestého, resp. pátého stupně pro kalibrační křivky pozic p5 a p8, resp. p20

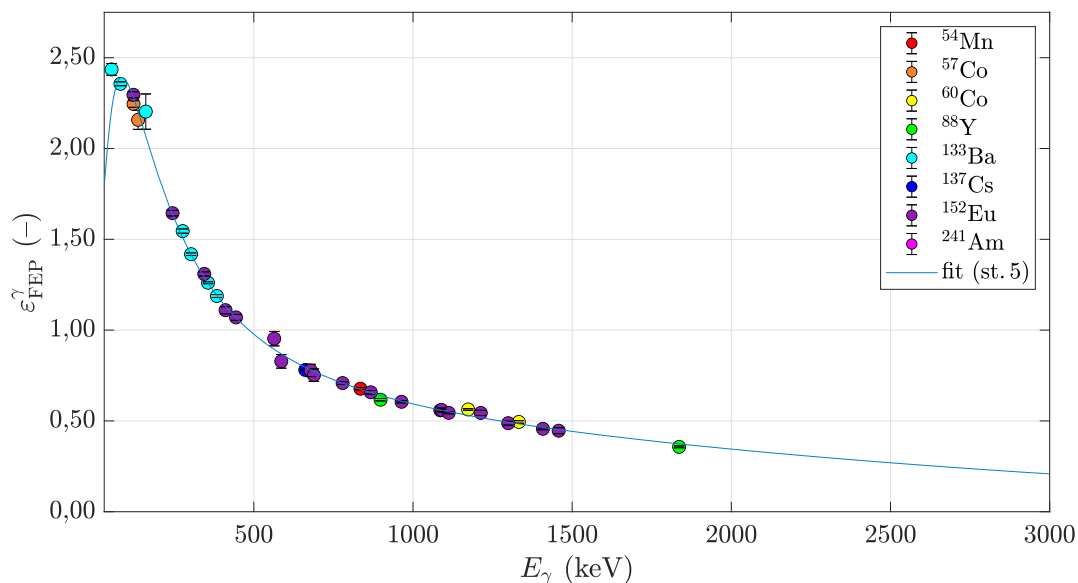
Koeficient	p5	p8	p20
$a_0$	$-4,7560 \pm 0,0026$	$-5,3217 \pm 0,0020$	$-7,4296 \pm 0,0030$
$a_1$	$-0,8070 \pm 0,0106$	$-0,7623 \pm 0,0076$	$-0,6989 \pm 0,0084$
$a_2$	$-0,1317 \pm 0,0116$	$-0,0717 \pm 0,0098$	$-0,0086 \pm 0,0168$
$a_3$	$-0,0582 \pm 0,0258$	$-0,1121 \pm 0,0202$	$-0,1036 \pm 0,0211$
$a_4$	$0,0805 \pm 0,0245$	$-0,0412 \pm 0,0188$	$-0,0775 \pm 0,0097$
$a_5$	$0,0585 \pm 0,0084$	$0,0049 \pm 0,0066$	$-0,0113 \pm 0,0014$
$a_6$	$0,0088 \pm 0,0010$	$0,0018 \pm 0,0008$	–



**Obř. 4.2:** Kalibrační křivka pro pozici p5



Obr. 4.3: Kalibrační křivka pro pozici p8



Obr. 4.4: Kalibrační křivka pro pozici p20

Graficky jsou výsledné kalibrační křivky v rozsahu energií 30 keV až 3 MeV znázorněny na obrázcích 4.2, 4.3 a 4.4. Při volbě stupně prokládacího polynomu byl důraz kladen zejména na energie vyšší než přibližně 80 keV, jež lze chápat jako hlavní pracovní oblast jaderné  $\gamma$ -spektrometrie. Tímto způsobem se otevřela možnost proměřovat experimentální vzorky v závislosti na jejich aktivitě ve třech různých vzdálenostech od detektoru.

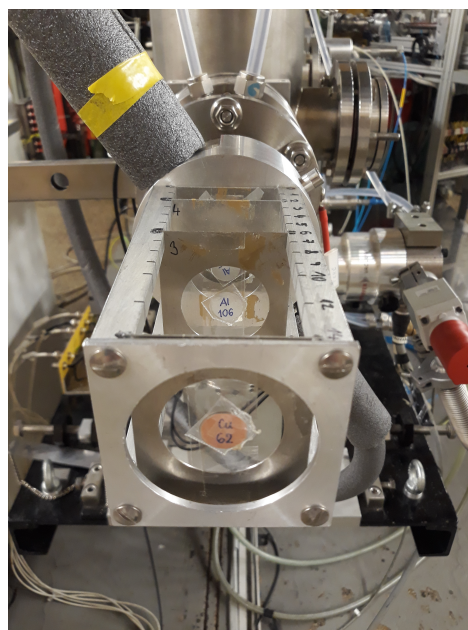
## 4.2 Příprava aktivačních materiálů

Před zahájením samotného ozařovacího experimentu bylo zapotřebí provést celou řadu přípravných činností. Zásadní význam přitom měla zejména příprava sad aktivačních fólií určených k umístění do pole neutronového generátoru. K ozáření bylo vybráno celkem 11 aktivačních materiálů, a to nikl, kobalt, zlato, indium, titan, hliník, yttrium, lutecium, železo, niob a měď. Příslušné aktivační fólie měly shodně tvar tenkého kruhového plíšku o průměru 15 mm, přičemž jejich tloušťky se mírně lišily v závislosti na konkrétním materiálu. Za účelem jednoznačné identifikace byla každá fólie opatřena nápisem s chemickou značkou příslušného prvku a pořadovým číslem, načež byla pomocí citlivých vah zjištěna a zaznamenána její hmotnost.

Z těchto fólií byly sestaveny celkem čtyři sady vzorků, označené pro jednoduchost jako S1, S2, S3 a S4, určené pro ozáření v různých místech neutronového pole. Rozložené sady fólií před uvedením do žádané experimentální konfigurace jsou zachyceny na fotografii 4.5a; finální instalaci po jejich zatavení do polyetylenových obalů, umístění do ozařovacích pozic na speciálním hliníkovém držáku a připevnění celé konstrukce na neutronový generátor dokumentuje obrázek 4.5b.



(a) Před instalací



(b) Po instalaci na nosič a generátor neutronů

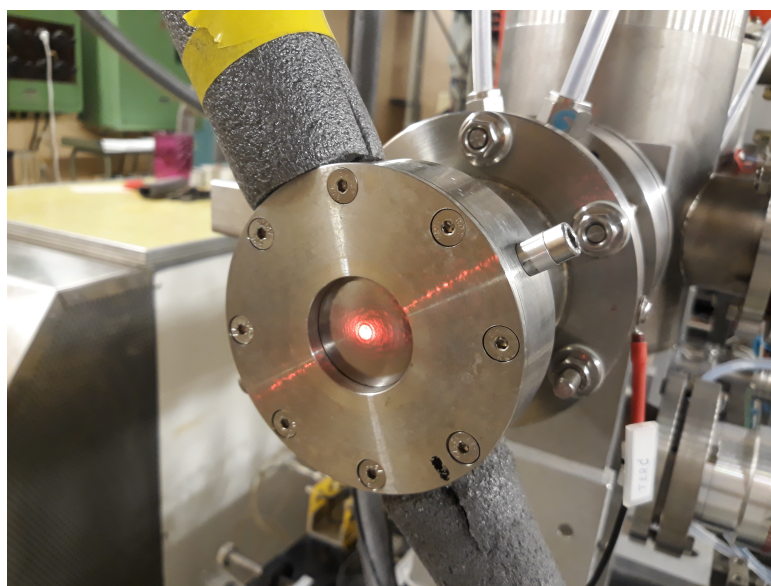
**Obr. 4.5:** Sady aktivačních fólií použitých při ozařovacím experimentu

Sady S1 a S4 obsahovaly všech 11 aktivačních materiálů a jejich úkolem bylo poskytnout kompletní data pro analýzu produkovaných neutronů v nejbližší (P0) a nejvzdálenější (P14) ozařovací pozici vůči neutronovému generátoru při umístění na držáku. Vzorky instalované do polohy P0 se přitom nacházely 14 mm od produkčního beryliového terče, zatímco umístění v poloze P14 zajišťovalo více než desetinásobnou

vzdálenost 154 mm. Každá ze sad S2 a S3 naproti tomu sestávala pouze ze tří fólií (Au, In, Al) a jimi poskytnutá data měla sloužit především k určení prostorového vývoje neutronového pole mezi krajními polohami, pročež byly na nosiči umístěny do ozařovacích pozic P2 a P6, vzdálených od beryliového terče 34 mm a 74 mm.

### 4.3 Ozařovací experiment

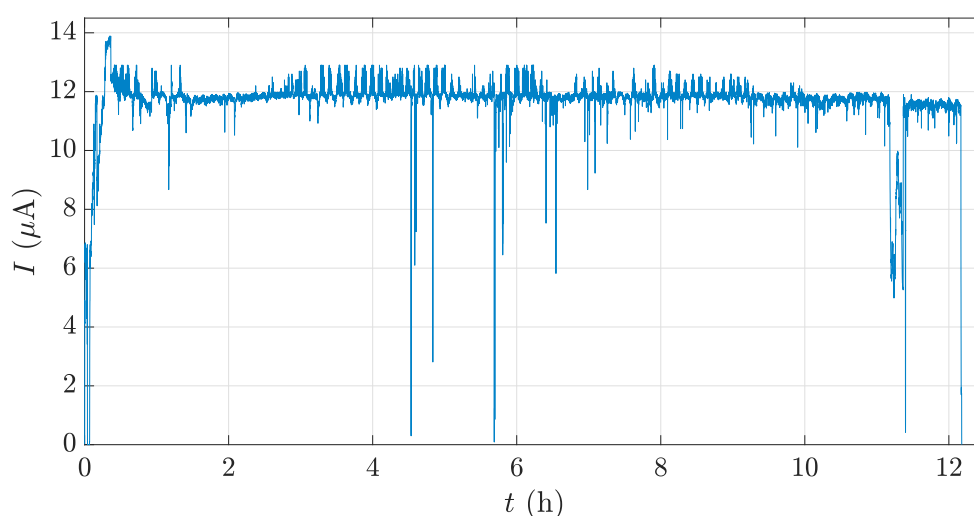
Než však mohl být nosič dozimetrických fólií instalován na neutronový generátor, bylo třeba paralelně s přípravou aktivačních materiálů provést taktéž komplexní přípravné práce přímo na hale cyklotronu, neboť generátory neutronů nejsou trvalou součástí trasy urychlovače. V den experimentu bylo proto nejprve nutno nastavit svazek vyváděných protonů jak z hlediska požadované energie, tak s ohledem na jeho geometrickou osu. Prvého se dosáhlo vhodným nastavením parametrů cyklotronu; druhý proces zahrnoval získání dvou bodů na ose svazku, přičemž jeden byl vytvořen propálením speciální fólie procházejícími protony a druhý poskytla kamera snímající vyváděné částice prostřednictvím speciálního stínítka instalovaného v iontovodu. Poté se do těchto dvou bodů navedl laserový paprsek, jenž po správném nastavení reprezentoval geometrickou osu svazku, a s pomocí jeřábu se do ní v dalším kroce připojila i beryliová terčová stanice. Následovalo zprovoznění vakuových, chladicích, monitorovacích i všech přidružených elektronických systémů, načež se z velína cyklotronu provedlo testování funkčnosti svazku. Teprve po jeho úspěšném zakončení mohl být zahájen samotný experiment.



**Obr. 4.6:** Laserový paprsek znázorňující osu protonového svazku při protnutí terčové hlavy beryliové stanice generátoru neutronů



Ozařování započalo 12. 3. v 17:35 a trvalo po dobu více než dvanácti hodin do 5:46 následujícího dne. Energie urychlených protonů byla v souladu se schváleným programem experimentu udržována na přibližné hodnotě 22 MeV, což dokládají hodnoty  $E_p^{\text{start}} = 22,185$  MeV a  $E_p^{\text{stop}} = 22,160$  MeV, zaznamenané před samotným začátkem ozařování a po jeho skončení. Po celou dobu experimentu se usilovalo o konstantní protonový proud na terči o velikosti  $12 \mu\text{A}$ , a přestože zejména v prvních desítkách minut po spuštění cyklotronu bylo velmi nesnadné toto zajistit, podařilo se dosáhnout výsledné průměrné hodnoty proudu protonů  $I = 11,66 \mu\text{A}$  (viz graf 4.7). Uspořádání experimentálních zařízení po dobu ozařování je pak zaznamenáno na fotografii 4.8.



**Obr. 4.7:** Časový záznam proudu na beryliovém terči při ozařování protonovým svazkem, vyvedeným z cyklotronu U-120M



**Obr. 4.8:** Konfigurace ozařovacího experimentu – beryliová terčová stanice s nasazeným držákem aktivačních fólií, zapojená do soustavy s cyklotronem U-120M

## 4.4 Měření aktivovaných vzorků

Poslední a nejdéle trvající prací v rámci experimentu bylo naměření  $\gamma$ -spekter ozářených aktivačních fólií. K tomu bylo nutno opět sejmout držák z neutronového generátoru, přenést jej z haly cyklotronu do měřicí laboratoře a tam jednotlivé sady fólií rozpečetit, aby mohly být jedna po druhé ve vhodných vzorek-detektorových vzdálenostech proměřovány HPGe gama spektrometrickým systémem Canberra.



**Obr. 4.9:** HPGe gama spektrometrický systém Canberra během měření – dobře patrná je tzv. Dewarova nádoba obsahující tekutý dusík pro chlazení, tělo samotného detektoru a masivní olověné stínění

Měření byla plánována jako cyklická s odhadovanou dobou trvání několika týdnů. Jelikož bezprostředně po ukončení ozařování dosahují dávkové příkony na povrchu fólií obvykle hodnot jednotek milisievertů, byly tyto činnosti s ohledem na bezpečnost práce zahájeny až přibližně hodinu po odstavení neutronového generátoru. Získávání, ukládání a základní píkovou analýzu naměřených  $\gamma$ -spekter zajišťoval obslužný software Genie-2000. V maximální snaze o optimalizaci bylo pečlivě voleno pořadí, čas i počet měření fólií. Přednostně byly proměřovány ty materiály, u nichž se předpokládala produkce radionuklidů s nejkratšími poločasy rozpadu, přičemž v měřítku celých sad se při každém cyklu postupovalo od nejslaběji aktivní S4 k nejvíce aktivované S1. První měření trvalo pro všechny fólie shodně 10 minut, avšak s každým dalším opakováním byl tento čas vhodně prodlužován<sup>2</sup> v závislosti na tom, jakých počtů pulzů se dařilo dosahovat pod zkoumanými píky. Každá fólie byla takto proměřena několikrát, díky čemuž byla maximalizována pravděpodobnost zaznamenání všech naprodukovaných radionuklidů bez ohledu na jejich poločasy

<sup>2</sup>Délka posledních měření se pohybovala v řádu dní.

---

rozpadu. Poslední měření proběhla dne 6. 4., týkala se zlatých fólií a měla pořadové číslo 8. Vzhledem k délce poločasu rozpadu některých aktivačních produktů však nejsou vyloučena další dodatečná měření.



# Kapitola 5

## Vyhodnocení naměřených dat

Jelikož soubor dat získaný měřením ozářených fólií byl mimořádně obsáhlý<sup>1</sup>, nekladla si tato bakalářská práce za cíl analyzovat je v plném rozsahu, přičemž dokončit vyhodnocování bude jedním z úkolů pro navazující práce (výzkumný úkol, diplomovou práci). Zadání stanovuje požadavek na provedení rozboru alespoň tří prahových reakcí ve zvolených aktivačních materiálech. K tomuto účelu byla vybrána šestice vzorků, sestávající ze dvou zlatých (Au-143, Au-144), dvou hliníkových (Al-103, Al-104) a dvou indiových (In-106, In-107) fólií. Základní údaje o každé z nich včetně označení, příslušnosti k sadě, ozařovací pozice, počtu opakování  $\gamma$ -spektrometrického měření a taktéž hmotnosti jsou uvedeny v tabulce 5.1.

**Tab. 5.1:** Fólie vybrané k detailnímu rozboru

Fólie	Sada	Pozice	Počet cyklů měření	$m$ (mg)
Au-143	S1	P0	8	172,13
Au-144	S4	P14	8	174,22
Al-103	S1	P0	6	21,48
Al-104	S4	P14	6	21,42
In-106	S1	P0	6	263,44
In-107	S4	P14	7	263,91

Samotné vyhodnocování dat získaných pro jednotlivé vzorky sestávalo z několika dílčích úkonů. Nejprve bylo třeba vždy vytipovat reakce, jež mohly na daném materiálu při ozařování neutrony o očekávané maximální energii 20 MeV proběhnout, k čemuž byl využit online nástroj *QCalc* [25] využívající knihovnu AME2016 (*Atomic Mass Evaluation*) [43]. Tento software na základě specifikování terčové a iniciační částice sestavoval seznamy reakcí včetně jejich  $Q$ -hodnot a prahových energií; z tohoto seznamu bylo následně možné určit nejpravděpodobněji naprodukované radionuklidy. Ty se na základě energií gama linek, jejich intenzit a poločasů rozpadu převzatých z databáze *The Lund/LBNL Nuclear Data Search* [41] hledaly v podobě

<sup>1</sup>V současné době je jeho součástí přibližně 200 naměřených  $\gamma$ -spekter.

píků v naměřených gama spektrech, resp. v následně vygenerovaných souborech typu RPT obslužného softwaru Genie-2000.

Jestliže se v souboru  $\gamma$ -spekter pro konkrétní fólii podařilo daný radionuklid identifikovat, byly z RPT souborů odečteny plochy  $S(E_\gamma)$  pod píky příslušejícími jeho jednotlivým linkám včetně nejistot; dosazením do vztahu (1.12) se pak spočetly příslušné reakční rychlosti na jedno terčové jádro. Veličiny  $E_\gamma$ ,  $\lambda$  a  $I_\gamma(E_\gamma)$  byly přitom i s příslušnými neurčitostmi opět převzaty z databáze *The Lund/LBNL Nuclear Data Search* [41]. Parametry  $t_{\text{real}}$ ,  $t_{\text{live}}$  naproti tomu pro každé individuální měření udaly soubory RPT, časy  $t_v$  a  $t_a$  byly dopočteny jednak z těchto údajů a jednak ze záznamu o ozařování, poskytnutého operátory cyklotronu, a veličina  $N_0$  byla určena na základě hmotnosti fólie, typu reakce a dat z online periodické tabulky prvků [44]. Poslední parametr  $\varepsilon_{\text{FEP}}^\gamma(E_\gamma)$  se získal dosazením energie gama linky do předpisu jedné ze tří dříve stanovených kalibračních křivek v závislosti na geometrii konkrétního měření. Nakonec byl výsledek v souladu s teorií popsanou v kapitole 1.2.1 přenásoben korekčním faktorem na nerovnoměrnost ozařování  $f_{\text{irr}}$ .

Nejistoty takto spočtených reakčních rychlostí  $\sigma_{R_R}$  byly pak stanoveny na základě zákona propagace neurčitostí pomocí empiricky optimalizovaného vztahu

$$\sigma_{R_R} = \sqrt{\left(0,03 \left(\frac{t_{\text{real}}}{t_{\text{live}}} - 1\right)\right)^2 + \left(t_v \lambda \sigma_{T_{1/2}}\right)^2 + \sigma_S^2 + \sigma_{I_\gamma}^2}, \quad (5.1)$$

kde  $\sigma_{T_{1/2}}$ ,  $\sigma_S$  a  $\sigma_{I_\gamma}$  jsou popořadě bezrozměrné nejistoty poločasu rozpadu, plochy píku a intenzity příslušného gama přechodu [15]. Pro každý indentifikovaný radionuklid takto vznikl soubor hodnot  $R_R$  a  $\sigma_{R_R}$  s různým počtem prvků v závislosti na jeho poločase rozpadu, počtu cyklů měření a také množství identifikovatelných gama linek. Z tohoto souboru byl následně spočten vážený průměr a jeho neurčitost, přičemž právě takto stanovené hodnoty byly považovány za konečný výsledek pro danou kombinaci fólie, resp. ozařovací pozice a reakce.

V zájmu přehlednosti bude nejprve pojednáno o hliníku jakožto nejsnáze analyzovatelném materiálu, následovat bude vyhodnocení dat získaných pro fólie ze zlata a jako poslední budou rozebrány reakce na indiu.

## 5.1 Hliník

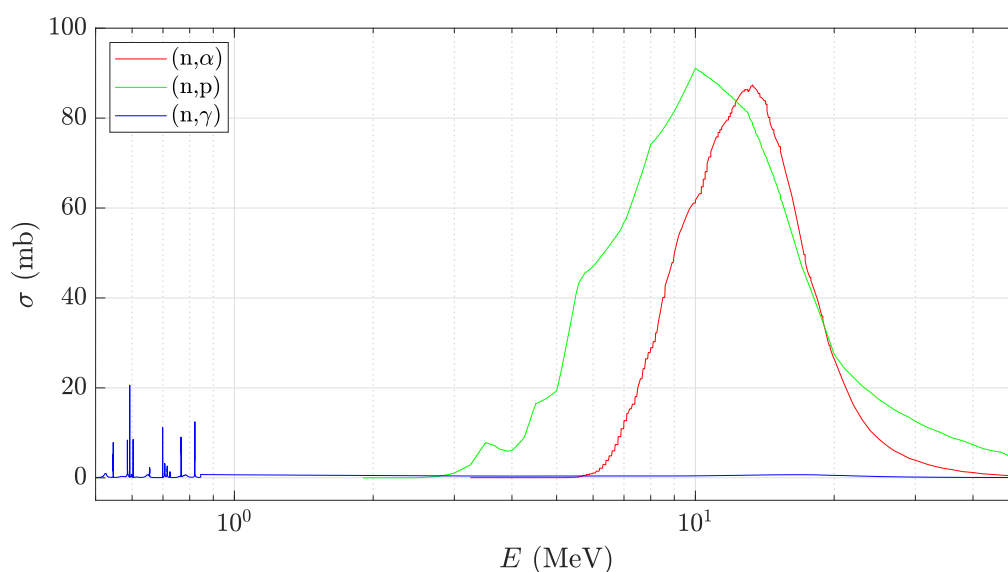
Jednoduchost analýzy  $\gamma$ -spekter hliníkových fólií spočívá v několika skutečnostech. Jednou z nich je složení, neboť přírodní hliník je monoizotopický, tvořený ze 100 % izotopem  $^{27}\text{Al}$  [44]; k využití ve spektrometrii polí rychlých neutronů však tento materiál předurčuje zejména jeho výhodné specifické chování při neutronovém ozařování. Jedinou pozorovatelnou interakcí při následné gama spektrometrické analýze je

totiž zpravidla prahová reakce  $(n,\alpha)$  a nejinak tomu bylo i při analýze fólií Al-103 a Al-104. Radionuklid  $^{24}\text{Na}$ , vznikající jako její produkt, je přitom pro další zkoumání vhodný především díky poměrně dlouhému poločasu rozpadu o délce přibližně 15 h a dvěma intenzivním  $\gamma$ -linkám s energiemi zhruba 1 369 keV a 2 754 keV [41]. Nejdůležitější parametry z hlediska  $\gamma$ -spektrometrie jsou pro tuto reakci uvedeny v tabulce 5.2, kde  $Q$  reprezentuje tzv.  $Q$ -hodnotu neboli energii reakce,  $E_{\text{prah}}$  je její prahová energie,  $T_{1/2}$  označuje poločas rozpadu produkovaného radionuklidu a energie  $E_\gamma$  a intenzita  $I_\gamma(E_\gamma)$  se vztahují k jeho gama linkám identifikovaným v naměřených spektrech.

**Tab. 5.2:** Reakce pozorované při  $\gamma$ -spektrometrické analýze fólií Al-103 a Al-104 [25, 41]

Reakce	$Q$ (keV)	$E_{\text{prah}}$ (keV)	$T_{1/2}$ (h)	$E_\gamma$ (keV)	$I_\gamma$ (%)
$^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$	-3 132,9	3 249,7	14,959	1 368,633	100,000
				2 754,028	99,944

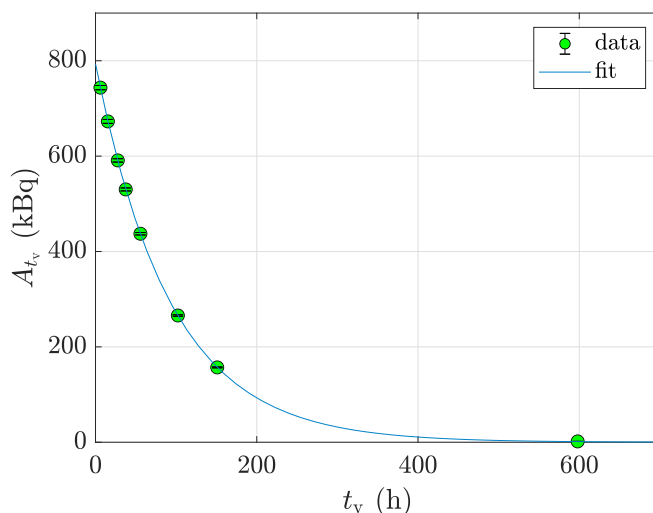
Mimo reakci  $(n,\alpha)$  dochází na hliníku při aktivaci rychlými neutrony zpravidla taktéž k interakcím  $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$  a  $^{27}\text{Al}(n,\gamma)^{28}\text{Al}$ . S ohledem na krátké poločasy rozpadu, pro  $^{27}\text{Mg}$  o délce přibližně 9,5 min a v případě  $^{28}\text{Al}$  dokonce pouze 2,2 min [41], je však v naměřených spektrech není obvykle možné pozorovat. Pro ilustraci jsou na obrázku 5.1 vykresleny grafy účinných průřezů všech tří interakcí. Z jejich srovnání vyplývá, že zatímco reakce  $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$  se svým prahem, tvarem i nabývanými hodnotami velice podobá pozorované interakci  $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$ , vliv bezprahové reakce  $^{27}\text{Al}(n,\gamma)^{28}\text{Al}$ , jež dominuje pro neutrony o tepelných energiích, je s výjimkou rezonancí ve vysokoenergetické oblasti relevantní pro rychlé neutrony již téměř zanedbatelný.



**Obr. 5.1:** Excitační funkce pro neutrony iniciované reakce  $(n,\alpha)$ ,  $(n,p)$  a  $(n,\gamma)$  na  $^{27}\text{Al}$  [8, 9]

Naměřená  $\gamma$ -spektra obou hliníkových fólií byla vyhodnocována v souladu s výše uvedeným postupem. Pro fólii Al-103, ozařovanou v pozici P0, byla takto pro reakci  $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$  získána finální reakční rychlost jako  $R_R = (8,674 \pm 0,036) \cdot 10^{-16} \text{ s}^{-1}$ ; výsledek pro Al-104 a jí odpovídající pozici P14 pak činil  $R_R = (2,021 \pm 0,010) \cdot 10^{-17} \text{ s}^{-1}$ . Rozdíl mezi hodnotami přitom odpovídá poklesu reakční rychlosti o jeden až tři řády, pozorovanému při dříve prováděných experimentech s obdobnými poli neutronů.

V rámci ověřování správnosti interpretace dat bylo dodatečně provedeno experimentální stanovení poločasu rozpadu  $^{24}\text{Na}$ ; toto je ilustrováno grafem 5.2. Jako reprezentativní byla vybrána nejintenzivnější gama linka  $^{24}\text{Na}$  o energii 1 369 keV, pozorovaná v  $\gamma$ -spektrech fólie Al-103. Postup zjištění jeho  $T_{1/2}$  zahrnoval s pomocí rovnic (1.9) a (1.11) spočítat aktivitu fólie v okamžiku zahájení každého ze šesti provedených měření, takto získat diskrétní body o souřadnicích  $[t_v; A]$  a následně tato data proložit závislostí ve tvaru exponenciálního rozpadového zákona  $A(t_v) = A_0 e^{-\frac{\ln(2)}{T_{1/2}} t_v}$ . Fitováním v programu MATLAB se podařilo tyto hodnoty spočíst s výsledky  $A_0 = (176,9 \pm 3,5) \text{ kBq}$  a  $T_{1/2} = (15,25 \pm 0,42) \text{ h}$ . Poločas rozpadu  $^{24}\text{Na}$  o velikosti  $(14,9590 \pm 0,0012) \text{ h}$ , převzatý z databáze [41], je plně v souladu s experimentálním výsledkem; správnost identifikace pozorovaného radionuklidu jako  $^{24}\text{Na}$  lze tedy považovat za ověřenou.



**Obr. 5.2:** Proložení aktivit izotopu  $^{24}\text{Na}$ , vypočtených z ploch pod píkem o energii 1 369 keV, křivkou ve tvaru  $y = ae^{bx}$



## 5.2 Zlato

Dalšími analyzovanými vzorky byly aktivační fólie Au-143 a Au-144. Zlato je stejně jako hliník monoizotopický materiál, obsahující jediný izotop  $^{197}\text{Au}$  [44], na rozdíl od hliníkových aktivačních detektorů je však ve spektrech fólií ze zlata obvykle možné pozorovat celou řadu reakcí. V případě tohoto experimentu se jich podařilo prokázat celkem pět. Dvě z nich, konkrétně radiační záchyt  $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$  a reakce  $^{197}\text{Au}(n,p)^{197}\text{Pt}$ , přitom byly bezprahové, zatímco reakce  $^{197}\text{Au}(n,2n)^{196}\text{Au}$ ,  $^{197}\text{Au}(n,2n)^{196m2}\text{Au}$  a  $^{197}\text{Au}(n,3n)^{195}\text{Au}$  charakterizovaly různě vysoké prahové energie. Přehled  $\gamma$ -spektrometrických parametrů všech identifikovaných reakcí obsahuje tabulka 5.3.

**Tab. 5.3:** Reakce pozorované při  $\gamma$ -spektrometrické analýze fólií Au-143 a Au-144 [25, 41]

Reakce	$Q$ (keV)	$E_{\text{prah}}$ (keV)	$T_{1/2}$ (h)	$E_{\gamma}$ (keV)	$I_{\gamma}$ (%)
$^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$	6 512,36	0,0	64,68	411,80	96,0
				675,88	0,8
				1 087,68	0,2
$^{197}\text{Au}(n,p)^{197}\text{Pt}$	62,4	0,0	19,89	77,35	17,0
$^{197}\text{Au}(n,2n)^{196}\text{Au}$	−8 072,0	8 114,0	148,39	355,68	87,0
				332,98	22,9
				426,00	7,0
				521,18	0,4
$^{197}\text{Au}(n,2n)^{196m2}\text{Au}$	−8 667,7	8 712,1	9,60	1 091,33	0,1
				147,81	43,0
				188,27	37,4
				168,37	7,6
				285,49	4,3
				316,19	2,9
$^{197}\text{Au}(n,3n)^{195}\text{Au}$	−14 715,3	14 790,7	4 466,16	137,69	1,3
				264,00	1,3
				98,85	10,9
				129,70	0,8

V případě interakcí vedoucích na radionuklidy v metastabilním stavu<sup>2</sup> nemohly být přitom  $Q$ -hodnoty a prahové energie přebírány přímo z nástroje *QCalc*. Od energie reakce musel být pro získání odpovídající  $Q$  nejprve v absolutní hodnotě odečten přebytek energie tohoto metastabilního stavu vůči základnímu, přičemž velikost příslušné prahové energie byla zjištěna ze zjednodušeného vztahu pro přepočet mezi těžišťovou a laboratorní soustavou ve tvaru

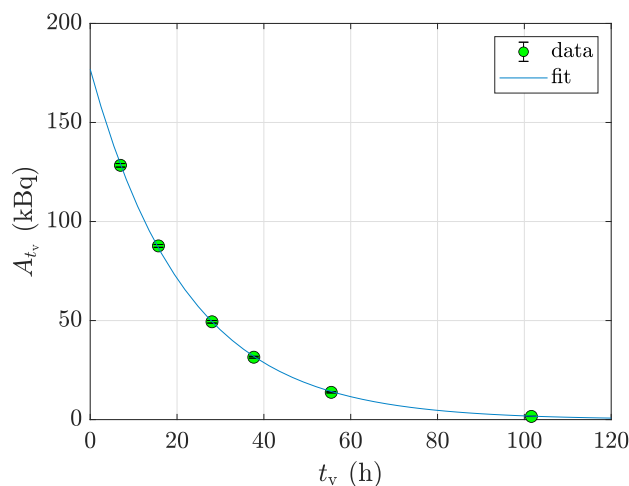
$$E_{\text{prah}} = -Q \frac{m_n + M_{\text{target}}}{M_{\text{target}}}, \quad (5.2)$$

<sup>2</sup>Metastabilní stav je ve značce radionuklidu respektován písmenem „m“ za jeho nukleonovým číslem.

kde  $m_n$  zde reprezentuje hmotnost neutronu jakožto projektilu a  $M_{\text{target}}$  je hmotnost terčové částice. Parametry metastabilního stavu se podařilo získat z databáze *NuDat* 2.8 [45], čerpající rovněž z knihovny jaderných dat ENSDF [42].

Větší množství pozorovaných reakcí vneslo do zpracovávání spekter zlatých fólií také další specifika. V důsledku odlišných poločasů rozpadu, energií gama linek a jejich intenzit například nebylo možné každou reakci identifikovat ve všech měřeních. Radionuklidy  $^{198}\text{Au}$ ,  $^{197}\text{Pt}$  a  $^{196}\text{Au}$  byly kupříkladu rozpoznatelné v každém naměřeném  $\gamma$ -spektru, avšak zlato  $^{196\text{m}2}\text{Au}$  přestalo již být v posledních cyklech, provedených po uplynutí deseti jeho poločasů rozpadu, viditelné. Naopak přítomnost radionuklidu  $^{195}\text{Au}$  se podařilo prokázat až při posledních měřeních, neboť jeho relativně nízkenergetické píky teprve v nich vystoupily z comptonovského pozadí více aktivních radionuklidů s  $\gamma$ -linkami v oblasti vyšších energií. Při vyhodnocování dat bylo však nutno vzít na vědomí i fakt, že  $^{196\text{m}2}\text{Au}$  je izomerem  $^{196}\text{Au}$  a s rostoucí dobou vymírání se izomerním přechodem dostává právě do svého základního stavu. V důsledku toho se pro analýzu reakce  $^{197}\text{Au}(n,2n)^{196}\text{Au}$  stala průkaznými až poslední opakování měření, kdy již došlo k úplnému vymření radionuklidu  $^{196\text{m}2}\text{Au}$ , a data pro  $^{196}\text{Au}$  tak nebyla kompromitována přírůstkem jeho rozpadu. Všechny uvedené skutečnosti daly vzniknout poměrně výrazným rozdílům v přesnosti získaných reakčních rychlostí.

Nejvyšší hodnoty  $R_R$  byly získány pro reakci  $^{197}\text{Au}(n,2n)^{196}\text{Au}$ , nejnižší pak pro interakci typu  $^{197}\text{Au}(n,3n)^{195}\text{Au}$ . Obecně se velikosti reakčních rychlostí, vztahujících se k fólii Au-143, resp. k ozařovací pozici P0, pohybovaly v řádu  $10^{-16}$  až  $10^{-14} \text{ s}^{-1}$ ; korespondující hodnoty pro fólii Au-144, resp. pozici P14, se pak opět s rozdílem přibližně dvou řádů pohybovaly mezi  $10^{-17}$  a  $10^{-16} \text{ s}^{-1}$ . Konkrétní výsledky jsou pak společně s finálními hodnotami pro všechny reakce na každé zkoumané fólii uvedeny v tabulce 5.6.



**Obr. 5.3:** Proložení aktivit izotopu  $^{198}\text{Au}$ , vypočtených z ploch pod píkem o energii 411,80 keV, křivkou ve tvaru  $y = ae^{bx}$

Pro ověření poločasu rozpadu byla v případě zlata jako příklad vybrána linka o energii 411,80 keV, příslušející radionuklidu  $^{198}\text{Au}$ . Obdobným postupem jako v případě hliníku se takto získaly hodnoty  $A_0 = (793,7 \pm 1,4)$  kBq a  $T_{1/2} = (2,694 \pm 0,012)$  d, přičemž druhý z uvedených výsledků je opět v souladu s poločasem rozpadu  $^{198}\text{Au}$ , uváděným jako  $(2,69517 \pm 0,00021)$  d [41]. Identifikaci radionuklidu je tedy znovu možné považovat za správnou.

## 5.3 Indium

Posledním analyzovaným materiálem bylo indium. Na konec kapitoly je rozbor těchto vzorků zařazen z důvodu největší složitosti; ta je dána především složením přírodního india, jež na rozdíl od předchozích dvou materiálů není monoizotopické, ale sestává z izotopů  $^{115}\text{In}$  s relativním zastoupením 95,71 % a  $^{113}\text{In}$ , tvořícího zbylých 4,29 % [44]. Reakce proběhnuvší na indiové fólii proto musely být hledány pro každý izotop zvlášť; odděleně pro ně byly rovněž sestavovány příslušné tabulky.

**Tab. 5.4:** Reakce na izotopu india  $^{115}\text{In}$ , pozorované při  $\gamma$ -spektrometrické analýze fólií In-106 a In-107 [25, 41]

Reakce	$Q$ (keV)	$E_{\text{prah}}$ (keV)	$T_{1/2}$ (h)	$E_{\gamma}$ (keV)	$I_{\gamma}$ (%)
$^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116\text{m}}\text{In}$	6 657,42	0,0	0,90	1 293,56	84,4
				1 097,33	56,2
				416,86	27,7
				2 112,31	15,5
				818,72	11,5
				1 507,67	10,0
				138,33	3,3
$^{115}\text{In}(n,\alpha)^{112}\text{Ag}$	2 693,8	0,0	3,13	1 752,72	2,5
				617,52	43,0
$^{115}\text{In}(n,n')^{115\text{m}}\text{In}$	−336,2	339,2	4,49	1 387,67	5,4
				336,24	45,8
$^{115}\text{In}(n,p)^{115}\text{Cd}$	−669,5	675,4	53,46	497,36	0,0
				336,24	45,9
				527,90	27,5
				492,30	8,0
$^{115}\text{In}(n,2n)^{114\text{m}}\text{In}$	−9 228,2	9 309,2	1 188,24	260,89	1,9
				231,44	0,7
				190,29	15,6
$^{115}\text{In}(n,3n)^{113\text{m}}\text{In}$	−16 703,6	16 850,2	1,66	725,30	3,2
				391,69	64,2

Na  $^{115}\text{In}$  se podařilo identifikovat celkem šest reakcí, z čehož radiační záchyt  $^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116\text{m}}\text{In}$  a reakce  $(n,\alpha)$  vedoucí na  $^{112}\text{Ag}$  byly bezprahové, zatímco zbylé čtyři,

tj. nepružný rozptyl  $^{115}\text{In}(n,n')^{115\text{m}}\text{In}$  a reakce  $^{115}\text{In}(n,p)^{115}\text{Cd}$ ,  $^{115}\text{In}(n,2n)^{114\text{m}}\text{In}$  a  $^{115}\text{In}(n,3n)^{113\text{m}}\text{In}$ , byly charakterizovány jistými prahovými energiemi. Tyto energie jsou opět společně s poločasem rozpadu produkovaných radionuklidů, jejich linkami a příslušnými intenzitami zaznamenány v tabulce 5.4.

Reakcí pozorovatelných na izotopu  $^{113}\text{In}$  bylo výrazně méně. Přesto se však podařilo rozpoznat bezprahový radiační záchyt  $^{113}\text{In}(n,\gamma)^{114\text{m}}\text{In}$ , zatímco prahové reakce byly ve spektrech zastoupeny nepružným rozptylem  $^{113}\text{In}(n,n')^{113\text{m}}\text{In}$  a interakcemi typu  $(n,2p)$  a  $(n,3n)$ , vedoucími na radionuklidy  $^{112}\text{Ag}$  a  $^{111}\text{In}$ . Nejdůležitější charakteristiky těchto reakcí uvádí tabulka 5.5.

**Tab. 5.5:** Reakce na izotopu india  $^{113}\text{In}$ , pozorované při  $\gamma$ -spektrometrické analýze fólií In-106 a In-107 [25, 41]

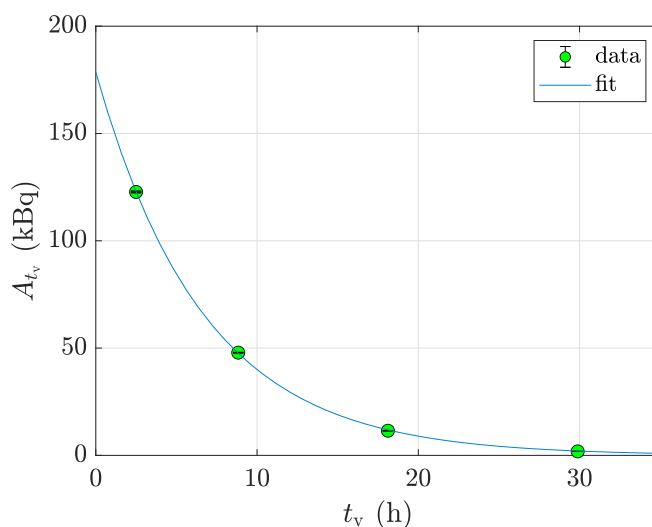
Reakce	$Q$ (keV)	$E_{\text{prah}}$ (keV)	$T_{1/2}$ (h)	$E_{\gamma}$ (keV)	$I_{\gamma}$ (%)
$^{113}\text{In}(n,\gamma)^{114\text{m}}\text{In}$	7 083,7	0,0	1 188,24	190,29	15,6
				558,46	3,2
				725,30	3,2
$^{113}\text{In}(n,n')^{113\text{m}}\text{In}$	-391,7	395,2	1,66	391,69	64,2
$^{113}\text{In}(n,2p)^{112}\text{Ag}$	-9 290,0	9 373,0	3,13	617,52	43,0
				1 387,67	5,4
$^{115}\text{In}(n,3n)^{111}\text{In}$	-17 118,0	17 271,0	67,31	245,40	94,0
				171,28	90,0

Jak je možné si povšimnout, některé interakce s různými terčovými izotopy vedou na stejné produkty; jako příklad mohou posloužit reakce  $^{115}\text{In}(n,2n)^{114\text{m}}\text{In}$  a  $^{113}\text{In}(n,\gamma)^{114\text{m}}\text{In}$ . Takovéto reakce jsou v tabulce konečných výsledků 5.6 zapisovány podle vzoru  $^{\text{nat}}\text{In}(n,x)^{114\text{m}}\text{In}$ , a zatímco reakční rychlosti pro interakce probíhající na jediném izotopu jsou vztahovány právě buď k počtu jader  $^{115}\text{In}$ , anebo  $^{113}\text{In}$ , hodnoty  $R_{\text{R}}$  pro reakce na přírodní směsi jsou uváděny vzhledem k jejich součtu, tj. k celkovému počtu všech typů jader india ve fólii. I to může být důvodem poněkud výraznějšího rozptylu reakčních rychlostí než u vzorků ze zlata; pro pozici P0, a tedy pro fólii In-106, bylo v tomto případě dosahováno hodnot v řádech od  $10^{-17}$  až do  $10^{-15} \text{ s}^{-1}$ , zatímco výsledky pro ozařovací pozici P14, tj. vzorek In-107, se pohybovaly mezi  $10^{-19}$  a  $10^{-16} \text{ s}^{-1}$ . Kompletní přehled finálních hodnot  $R_{\text{R}}$  obsahuje opět tabulka 5.6.

Zpracovávání  $\gamma$ -spekter indiových fólií však odhalilo ještě jedno specifikum tohoto materiálu; nejintenzivnější gama linky naprodukovaných radionuklidů  $^{115\text{m}}\text{In}$  a  $^{115}\text{Cd}$  se nacházely shodně na energii 336,24 keV. Aby se tedy podařilo spočítat reakční rychlosti pro obě korespondující interakce, bylo nutno nejprve analyzovat píky o dané energii v měřeních provedených po uplynutí deseti poločasů rozpadu  $^{115\text{m}}\text{In}$  společně s daty pro zbývající linky  $^{115}\text{Cd}$  a odtud standardním způsobem stanovit hodnotu  $R_{\text{R}}$  pro tento kadmiový izotop. Následně se s pomocí rovnic (1.10) a (1.11)

stanovily počty pulzů, jež po odečtení od ploch píků o energii 336,24 keV v prvních cyklech měření zaručovaly, že takto získané hodnoty již odpovídají pouze impulzům pocházejícím od  $^{115\text{m}}\text{In}$ , a je z nich tedy možné usuzovat na reakční rychlost příslušné produkční interakce. Velikost dané opravy se přitom pohybovala od několika desetin procenta pro počáteční měření až po více než čtvrtinu při měřeních prováděných na hranici deseti poločasů rozpadu  $^{115\text{m}}\text{In}$ .

Právě tato data proto byla v případě india zvolena pro ověřování poločasu rozpadu. Aktivity izotopu  $^{115\text{m}}\text{In}$  pro proložení rozpadovým zákonem byly odvozovány ze zmíněných rozdílů skutečně naměřených ploch pod píky s energií 336,24 keV a počtů pulzů dodatečně určených jakožto příspěvek od  $^{115}\text{Cd}$ . Fitování těchto hodnot dalo výsledky  $A_0 = (178,6 \pm 3,5) \text{ kBq}$  a  $T_{1/2} = (4,631 \pm 0,141) \text{ h}$ . Ze srovnání s referenční hodnotou poločasu rozpadu  $(4,486 \pm 0,004) \text{ h}$  i tentokrát vyplývá, že v rámci uváděných přesností jsou experimentální a teoretická hodnota ve shodě, a postup pro současnou analýzu izotopů  $^{115\text{m}}\text{In}$  a  $^{115}\text{Cd}$  je díky tomu možné pokládat za ověřený.



**Obr. 5.4:** Proložení aktivit izotopu  $^{115\text{m}}\text{In}$ , vypočtených z ploch pod píkem o energii 336,24 keV redukováných o příspěvek  $^{115}\text{Cd}$ , křivkou ve tvaru  $y = ae^{bx}$

## 5.4 Shrnutí finálních výsledků

Důležitým výstupem kapitoly i celé bakalářské práce je tabulka 5.6, v níž jsou shrnuty všechny hodnoty reakčních rychlostí a jejich nejistot, spočtených výše uvedeným způsobem pro každou interakci identifikovanou v souboru  $\gamma$ -spekter hliníkových, zlatých a indiových fólií ozařovaných v pozicích P0 a P14.

**Tab. 5.6:** Konečné hodnoty reakčních rychlostí včetně procentuálních nejistot pro všechny interakce pozorované v  $\gamma$ -spektrech fólií Al-103, Al-104, Au-143, Au-144, In-106 a In-107

Reakce	Pozice P0		Pozice P14	
	$R_R$ ( $s^{-1}$ )	$\sigma_{R_R}$ (%)	$R_R$ ( $s^{-1}$ )	$\sigma_{R_R}$ (%)
$^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$	$8,674 \cdot 10^{-16}$	0,42	$2,021 \cdot 10^{-17}$	0,48
$^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$	$1,234 \cdot 10^{-14}$	0,16	$3,600 \cdot 10^{-16}$	0,20
$^{197}\text{Au}(n,p)^{197}\text{Pt}$	$1,671 \cdot 10^{-15}$	1,02	$4,858 \cdot 10^{-17}$	1,02
$^{197}\text{Au}(n,2n)^{196}\text{Au}$	$1,372 \cdot 10^{-14}$	0,28	$3,355 \cdot 10^{-16}$	0,33
$^{197}\text{Au}(n,2n)^{196m2}\text{Au}$	$7,605 \cdot 10^{-16}$	0,76	$2,063 \cdot 10^{-17}$	0,66
$^{197}\text{Au}(n,3n)^{195}\text{Au}$	$7,246 \cdot 10^{-16}$	1,83	$1,812 \cdot 10^{-17}$	36,20
$^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116m}\text{In}$	$9,645 \cdot 10^{-15}$	1,03	$3,136 \cdot 10^{-16}$	0,52
$^{115}\text{In}(n,n')^{115m}\text{In}$	$7,715 \cdot 10^{-15}$	0,20	$1,658 \cdot 10^{-16}$	0,18
$^{115}\text{In}(n,p)^{115}\text{Cd}$	$3,928 \cdot 10^{-17}$	0,69	$8,592 \cdot 10^{-19}$	2,85
$^{113}\text{In}(n,3n)^{111}\text{In}$	$4,274 \cdot 10^{-17}$	2,37	$1,754 \cdot 10^{-18}$	6,94
$^{\text{nat}}\text{In}(n,x)^{114m}\text{In}$	$7,953 \cdot 10^{-15}$	0,14	$2,053 \cdot 10^{-16}$	0,40
$^{\text{nat}}\text{In}(n,x)^{113m}\text{In}$	$3,036 \cdot 10^{-16}$	1,06	$6,357 \cdot 10^{-18}$	1,19
$^{\text{nat}}\text{In}(n,x)^{112}\text{Ag}$	$1,745 \cdot 10^{-17}$	6,15	$4,814 \cdot 10^{-19}$	7,42

Na základě tabulky je možné učinit celou řadu pozorování. V souvislosti s dříve komentovanými řádrovými rozdíly mezi  $R_R$  při ozařování v pozici P0 oproti P14, odpovídajícími přibližně desetinásobnému až tisícinásobnému snížení korespondujících reakcí v koncové oproti nejbližší poloze vzorku, je namísto připojit komentář taktéž k odpovídajícím nejistotám. Neurčitosti reakčních rychlostí pro interakce na fóliích Al-103, Au-143 a In-106 se pohybují ve většině případů okolo jednoho procenta, zatímco nejistoty vztahující se k reakcím na vzorcích Al-104, Au-144 a In-107 téměř vždy výrazně rostou a u reakce  $^{197}\text{Au}(n,3n)^{195}\text{Au}$  dosahují až desítek procent. To je způsobeno převážně horší pozorovatelností příslušných gama linek ve spektrech vzdálenějších fólií; pro jmenovanou (n,3n) reakci má pak hodnota reakční rychlosti v pozici P14 význam pouze pro hrubé srovnání s  $R_R$  spočtenou pro pozici P0.

Dále lze z tabulky 5.6 určit například nejintenzivnější a naopak nejméně intenzivní reakce. Pro obě ozařovací pozice vykazují nejvyšší reakční rychlosti interakce  $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$ ,  $^{197}\text{Au}(n,2n)^{196}\text{Au}$ ,  $^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116m}\text{In}$ ,  $^{115}\text{In}(n,n')^{115m}\text{In}$  a reakce na přírodní směsi  $^{\text{nat}}\text{In}(n,x)^{114m}\text{In}$ . Nejmenší hodnoty naopak charakterizují interakce  $^{115}\text{In}(n,p)^{115}\text{Cd}$ ,  $^{113}\text{In}(n,3n)^{111}\text{In}$  a  $^{\text{nat}}\text{In}(n,x)^{112}\text{Ag}$ . Pro využitelnost údajů v navazujících pracích však nerozhoduje intenzita reakce, nýbrž její prahovost či bezprahovost. Prahových reakcí se přitom podařilo identifikovat, analyzovat a z hlediska  $R_R$  vyhodnotit celkem 10. V budoucnu pak hodnoty jejich reakčních rychlostí budou díky znalosti příslušných účinných průřezů hrát klíčovou roli ve finální dekonvoluci kýženého neutronového spektra.

# Závěr

Cílem bakalářské práce bylo iniciovat studium parametrů nového neutronového spektra pro cyklotronem U-120M řízený generátor rychlých neutronů NG-2 na pracovišti ÚJF AV ČR technikou aktivačních detektorů. Výzkum byl motivován získáním dobře definovaného pole neutronů coby nástroje pro řadu nukleárních i obecných disciplín, k nimž patří materiálové vědy, tvorba knihoven jaderných dat, medicína, kalibrace nových detekčních systémů či kupříkladu aktivační analýza.

Za tímto účelem byla nejprve provedena důkladná rešerše týkající se principů aktivačních měření, jaderné gama spektrometrie a aktuálně probíhajícího výzkumu na domácím i řadě světových pracovišt s podobně zaměřeným výzkumem. V rámci příslušných pasáží byla prostudována problematika spektrálních výtěžků s ohledem na jaderná data a účinné průřezy, zkoumány byly rovněž aplikace neutronových polí zdrojových reakcí  $p + \text{Be}$  a  $d + \text{Be}$  s různými energiemi svazků protonů a deuteronů. Takto byly získány znalosti potřebné pro realizaci konkrétních experimentálních činností.

Jako první praktický úkol proběhlo seznámení s ovládáním HPGe gama spektrometrického systému Canberra na Oddělení jaderných reakcí ÚJF, součástí čehož bylo stanovení absolutní detekční účinnosti pro tři vzdálenosti detektor-vzorek, konkrétně pro geometrie p5 (5 cm), p8 (8 cm) a p20 (30 cm). Tím se otevřela možnost vybrané tři pozice využít pro měření  $\gamma$ -spekter dozimetrických fólií aktivovaných při samotném ozařovacím experimentu. Jeho jádrem byla dosud málo prozkoumaná reakce protonového svazku o energii 22 MeV a tlustého beryliového terče; dané experimentální uspořádání pak vzniklo zapojením beryliové terčové stanice do ionto-optické trasy urychlovače a umístěním sad tvořených vhodnou kombinací 11 aktivačních materiálů (Ni, Co, Au, In, Ti, Al, Y, Lu, Fe, Nb, Cu) do čtyř žadáných vzdáleností od terče v rozmezí 14 mm (geometrie P0) a 154 mm (geometrie P14). Ozařování trvalo po dobu více než 12 h za průměrného proudu protonů na terči o velikosti 11,66  $\mu\text{A}$ . Aktivované dozimetrické fólie byly následně po dobu několika týdnů cyklicky proměřovány na popsaném  $\gamma$ -spektrometrickém systému.

Jelikož výzkumné činnosti směřující k rekonstrukci samotného neutronového spektra jsou rozděleny do tří samostatných studií, postup v rámci bakalářské práce

byl zastaven vyhodnocením naměřených dat pro tři aktivační materiály. Zvoleny byly hliník, zlato a indium, přičemž analýza proběhla celkem pro šest fólií, z nichž tři byly ozařovány v geometrii P0 a tři v P14. Dohromady se v získaných gama spektrech podařilo identifikovat 13 reakcí, z toho 10 prahových. Tím byl dalece překonán požadavek na vyhodnocení alespoň tří prahových reakcí stanovený v zadání. Pro každou z nich byla následně stanovena příslušná reakční rychlost na jedno terčové jádro, přičemž tyto hodnoty byly nakonec společně shrnuty v tabulce finálních výsledků. Na jejich správnost lze usuzovat ze srovnání s hodnotami získanými při dříve provedených experimentech s obdobnými energiemi protonů.

Naplněním stanovených cílů bakalářské práce se podařilo získat dobrý základ pro navazující výzkumný úkol a diplomovou práci, v rámci nichž budou vyhodnoceny zbývající aktivační materiály a na úplný závěr rekonstruováno kýžené neutronové spektrum. Znalost nového spektra přitom výrazně rozšíří výzkumné možnosti pracoviště, neboť ji bude možné využít zejména pro testy radiační odolnosti elektronických komponent, validaci účinných průřezů v oblasti vysokých energií neutronů, mimořádně relevantních pro vývoj fúzních technologií, nebo pro stále perspektivnější obor neutronové aktivační analýzy rychlými neutrony.



# Bibliografie

- [1] TSOULFANIDIS, N.; LANDSBERGER, S. *Measurement and Detection of Radiation* [online]. 4th edition. Boca Raton: CRC Press, 2015 [cit. 2021-07-23]. ISBN 978-1-4822-1548-9. Dostupné z: [http://www.nec-su.ir/stuffs/article/525a69b3-dd8d-4b60-a7a9-423934a4fb7a/Tsoulfanidis\\_ed4.pdf](http://www.nec-su.ir/stuffs/article/525a69b3-dd8d-4b60-a7a9-423934a4fb7a/Tsoulfanidis_ed4.pdf).
- [2] STEFANIK, M.; BEM, P.; SIMECKOVA, E.; STURSA, J.; ZACH, V.; MAJERLE, M. Neutron field study of p(24) + Be source reaction using the multi-foil activation technique. *Fusion Engineering and Design*. 2019, roč. 146, s. 2053–2056. ISSN 0920-3796. Dostupné z DOI: <https://doi.org/10.1016/j.fusengdes.2019.03.100>.
- [3] STEFANIK, M.; CESNEK, M.; SKLENKA, L.; KMJEC, T.; MIGLIERINI, M. Neutron activation analysis of meteorites at the VR-1 training reactor. *Radiation Physics and Chemistry*. 2020, roč. 171, s. 108675. ISSN 0969-806X. Dostupné z DOI: <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2019.108675>.
- [4] ŠTURMA, J. *Neutronová aktivační analýza historických předmětů na školním reaktoru VR-1*. 2014. Bak. pr. České vysoké učení technické v Praze. Vedoucí práce Ing. Milan Štefánik.
- [5] STEFANIK, M.; SAZELOVA, S.; SKLENKA, L. Investigation of mammoth remains using the neutron activation analysis at the Training Reactor VR-1. *Applied Radiation and Isotopes*. 2020, roč. 166, s. 109292. ISSN 0969-8043. Dostupné z DOI: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2020.109292>.
- [6] STEFANIK, M.; SKLENKA, L.; CESNEK, M.; MIGLIERINI, M.; RATAJ, J. Neutron activation analysis of Tibetan traditional medicinal pills at the VR-1 training reactor. *Radiation Physics and Chemistry*. 2019, roč. 160, s. 96–99. ISSN 0969-806X. Dostupné z DOI: <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2019.03.020>.
- [7] ŠTEFÁNIK, M. *Experimentálne stanovenie spektier urýchlovačom riadených neutrónových generátorov*. 2015. Dis. pr. České vysoké učení technické v Praze. Vedoucí práce Ing. Karel Katovský, Ph.D.
- [8] SUBLET, J. C.; PACKER, L.; KOPECKY, J.; FOREST, R. A.; KONING, A.; ROCHMAN, D. EAF 2010 neutron-induced cross section library. *CCFE-R (10)*. 2010, roč. 5.
- [9] SOPPERA, N.; BOSSANT, M.; DUPONT, E. JANIS 4: An Improved Version of the NEA Java-Based Nuclear Data Information System. *Nuclear Data Sheets*. 2014, roč. 120, s. 294–296. ISSN 0090-3752. Dostupné z DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nds.2014.07.071>.

- [10] IBARRA, A.; ARBEITER, F.; BERNARDI, D.; CAPPELLI, M.; GARCIA, A.; HEIDINGER, R.; KROLAS, W.; FISCHER, U.; MARTIN-FUERTE, F.; MICCICHE, G.; MUÑOZ, A.; NITTI, F.S.; PEREZ, M.; PINNA, T.; TIAN, K. The IFMIF-DONES project: preliminary engineering design. *Nuclear Fusion*. 2018, roč. 58, č. 10, s. 105002. Dostupné z DOI: [10.1088/1741-4326/aad91f](https://doi.org/10.1088/1741-4326/aad91f).
- [11] ADAM, J.; KATOVSKY, K.; MAJERLE, M.; KRIVOPUSTOV, M. I.; SOLNYSHKIN, A. A.; TSUPKO-SITNIKOV, V. M.; KUMAR, V.; SHARMA, M.; BHATIA, C. *Transmutation of Th and U with neutrons produced in Pb target and U-blanket system by relativistic deuterons*. 2008. Tech. zpr. Dzheleпов Laboratory of Nuclear Problems.
- [12] ALFASSI, Z. *Activation Analysis, Volume I*. Boca Raton: CRC Press, 1990. ISBN 0-8493-4583-9.
- [13] KNOLL, G. F. *Radiation Detection and Measurement*. 3rd edition. New York: John Wiley a Sons, 2000. ISBN 978-0-471-07338-3, ISBN 978-0-471-07338-3.
- [14] *Genie-2000 Spectroscopy Software: Operations*. Canberra Industries, 2006. Č. 9233652F. Dostupné také z: <https://www3.nd.edu/~wzech/Genie%202000%20Operations%20Manual.pdf>.
- [15] ADAM, J.; MRAZEK, J.; FRANA, J.; PRONSKIKH, V. S.; KALINNIKOV, V. G.; PRIEMYSHEV, A. N.; BALABEKYAN, A. R. *Program package and supplements to activation analysis for calculations of nuclear reaction cross sections*. 2000. Tech. zpr., JINR P10-2000-28. Laboratory of Nuclear Problems.
- [16] POMP, S.; BARTLETT, D. T.; MAYER, S.; REITZ, G.; RÖTTGER, S.; SILARI, M.; SMIT, F. D.; VINCKE, H.; YASUDA, H. *EURADOS Report 2013-02: High-energy quasi-monoenergetic neutron fields: existing facilities and future needs*. 2013. Dostupné z DOI: [10.12768/65pq-dq69](https://doi.org/10.12768/65pq-dq69).
- [17] *Use of accelerator based neutron sources*. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2000. TECDOC Series, č. 1153. ISSN 1011-4289. Dostupné také z: <https://www.iaea.org/publications/5822/use-of-accelerator-based-neutron-sources>.
- [18] *Compendium of neutron beam facilities for high precision nuclear data measurements*. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2014. TECDOC Series, č. 1743. ISBN 978-92-0-106614-5. ISSN 1011-4289. Dostupné také z: <https://www.iaea.org/publications/10738/compendium-of-neutron-beam-facilities-for-high-precision-nuclear-data-measurements>.
- [19] KUMADA, H.; KURIHARA, T.; YOSHIOKA, M.; KOBAYASHI, H.; MATSUMOTO, H.; SUGANO, T.; SAKURAI, H.; SAKAE, T.; MATSUMURA, A. Development of beryllium-based neutron target system with three-layer structure for accelerator-based neutron source for boron neutron capture therapy. *Applied Radiation and Isotopes*. 2015, roč. 106, s. 78–83. ISSN 0969-8043. Dostupné z DOI: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2015.07.033>.
- [20] BREDE, H. J.; DIETZE, G.; KUDO, K.; SCHREWE, U. J.; TANCU, F.; WEN, C. Neutron yields from thick Be targets bombarded with deuterons or protons. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. 1989, roč. 274, č. 1, s. 332–344. ISSN 0168-9002. Dostupné z DOI: [https://doi.org/10.1016/0168-9002\(89\)90399-9](https://doi.org/10.1016/0168-9002(89)90399-9).

- [21] LONE, M. A.; BIGHAM, C. B.; FRASER, J. S.; SCHNEIDER, H. R.; ALEXANDER, T. K.; FERGUSON, A. J.; MCDONALD, A. B. Thick target neutron yields and spectral distributions from the  ${}^7\text{Li}(\text{pd}, \text{n})$  and  ${}^9\text{Be}(\text{pd}, \text{n})$  reactions. *Nuclear Instruments and Methods*. 1977, roč. 143, č. 2, s. 331–344. ISSN 0029-554X. Dostupné z DOI: [https://doi.org/10.1016/0029-554X\(77\)90616-4](https://doi.org/10.1016/0029-554X(77)90616-4).
- [22] GRAVES, R. G.; SMATHERS, J. B.; ALMOND, P. R.; GRANT, W. H.; OTTE, V. A. Neutron energy spectra of d (49)-Be and p (41)-Be neutron radiotherapy sources. *Medical physics*. 1979, roč. 6, č. 2, s. 123–128. Dostupné z DOI: <http://dx.doi.org/10.1118/1.594543>.
- [23] *Ústav jaderné fyziky AV ČR* [online]. Středisko společných činností AV ČR, 2021 [cit. 2021-06-26]. Dostupné z: <http://www.ujf.cas.cz/cs/>.
- [24] BÉM, P.; BURJAN, V.; DOBEŠ, J.; FISCHER, U.; GÖTZ, M.; HONUŠEK, M.; KROHA, V.; NOVÁK, J.; SIMAKOV, S. P.; ŠIMEČKOVÁ, E. The NPI cyclotron-based fast neutron facility. In: *International Conference on Nuclear Data for Science and Technology*. 2007, s. 555–558. Dostupné z DOI: <https://doi.org/10.1051/ndata:07598>.
- [25] *Q-value Calculator (QCalc)* [online]. National Nuclear Data Center, 2012 [cit. 2021-07-13]. Dostupné z: <https://www.nndc.bnl.gov/qcalc/>.
- [26] GONZALEZ, E. M.; JUNGHANS, A. R.; PLOMPEN, A.; SCHILLEBEECKX, P. Nuclear data research supported by EURATOM: CHANDA, ERINDA and EUFRAT. *EPJ Nuclear Sci. Technol.* 2020, roč. 6, s. 30. Dostupné z DOI: 10.1051/epjn/2019024.
- [27] *Tandem accelerator based fast neutron source* [online]. JRC European Commission, 2020 [cit. 2021-06-26]. Dostupné z: <https://ec.europa.eu/jrc/en/research-facility/tandem-accelerator-based-fast-neutron-source>.
- [28] *PTB* [online]. Physikalisch-technische Bundesanstalt, 2021 [cit. 2021-06-26]. Dostupné z: <https://www.ptb.de/cms/en.html>.
- [29] *Neutron Standards* [online]. National Physical Laboratory, 2021 [cit. 2021-06-26]. Dostupné z: <https://www.npl.co.uk/nuclear-metrology/neutron-standards>.
- [30] *NFS – Neutrons for Science* [online]. GANIL SPIRAL2, 2021 [cit. 2021-06-26]. Dostupné z: <https://www.ganil-spiral2.eu/scientists/ganil-spiral-2-facilities/experimental-areas/nfs/>.
- [31] JUNGHANS, A. *WP5: Experiments at consortium facilities* [online]. 2013 [cit. 2021-06-26]. Dostupné z: [http://win.ciemat.es/chanda/meet\\_20131211/P6\\_CHANDA-Kickoff-ARJ\\_WP5.pdf](http://win.ciemat.es/chanda/meet_20131211/P6_CHANDA-Kickoff-ARJ_WP5.pdf).
- [32] ÖSTERLUND, M.; BLOMGREN, J.; POMP, S.; PROKOFIEV, A. V.; TIPPAWAN, U.; ANDERSSON, L.-O.; BERGMARK, T.; BYSTRÖM, O.; CALÉN, H.; EINARSSON, L.; EKSTRÖM, C.; FRANSSON, J.; GAJEWSKI, K.; HAAG, N.; HARTMAN, T.; HELLBECK, E.; JOHANSEN, T.; JONSSON, O.; LUNDSTRÖM, B.; PETTERSSON, L.; REISTAD, D.; RENBERG, P.-U.; WESSMAN, D.; ZIEMANN, V. The Uppsala neutron beam facility for electronics testing. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. 2005, roč. 241, č. 1, s. 419–422. ISSN 0168-583X. Dostupné z DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2005.07.052>. The Application of Accelerators in Research and Industry.

- [33] *N0 Course* [online]. Research Center for Nuclear Physics, Osaka University, 2015 [cit. 2021-06-26]. Dostupné z: <https://www.rcnp.osaka-u.ac.jp/Divisions/np1-a/RCF/RCNCPF-N0t.html>.
- [34] BABA, M.; OKAMURA, H.; HAGIWARA, M.; ITOGA, T.; KAMADA, S.; YAHAGI, Y.; IBE, E. Installation and application of an intense  $7\text{Li}(p,n)$  Neutron source for 20–90 MeV region. *Radiation Protection Dosimetry*. 2007, roč. 126, č. 1-4, s. 13–17. ISSN 0144-8420. Dostupné z DOI: 10.1093/rpd/ncm005.
- [35] BABA, M. *Nuclear data measurements for 40-90 MeV neutrons at TIARA*. 2000. Č. JAERI-Conf-2000-005.
- [36] *Japan Collaboration on Accelerator-driven Neutron Sources* [online]. JCANS, 2014 [cit. 2021-06-26]. Dostupné z: <http://www.jcans.net/>.
- [37] BAXTER, D. V.; DOSKOW, J.; PYNN, R.; RINCKEL, T.; SNOW, W. M.; SOKOL, P. E. *The Low Energy Neutron Source (LENS) – University Based Pulsed Neutron Source For Collaborative Research*. 2013.
- [38] STEFANIK, M.; BEM, P.; SIMECKOVA, E.; STURSA, J.; MAJERLE, M.; MRAZEK, J. The  $p(20)+\text{Be}$  reaction as a source of fusion relevant neutrons. *Fusion Engineering and Design*. 2020, roč. 161, s. 112053. ISSN 0920-3796. Dostupné z DOI: <https://doi.org/10.1016/j.fusengdes.2020.112053>.
- [39] STEFANIK, M.; SIMECKOVA, E.; BEM, P.; MAJERLE, M.; NOVAK, J.; ANSORGE, M.; MRAZEK, J.; STURSA, J. Neutron spectrum determination of  $p+\text{Be}$  reaction for 30 MeV protons using the multi-foil activation technique. In: *EPJ Web of Conferences*. 2020, sv. 239, s. 17015.
- [40] STEFANIK, M.; BEM, P.; MAJERLE, M.; NOVAK, J.; SIMECKOVA, E.; STURSA, J. Neutron field study of  $p(35)+\text{Be}$  source reaction at the NPI Rez. *Radiation Physics and Chemistry*. 2019, roč. 155, s. 294–298. ISSN 0969-806X. Dostupné z DOI: <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2018.06.046>. IRRMA-10.
- [41] CHU, S. Y. F.; EKSTRÖM, L. P.; FIRESTONE, R. B. *The Lund/LBNL Nuclear Data Search* [online]. 1999 [cit. 2021-07-13]. Dostupné z: <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/>.
- [42] BHAT, M. R. Evaluated nuclear structure data file (ENSDF). In: *Nuclear data for science and technology*. 1992, s. 817–821.
- [43] WANG, Meng; AUDI, G.; KONDEV, F. G.; HUANG, W.J.; NAIMI, S.; XU, Xing. The AME2016 atomic mass evaluation (II). Tables, graphs and references. *Chinese Physics C*. 2017, roč. 41, č. 3, s. 030003. Dostupné z DOI: 10.1088/1674-1137/41/3/030003.
- [44] WINTER, M. *WebElements: THE periodic table on the WWW* [online]. The University of Sheffield, 2021 [cit. 2021-07-13]. Dostupné z: <https://www.webelements.com/>.
- [45] SONZOGNI, A. A. *NuDat 2.8* [online]. National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, 2015 [cit. 2021-07-13]. Dostupné z: <https://www.nndc.bnl.gov/nudat2/>.