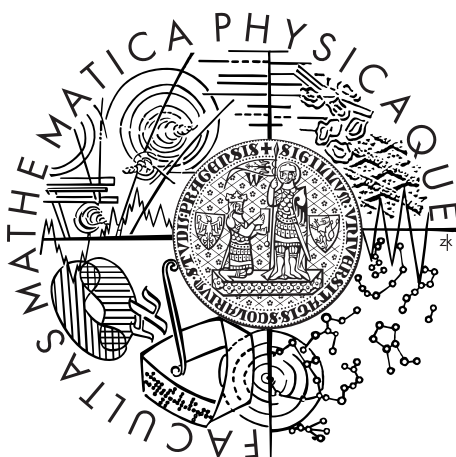


Univerzita Karlova v Praze
Matematicko-fyzikální fakulta

DIPLOMOVÁ PRÁCE



Petr Chudoba

Využití aktivačních detektorů při měření neutronového pole v modelových sestavách ADTS

Ústav částicové a jaderné fyziky

Vedoucí diplomové práce: RNDr. Vladimír Wagner, CSc.

Studijní program: Fyzika

Studijní obor: Jaderná a subjaderná fyzika

Praha 2013

V první řadě bych chtěl poděkovat RNDr. Vladimíru Wagnerovi CSc. za vzorné vedení této práce. Především bych však chtěl poděkovat za ochotu při řešení veškerých problémů a otázek týkajících se této práce.

Dále bych chtěl poděkovat Ing. Ondřeji Svobodovi PhD. za významnou pomoc při seznamování se s metodikou, experimentem a používaným softwarem, Ing. Markovi Fikrlemu PhD. a Ing. Marii Kubešové PhD. za poskytnutí softwaru pro zpracování spekter a seznámení s ním, Ing. Jitce Vrzalové a Ing. Martinu Suchopárovi za pomoc při měření a přípravě experimentu.

V neposlední řadě děkuji také doc. dr. hab. Marcinu Szutovi a Mgr. Stanisławu Kilimovi za umožnění podílet se na experimentu. Tímto také děkuji projektu ERINDA a jeho zástupcům za financování tohoto experimentu.

Na závěr bych chtěl poděkovat své rodině a všem svým blízkým za vytvoření podmínek a podporu při tvorbě této práce.

Prohlašuji, že jsem tuto diplomovou práci vypracoval samostatně a výhradně s použitím citovaných pramenů, literatury a dalších odborných zdrojů.

Beru na vědomí, že se na moji práci vztahují práva a povinnosti vyplývající ze zákona č. 121/2000 Sb., autorského zákona v platném znění, zejména skutečnost, že Univerzita Karlova v Praze má právo na uzavření licenční smlouvy o užití této práce jako školního díla podle §60 odst. 1 autorského zákona.

V Praze dne 11.4.2013

Podpis autora

Název práce: Využití aktivačních detektorů při měření neutronového pole v modelových sestavách ADTS

Autor: Petr Chudoba

Katedra: Ústav částicové a jaderné fyziky

Vedoucí diplomové práce: RNDr. Vladimír Wagner, CSc., Oddělení jaderné spektroskopie, Ústav jaderné fyziky AV ČR, v. v. i.

Abstrakt: Urychlovačem řízené transmutační systémy by mohly být řešením problému s dlouhožijícím jaderným odpadem a otevřením cesty k thoriovému palivovému cyklu. Díky intenzivnímu neutronovému zdroji založeném na spalační reakci jsou tyto systémy pouze velice málo závislé na uspořádání aktivní zóny a kvalitě paliva. Tyto systémy tak mohou transmutowat vyhořelé palivo, případně ^{232}Th nebo ^{238}U bez vlivu na udržení štěpné reakce. Navíc podkritický blanket zajišťuje vysokou bezpečnost. Pro tyto systémy je však nutné znát účinné průřezy reakcí rychlých neutronů vznikajících při spalační reakci s různými materiály. Tato data jsou nutná nejen pro výběr vhodných konstrukčních materiálů, ale také pro vytvoření programů simulujících urychlovačem řízené transmutační systémy. Tato práce je zaměřena právě na experimentální určení účinných průřezů reakcí $^{89}\text{Y}(n,2n)^{88}\text{Y}$ a $^{89}\text{Y}(n,3n)^{87}\text{Y}$ s energiemi neutronů od 17,6 do 33,6 MeV. Yttrium je zkoumáno pro jeho (n,xn) prahové reakce, které z něj činí vhodný aktivační detektor pro studium neutronových polí v modelových sestavách urychlovačem řízených transmutačních systémů.

Získané účinné průřezy jsou unikátní tím, že při použitých energiích neutronů dosud neexistují žádná experimentální data.

Klíčová slova: Neutron, účinný průřez, yttrium, prahová reakce, transmutace

Title: Use of activation detectors for neutron field measurement in models of ADTS

Author: Petr Chudoba

Department: Institut of Particle and Nuclear Physics

Supervisor: RNDr. Vladimír Wagner, CSc., Department of Nuclear Spectroscopy, Nuclear Physics Institute of the ASCR, v. v. i.

Abstract: Accelerator driven transmutation systems could be a solution to the problem with long-lived nuclear waste and opening the way to thorium fuel cycle. Due to intensive neutron source based on spallation reaction are these systems very little dependent on the arrangement of the core and fuel quality. These systems can transmute the spent fuel, eventually ^{232}Th or ^{238}U without affecting maintenance of fission reaction. Additionally subcritical blanket ensures high safety. For these systems it is necessary to know the cross sections of reactions of fast neutrons produced in the spallation reaction with different materials. This data is necessary not only for the selection of appropriate construction materials, but also for creation of programs simulating accelerator driven transmutation systems.

This thesis is focused on the experimental determination of cross sections of reactions $^{89}\text{Y}(n,2n)^{88}\text{Y}$ and $^{89}\text{Y}(n,3n)^{87}\text{Y}$ with neutron energies from 17,6 to 33,6 MeV. Yttrium is analyzed for its (n,xn) threshold reactions, which makes it appropriate activation detector for study of the neutron fields in model configurations of accelerator driven transmutation systems.

The obtained cross sections are unique, in that so far there are no experimental data for used neutron energies.

Keywords: Neutron, cross section, yttrium, threshold reaction, transmutation

Obsah

Úvod	3
1 Urychlovačem řízené systémy	4
1.1 Motivace	4
1.2 Koncept ADTS systémů	6
1.3 Spalační reakce	7
1.4 Transmutace	9
1.5 Současné a minulé projekty spojené s ADTS a výzkumné cíle	10
2 Výzkum ADTS v rámci ÚJF AV ČR	12
2.1 Energy and Transmutation of Radioactive Waste project - E&T RAW	12
2.1.1 Gamma-2	12
2.1.2 Energy plus Transmutation (E+T)	13
2.1.3 Gamma-3	14
2.1.4 Kvinta	14
2.2 EFNUDAT	16
2.3 ERINDA	16
3 Prahové (n,xn) reakce a jejich účinné průřezy	17
3.1 Požadavky na neutronový zdroj	18
3.2 Odečet pozadí	19
3.3 Účinný průřez	20
4 Využití aktivačních detektorů neutronů	21
4.1 Korekce na rozpad během chladnutí a měření	21
4.2 Korekce rozpadu během ozařování	21
4.3 Korekce na nestabilitu svazku	22
4.4 Účinnostní kalibrace detektoru	22
4.4.1 Totální účinnost	23
4.4.2 Píková účinnost	23
4.5 Korekce pravých kaskádních $\gamma - \gamma$ koincidenčí	25
4.6 Korekce účinnosti pro plošné zářiče	27
4.7 Samoabsorpce a její oprava	29
4.8 Úplná rovnice pro určení výtěžku	29
4.9 Korekční koeficienty rozpadů v případě ^{87}Y	30
4.9.1 Korekce rozpadu během chladnutí a měření	30
4.9.2 Korekce rozpadu během ozařování	31
5 Simulace a program TALYS	32
5.1 MCNPX	32
5.2 TALYS	32
5.2.1 Použité modely hustoty hladin a jejich popis	32

6 Experimentální uspořádání	37
6.1 Neutronový zdroj a ozařování	37
6.2 Spektrometrická aparatura	40
7 Zpracování dat	43
7.1 Experimentální data	43
7.2 Porovnání experimentálních a simulovaných dat	44
Závěr	48
Seznam použité literatury	50
Seznam tabulek	53
Seznam použitých zkratek	54
Přílohy	56
A Odvození korekčních koeficientů pro započtení rozpadů jader	57
A.1 Odvození korekčního koeficientu C_{irr} pro jednoduchý bez izomerní produkt	57
A.2 Korekční koeficienty rozpadů pro ^{87}Y	57
A.2.1 Rozpad ^{87m}Y během ozařování	57
A.2.2 Rozpad ^{87m}Y během chladnutí a měření	58
B Metodika výpočtu pravých $\gamma - \gamma$ koincidencí	60
B.1 $\gamma - \gamma$ koincidenční sumace	60
B.2 $\gamma - \gamma$ koincidenční ztráty	61
B.3 Výsledný vztah pro korekci $\gamma - \gamma$ koincidenčních efektů	62
C Grafické znázornění modelu neutronového zdroje a neutronových spekter	63
D Program CoEf a jeho použití	65
D.1 Po spuštění a záložka <i>Sample info</i>	65
D.2 Záložka <i>Calibration</i>	68
D.3 Záložka <i>Efficiency</i>	69
D.4 Záložka <i>Coincidence</i>	70
D.5 Záložka <i>ENSDF</i>	71
D.6 Záložka <i>Decay Scheme</i>	72

Úvod

V současné době jsou pro energetické účely a jako zdroje neutronů pro vědecké účely používány hlavně klasické reaktory řízené moderovanými neutrony. V energetické oblasti se jedná o reaktory II. generace nebo generace III. Začíná ovšem stoupat poptávka po nových zdrojích neutronů, nových typech reaktorů, které by měly pokud možno uzavřený palivový cyklus, a zařízeních schopných minimalizovat objem současného jaderného odpadu.

Jako vhodné zdroje neutronů pro vědecké i energetické aplikace se jeví zdroje založené na spalační reakci. Spalační zdroje vynikají vysokými hodnotami neutronových toků. Intenzivní toky neutronů jsou potřeba zejména pro materiálový výzkum, transmutaci jaderného odpadu nebo pro transmutaci ^{232}Th na ^{233}U , což by umožnilo využití thoriového palivového cyklu. Spalační terče jsou zkoumány např. v projektu PSI Megapie, kde se zkoumal spalační terč ve formě tekutého kovu. Již přímé využití mají v projektech ESS (European Spallation Source), SNS (Spallation Neutron Source) a další. Jejich přehled a vlastnosti budou uvedeny v jedné z následujících kapitol.

Spalační zdroje nacházejí důležité uplatnění v tzv. urychlovačem řízených systémech (ADS - Accelerator Driven System). Tyto systémy, jejichž základem je spalační neutronový zdroj, mohou sloužit pro různé účely. Jednou z možností je využít urychlovačem řízený systém pro transmutaci vyhořelého jaderného paliva i s možností současné výroby energie z tohoto vyhořelého paliva, pak se jedná o ADS - Accelerator Driven Transmutation System - urychlovačem řízený transmutační systém.

Pro všechny výše zmíněné aplikace jsou důležité znalosti účinných průřezů reakcí rychlých neutronů s různými materiály. Ať už z důvodu radiační odolnosti materiálů, znalosti neutronových polí uvnitř sestavy nebo z dozimetrických důvodů. Různé materiály se využívají také při určování neutronového toku v daném místě pomocí aktivačních detektorů.

Tato práce je zaměřena na experimentální určení účinných průřezů různých materiálů s rychlými neutrony a studiu neutronových polí v modelových sestavách ADTS. Zejména se jedná o (n, xn) reakce. Konkrétně bude popsáno měření účinných průřezů reakcí $^{89}\text{Y}(n,2n)^{88}\text{Y}$ a $^{89}\text{Y}(n,3n)^{87}\text{Y}$. Právě yttrium, začalo být před několika lety intenzivně využíváno při aktivačních měřeních neutronových polí v experimentech se sestavami modelujícími urychlovačem řízené transmutační systémy. V rámci přípravy tohoto experimentu bylo provedeno jedno testovací měření [1], které mělo za cíl ověřit možnost použití neutronového zdroje ÚJF AV ČR pro současný experiment. V rešeršní části je stručně shrnut dosavadní výzkum v této oblasti a v experimentální části je popsán způsob měření účinných průřezů společně s výsledky a jejich srovnání se simulací, dosavadními experimentálními daty a s údaji z databází.

1. Urychlovačem řízené systémy

1.1 Motivace

V současné době je na světě v provozu několik stovek energetických reaktorů. A další jsou ve výstavbě nebo ve fázi projektových příprav. Existuje několik podmínek pro jejich provoz a jeho udržitelnost do budoucna. Tyto podmínky jsou:

- bezpečnost provozu - musí být zaručena odolnost reaktoru vůči nehodám spojených s únikem radiace,
- ochrana před zneužitím radioaktivních materiálů,
- ekonomická a časová náročnost výstavby a provozu musí být adekvátní množství elektřiny vyrobené za dobu životnosti,
- musí být vyřešena otázka radioaktivního odpadu - zejména vyhořelého paliva.

Řešení těchto podmínek jsou postupně neustále vylepšována. Kromě poslední podmínky bylo u všech ostatních již dosaženo určitého použitelného řešení. Bezpečnost provozu je zajištěna souborem bezpečnostních systémů v kombinaci s konstrukcí reaktorů využívající fyzikálních principů pro zastavení reakce v případě nestandardních podmínek. Ochrana před zneužitím štěpných materiálů pro vojenské účely může být zajištěna konstrukcí palivových článků. Příkladem může být projekt reaktoru IV. generace Pebble Bed Advanced High Temperature Reactor (PB-AHTR) [2]. Zde je palivo ve formě malých kuliček zakomponovaných do grafitových koulí. Tato konstrukce činí extrakci štěpného materiálu z článku prakticky nemožnou. Ekonomická výhodnost je v principu zajištěna rostoucími cenami ubývajících zásob fosilních paliv. Jediná dostatečně nevyřešená podmínka je nakládání s radioaktivním odpadem. Právě v této oblasti by mohly být řešením urychlovačem řízené systémy.

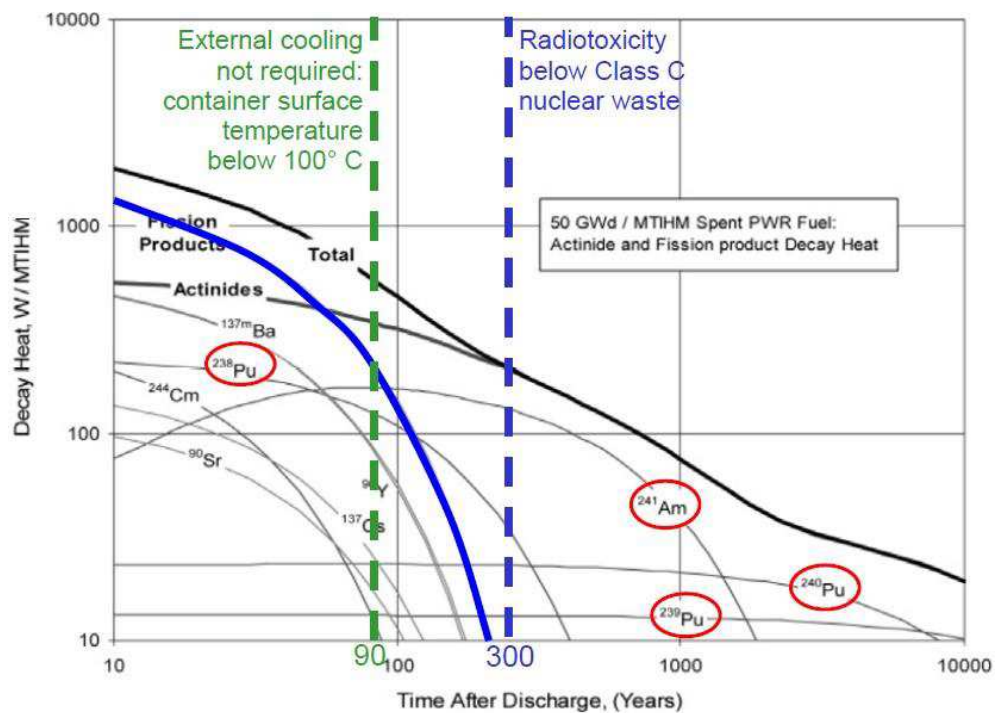
Existuje několik variant jak nakládat s vyhořelým palivem.

- Přímo ukládat vyhořelé palivo bez jakéhokoliv přepracování do trvalého úložiště. Toto byl původní koncept provozování energetických reaktorů. Jednalo by se o nejsnazší řešení. Z dnešního pohledu se však jedná o řešení nevhodné. Současné reaktory pracují s palivem obohaceným přibližně na 5%. Po vyřazení z reaktoru se obohacení pohybuje $\sim 1\%$. Avšak ^{238}U , který by se v ADTS mohl transmutovat na štěpné ^{239}Pu je zde prakticky v nezměněném množství. Proto by se jednalo o krajně nevhodnou variantu nijak nezohledňující otázku zvyšujících se potřeb energie a ubývajících fosilních zdrojů.
- Vyhořelé palivo přepracovat a uložit do trvalého úložiště pouze tu část, která je nyní nevyužitelná. Tento přístup už se v praxi využívá. Použité palivové články procházejí přepracováním, při kterém se z nich separuje uran a plutonium. Které se dále zpracují na nové palivové články. ^{239}Pu obsažené ve vyhořelém palivu se po přepracování používá pro výrobu tzv. MOX paliva. Toto palivo je tvořeno směsí oxidů, kde je ^{235}U částečně nahrazen ^{239}Pu .

- Další možností je zahrnout po přepracování ještě transmutaci a až poté přesunout nevyužitelnou část do trvalého úložiště.

Z výše uvedeného je zřejmé, že se nelze uložení části vyhořelého paliva do trvalého úložiště úplně vyvarovat. Taková úložiště jsou plánována hluboko pod povrchem země ve vhodném skalním masivu. Výběr místa pro vybudování úložiště je omezen několika podmínkami. Skalní masiv pro vybudování úložiště musí být z geologického a seismologického hlediska co nejstabilnější. Dále je nežádoucí přítomnost podzemní vody, která by mohla stavbu narušovat a případně rozšířit uložené radionuklidy do prostředí. Omezení jsou i husté osídlení v okolí a případné nerostné zdroje poblíž úložiště.

Pro zamezení úniku uložených radioaktivních látek jsou úložiště projektována jako systém několika bariér. Tyto bariery musí zajistit bezpečné uložení a izolaci odpadu po několik generací. Životnost trvalého úložiště by měla být taková, aby zajistila izolaci uložených radioaktivních nuklidů do doby než jejich aktivita poklesne pod úroveň přírodního pozadí.

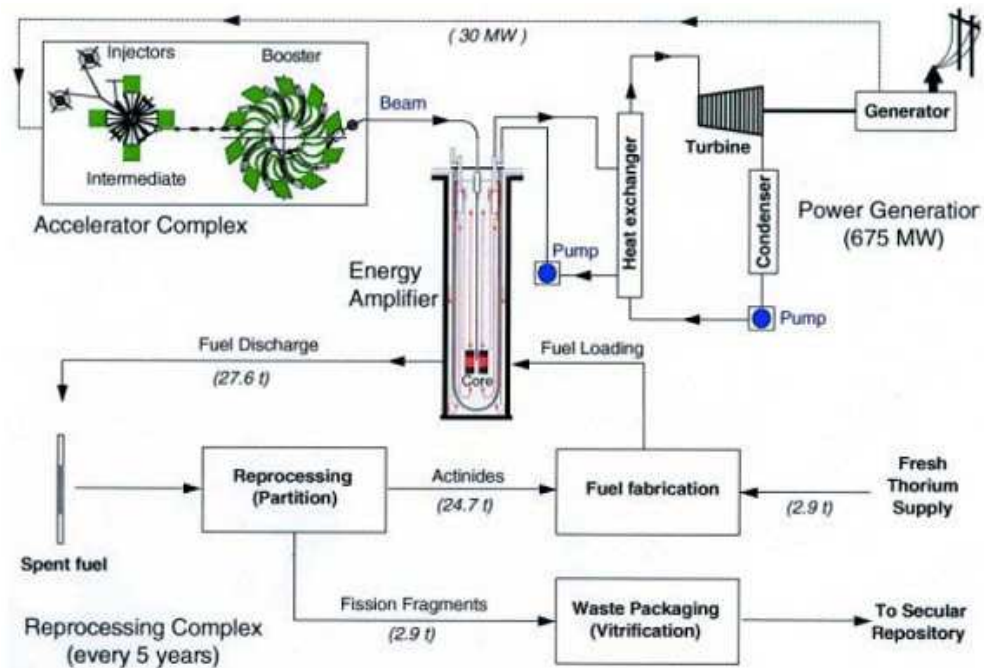


Obrázek 1.1: Příspěvky jednotlivých izotopů k celkovému rozpadovému teplu [3].

Z důvodu rozpadového tepla musejí být palivové články po vyjmutí z reaktoru umístěny v dočasném úložišti v prostoru elektrárny. Toto úložiště je ve formě bazénu kvůli nutnosti odvodu velkého množství tepla. Po určité době, kdy aktivita poklesne, mohou být z bazénu vyjmuty a uloženy v suchém prostředí. I nyní však musí být rozpadové teplo odváděno. V trvalém úložišti je předpokládáno zalití kontejnerů s odpadem do bentonitu. Rozpadové teplo musí být tedy v době uložení menší než jsou použité materiály schopny odvést. Na obrázku 1.1 jsou zobrazeny aktinoidy a štěpné produkty přispívající k rozpadovému teplu. Cílem výzkumu je transmutovat aktinoidy vyznačené na obrázku přispívající do rozpadového tepla v oblasti mezi 300 a 10000 lety po vyřazení paliva z reaktoru.

1.2 Koncept ADTS systémů

Současný koncept ADTS systémů je založený na podkritickém reaktoru a zdroji neutronů tvořeného protonovým urychlovačem a spalačným zdrojem. V podkritickém blanketu dochází k násobení toku rychlých neutronů pocházejících ze spalační reakce. Takto vzniklé pole se vyznačuje vysokým tokem rychlých neutronů, které jsou schopny účinně spalovat nebo transmutowat dlouho žijící štěpné produkty a aktinoidy. Výsledné produkty určené k trvalému uložení už mají relativně krátký poločas rozpadu. Na obrázku 1.2 je znázorněno schéma typického ADTS.

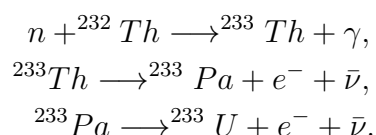


Obrázek 1.2: Schéma typického ADTS [4].

Vysoký tok neutronů v blanketu je možné využít i pro transmutaci ^{232}Th na ^{233}U . Tento izotop uranu má lichý počet neutronů a je již použitelný jako štěpný materiál v současných reaktorech. Významným pozitivem všech urychlovačem řízených systémů je jejich bezpečnost. Po vypnutí urychlovače se díky tomu, že je systém podkritický, štěpná reakce okamžitě zastaví.

Současný koncept ADS vzešel ze čtyř výzkumných projektů:

- ATW (Accelerator Transmutation of Waste) - tento projekt navržený C. D. Bowmanem a vyvíjen v Los Alamos měl za cíl transmutaci dlouho žijících izotopů v radioaktivním odpadu.
- ADEP (Accelerator Driven Energy Production) - Tento projekt známý také jako „Energy Amplifier“ vznikl v CERN na základě myšlenky C. Rubbia. Cílem bylo použití ^{233}U jako štěpného materiálu. Tento izotop lze získat následujícím způsobem z ^{232}Th :



- APT (Accelerator Production of Tritium) - Tritium bylo v dobách Studené války používáno ve vodíkových bombách. V současné době existují požadavky na produkci tritia ze strany výzkumných týmů zabývajících se termojadernou fúzí.
- ABC (Accelerator Based Conversion) - Tento urychlovačem řízený systém měl sloužit ke spalování přebytečného ^{239}Pu získaného přepracováním a z demontovaných jaderných zbraní. Tento přebytek se v současnosti alespoň částečně řeší používáním MOX paliva.

1.3 Spalační reakce

Spalační reakce je založena na ostřelování terče z vhodného těžkého kovu lehkými relativistickými částicemi. Tato myšlenka byla použita v projektu MTA (Materials Testing Accelerator) v USA před objevením zásob uranu. Spalační zdroj neutronů měl být použit pro transmutaci ^{238}U na ^{239}Pu pro zbraňové účely. Z tohoto projektu však sešlo díky produkci plutonia ve štěpných reaktorech.

Z technologického hlediska se jako ideální primární částice jeví protony s energií přibližně 1 GeV. Lze použít i deuterony nebo i těžší jádra, jejichž urychlení je však podstatně složitější.

Uvažujeme-li proton jako primární částici, pak jeho de Broglieova vlnová délka $\lambda = h/\sqrt{2mE}$ je při energii 1 GeV v řádu 10^{-14} cm. Toto opravňuje k aplikaci kaskádního modelu, který lze chápat jako série srážek s jednotlivými nukleony uvnitř terčového jádra. Reakci lze rozdělit do tří fází. Během 10^{-22} s dochází k počáteční kaskádě. V této fázi předává primární částice energii jednotlivým nukleonům. Některé nukleony mohou vyletět z jádra a způsobit další spalační reakci případně štěpení. Toto se nazývá *inter-nukleární* kaskáda. Opačnou variantou je *intra-nukleární* kaskáda někdy nazývaná také jako hadronová kaskáda (v závislosti na energii totiž mohou vznikat i jiné hadrony jako například piony a s rostoucí energií i těžší). To je právě kaskáda spalačních reakcí, které způsobují nukleony vyražené při předchozích spalačních reakcích. Následuje *přechodová* fáze, během které se energie původně předaná v inter-nukleární fázi několika nukleonům rovnoměrně rozdělí mezi všechny nukleony v jádře. Tato fáze nastává během 10^{-18} s a méně a mohou během ní být emitovány jednotlivé nukleony. Poslední fází je *vypařování*, během kterého se z jádra masivně uvolňují nukleony, zejména neutrony. Tento proces lze stejně jako štěpení popsat statistickými modely.

Neutronové spektrum spalačního zdroje je do určité energie podobné spektru ve štěpných reaktorech, které může být popsáno následující distribuční funkcí [5]

$$n(E) = 2\sqrt{\frac{E}{\pi E_T^3}} \exp\left(-\frac{E}{E_T}\right), \quad (1.1)$$

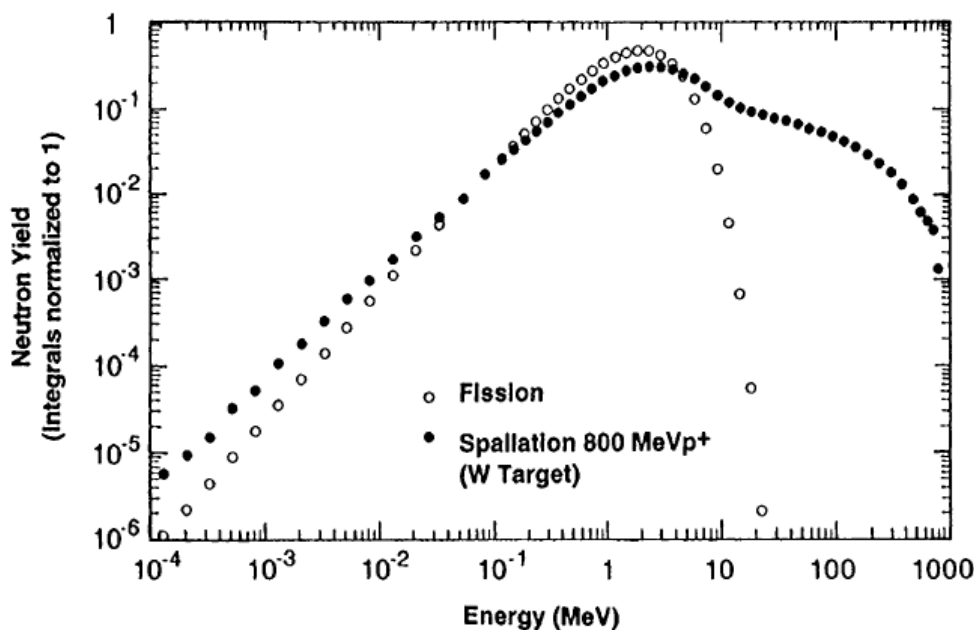
kde $E_T = kT$ má význam kinetické energie odpovídající „teplotě“ T nukleonů v jádře.

Při spalační reakci je 90% všech neutronů uvolněno během přechodové fáze a vypařování. Tyto neutrony se vyznačují tím, že jsou vyzářeny izotropně. Malá část neutronů emitovaných během kaskády může dosáhnout až energie primární částice. Tato část spektra je výrazně anizotropní. Tvar spekter neutronů vzniklých

při štěpení a při spalaci se liší právě v této vysokoenergetické oblasti. Spektrum neutronů ze spalačního zdroje může být dobře popsáno vztahem [5]

$$n(E) = A_1 \sqrt{E} \exp\left(-\frac{E}{E_{T_1}}\right) + A_2 E \exp\left(-\frac{E}{E_{T_2}}\right) + A_3 E \exp\left(-\frac{E}{E_{T_3}}\right), \quad (1.2)$$

kde charakteristické energie E_{T_1} , E_{T_2} , E_{T_3} odpovídají v tomto pořadí fázi vypařování, přechodové fázi a kaskádní fázi. Členy E_{T_1} a E_{T_2} závisí pouze málo na primární částici, výrazně však závisí na rozměrech terče. Na obrázku 1.3 jsou znázorněna spektra neutronů pocházejících ze štěpení a spektra neutronů z wolframového spalačního terče.



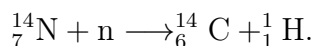
Obrázek 1.3: Model spekter neutronů pocházejících ze štěpení a spalace ve wolframovém terči [6, 7].

Vhodné materiály pro spalační terč lze rozdělit do třech kategorií podle typu materiálu a jeho skupenství při provozu.

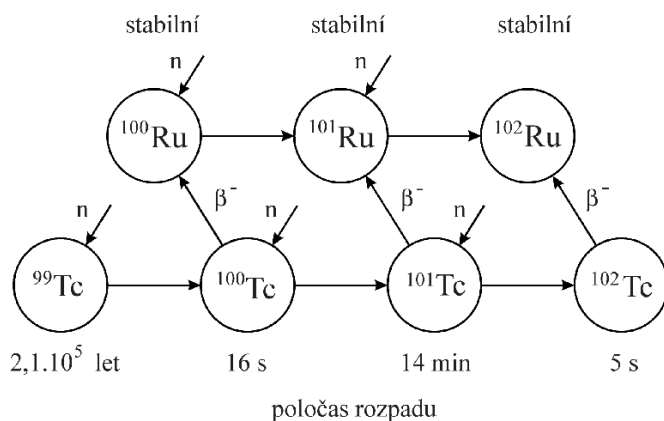
- Tekuté neštěpitelné terče - terče vytvořené z roztaveného kovu nejčastěji Hg, Pb, a Bi nebo jejich slitiny. Tyto terče mají největší výhodu v dobrém odvodu tepla. Problém ovšem je, že po ozáření se v nich produkují dlouho žijící izotopy jako ^{205}Pb , ^{208}Bi a ^{210}Bi s poločasy rozpadu v řádech od 10^5 do 10^7 let.
- Pevné neštěpitelné terče - Zde se jako nejvhodnější materiály jeví Ta a W uspořádaný do plátů. Výhodou je, že po ozáření tyto materiály vykazují nízkou aktivitu a zbytkové teplo. Dalším pozitivem je, že wolfram má jednu z největších hustot z uvažovaných materiálů - $\rho_W = 19,3 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$.
- Pevný terč z přírodního uranu nebo thoria - Tyto terče produkují větší množství neutronů díky štěpení. Nevýhodou je, že zde vznikají dlouho žijící izotopy např. ^{236}U .

1.4 Transmutace

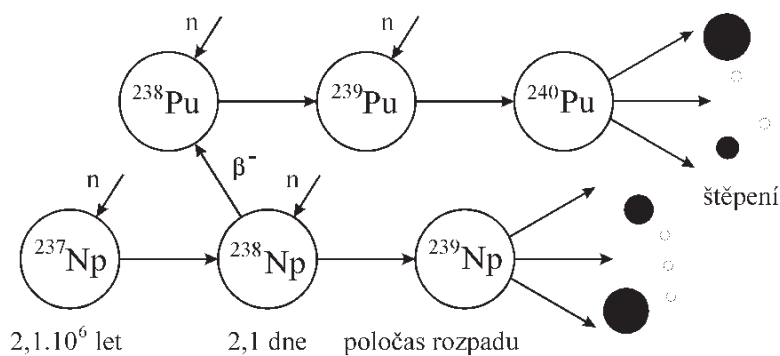
Transmutace je obecně přeměna jádra jednoho prvku na jádro prvku jiného indukovaná nějakou vnější částicí. Výsledné jádro se může lišit nejen protonovým ale i neutronovým číslem. Z toho důvodu mohou být vlastnosti jako poločas rozpadu, typ rozpadu a stabilita jádra vůči štěpení značně rozdílné od původního jádra. Transmutace je v přírodě naprosto běžná a její využití se našlo např. v datování pomocí ^{14}C , který vzniká reakcí



Transmutace se nabízí pro minimalizaci radioaktivního odpadu z vyhořelého paliva. Dlouhožijící izotopy z tohoto paliva lze transmutovat na stabilní. Je k tomu však třeba několikanásobný neutronový záchyt případně následovaný štěpením. Typickým příkladem je transmutace ^{99}Tc a ^{237}Np . Tyto reakce jsou zobrazeny na obrázcích 1.4 a 1.5.



Obrázek 1.4: Transmutace ^{99}Tc [8].



Obrázek 1.5: Transmutace ^{237}Np [8].

Stejným způsobem lze transmutovat i ^{232}Th na ^{233}U , který lze využít jako palivo ve štěpných reaktorech. Schéma této transmutace je zobrazeno výše v popisu projektu „Energy Amplifier“.

Pro transmutaci štěpných produktů a thoria pro výrobu paliva je zapotřebí vysoká hustota toku neutronů s vhodnou energií těmito materiály. Výše popsané spalační zdroje produkují právě taková intenzivní neutronová pole s energií v řádu MeV.

1.5 Současné a minulé projekty spojené s ADTS a výzkumné cíle

V minulosti bylo spuštěno několik projektů, které měly za cíl ověřit technologickou a principiální realizovatelnost ADTS. Mezi nejvýznamnější z těchto projektů patří

- Megawatt Spallation Target Pilot Experiment (MEGAPIE) - tento projekt měl za cíl ověřit trvalý provoz spalačního terče pro potřeby neutronového zdroje pro ADTS. Testovaný příkon svazku byl ~ 1 MW. Jednalo se o kapalný terč z eutektické slitiny Pb-Bi. Tento terč byl instalován na pozici SINQ (Swiss Spallation Neutron Source) v Paul Scherrer Institut (PSI) ve Švýcarsku.
- Transmutation Experimental Facility (TEF) - instalace se skládá ze dvou experimentů: Transmutation Physics Experimental Facility (TEF-P) a ADS Target Test Facility (TEF-T) [9]. TEF-P je vybavené kritickou sestavou k vyšetření fyzikálních a dynamických vlastností urychlovačem řízených systémů. TEF-T je určena pro ověření možnosti realizace ADTS z technického hlediska.
- Multi-purpose hybrid research reactor for high-tech applications (MYRRHA) - víceúčelový hybridní reaktor pro moderní aplikace v Belgickém centru jaderného výzkumu v Molu. Tento rychlý reaktor je koncipován jako urychlovačem řízený systém schopný pracovat v podkritickém i kritickém uspořádání. Jeho součástí by měl být 600 MeV protonový urychlovač se spalačním terčem a neutronový násobič s palivem typu MOX. Předpokládaný začátek provozu s plným výkonem je v roce 2023.

V průběhu času bylo uvažováno velké množství projektů. Většina z nich však skončila pouze návrhem. S rozvojem reaktorů IV. generace došlo k výraznému poklesu zájmu o urychlovačem řízené systémy. Výraznou roli hrál často i nedostatek financí. To se týká zejména ruských projektů ADTS.

Mimo výše zmiňovaných projektů, které měly za cíl ověřit praktickou proveditelnost ADTS existují projekty shromažďující materiálová data, účinné průřezy a jiná jaderná data. Za tímto účelem proběhlo několik mezinárodních experimentů. V rámci *pátého rámcového programu (Fifth Framework Programme - FP5)* se jednalo o projekty

- **Thorium Cycle Project** - projekt zaměřený na klíčová data thoriového cyklu v reaktorech a ADTS. Byly studovány různé směsi Th-Pu při co nejvyšším vyhoření za účelem minimalizace produkce dlouho žijících izotopů.
- **CONFIRM** - cílem tohoto projektu byl vývoj paliva pro ADS na bázi oxidů a nitridů bez uranu. Byl vyvinut speciální tvar palivových pelet umožňující dosáhnout vysokého vyhoření.
- **HINDAS** - projekt s cílem přímo získávat jaderná data pro urychlovačem řízené systémy. Experimentální data byla měřena v různých zařízeních po celé Evropě. V rámci tohoto projektu byly knihovny jaderných dat rozšířeny až po energii 200 MeV.

- **n-TOF** - zařízení vyvinuté v CERNu pracuje od roku 2001. Jedná se o neutronový zdroj na bázi spalační reakce v olověném terči. Terč je ostřelován protony z urychlovače PS o hybnosti 20 GeV/c. Pro určení energie neutronů je použita metoda *time-of-flight* s délkou dráhy 200 m. Energetické spektrum neutronů pokrývá rozsah od oblasti meV až po oblast GeV.

V rámci *šestého rámcového programu (FP6)* byly s transmutací vyhořelého paliva a ADS spojeny následující programy

- **EUROTRANS** (European Research Programme for Transmutation of High Level Nuclear Waste in a Accelerator Driven System)
- **EUROPART** (European Research Programme for the Partitioning of Minor Actinides)
- **RED IMPACT** (Impact of Partitioning, Transmutation and Waste Reduction Technologies on the Final Waste Disposal Project)
- **EFNUDAT** (European Facilities for Nuclear Data Measurements) - tento program umožňující členským zemím využívání různých experimentálních zařízení v Evropě bude popsán v následující kapitole.

V následujícím *sedmém rámcovém programu (FP7)* zmiňme pouze projekt ERINDA (European Research Infrastructures for Nuclear Data Applications), který je nástupnickým projektem programu EFNUDAT. V rámci tohoto projektu bylo uskutečněno také měření, kterým se zabývá i tato práce. Stejně jako EFNUDAT bude i ERINDA detailněji popsána v následující kapitole.

Současný výzkum by se dal rozdělit do tří kategorií, které jsou však spolu úzce provázány:

1. **Jednoduché sestavy** - tyto projekty mají za cíl nasbírat data zejména o účinných průřezech reakcí neutronů a protonů o energiích důležitých pro ADTS s různými materiály. Na rozdíl od energií užívaných v klasických štěpných reaktorech je znalost účinných průřezů v řádech jednotek a desítek MeV velice slabá.
2. **Komplikovanější sestavy** - zde se zkoumají a ověřují schopnosti blanketů multiplikovat neutrony, efektivita transmutace, přenos tepla, dlouhodobá udržitelnost provozu a konstrukční problémy.
3. **Simulační kódy** - realističtější simulace přenosu částic a energie v materiálech dokáží výrazně usnadnit výzkum a vývoj případných urychlovačem řízených systémů. Stejně tak budou tyto kódy použitelné při konstrukci výzkumných spalačních neutronových zdrojů. Pro konstrukci realistického kódu je však třeba znát velké množství experimentálních hodnot. Tyto hodnoty je třeba získat v projektech spadajících do předchozích dvou sekcí.

2. Výzkum ADTS v rámci ÚJF AV ČR

Měření účinných průřezů a neutronových polí v modelových sestavách ADTS má v Oddělení jaderné spektroskopie ÚJF AV ČR dlouhou tradici. V této části budou stručně popsány projekty a spolupráce na nichž se zdejší pracovníci podíleli.

2.1 Energy and Transmutation of Radioactive Waste project - E&T RAW

Tato spolupráce se zaměřuje na studium produkce a transportu neutronů v modelových sestavách ADTS. Tyto sestavy jsou umístěny na urychlovači Nuclotron ve Spojeném ústavu jaderných výzkumů (SÚJV) v Dubně. Skupina z ÚJF se specializuje na studium vysokoenergetických neutronů, parametry svazku a v současné době i měření účinných průřezů různých materiálů s vysokoenergetickými deuterony. V rámci spolupráce byly vyvinuty následující experimentální sestavy.

2.1.1 Gamma-2

Sestava Gamma-2 se skládá z olověného spalačního terče válcového tvaru obklopeného parafínovým moderátorem. Průměr terče je 8 cm a délka 20 cm. Parafínový moderátor má tloušťku 6 cm. Později byl terč prodloužen na 50 cm. Sestava byla ozařována protony o energii od 0,5 do 4,15 GeV [10]. Prodloužená verze v rozmezí 1 - 2 GeV [11]. Experimenty s touto sestavou měly za cíl hlavně studium spalačních reakcí a transportu vysokoenergetických neutronů a jejich moderaci v parafínu.



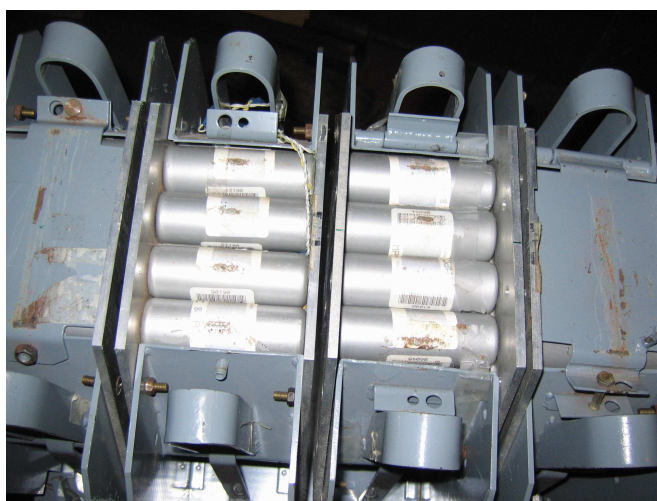
Obrázek 2.1: Otevřená sestava Gamma-2 s viditelným olověným terčem.

2.1.2 Energy plus Transmutation (E+T)

V tomto případě se jedná již o komplexnější sestavu pro studium transportu a multiplikace vysokoenergetických neutronů. Sestava je složena z oloveného spalačnického terče ve tvaru válce a průměru 84 mm a hexagonálního blanketu z přírodního uranu o celkové hmotnosti 206,4 kg. Terč i blanket jsou rozděleny do čtyř sekcí každá délky 114 mm. Mezi sekcemi jsou vzduchové mezery tloušťky 8 mm. Tyto prostory jsou určeny pro držáky se vzorky. V každé sekci je blanket tvořen 30 identickými uranovými tyčemi hermeticky uzavřenými v hliníkových pouzdrech. Celá sestava je uzavřena ve stínění skládajícím se z kadmiových desek tvořících vnitřní stěny, granulovaného polyethylenu a dřevěných desek tvořících vnější stěny. Jako primární částice byly používány protony o energii 0,7 - 4 GeV a deuterony. Výsledky lze najít v diplomové [12] a disertační práci [13] O. Svobody a disertační práci [14] A. Krásy. Detailnější popis a MCNPX model pro simulaci lze najít v [15].



Obrázek 2.2: Sestava E+T se stíněním [13].



Obrázek 2.3: Detailní pohled na uranový blanket [13].

2.1.3 Gamma-3

Sestava skládající se z válcového olověného terče umístěném v masivním grafitovém bloku sloužícím jako moderátor. Průměr terče je 8 cm a délka 60 cm. Moderátor s celkovými rozměry $110 \times 110 \times 60 \text{ cm}^3$ je sestaven z grafitových cihel. V moderátoru jsou umístěny čtyři grafitové válce s otvory pro vzorky. Tato sestava slouží ke studiu transmutace radioaktivních izotopů v intenzivním poli moderovaných neutronů.



Obrázek 2.4: Celkový pohled na sestavu Gamma-3 [13].

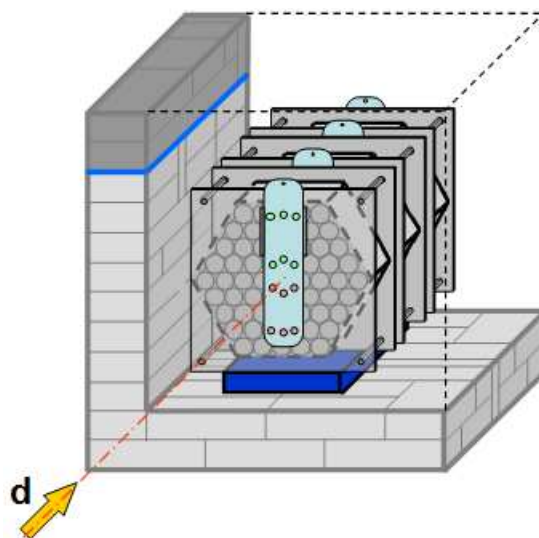


Obrázek 2.5: Detail grafitového válce s umístěnými vzorky [13].

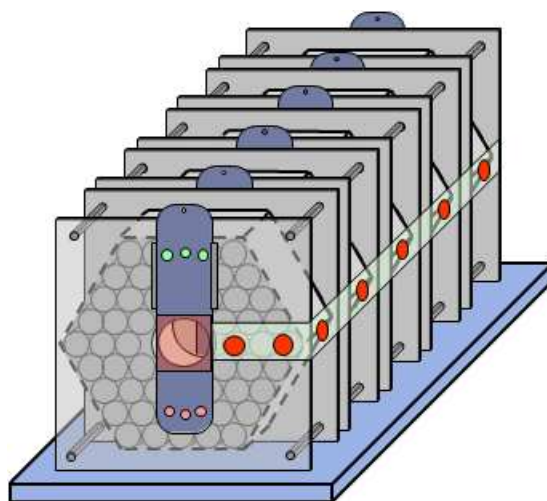
2.1.4 Kvinta

Kvinta je nástupcem sestavy E+T. Je tvořena podobnými hexagonálními sekcemi jako sestava E+T, avšak tyto sekce jsou úplně vyplněny tyčemi z přírodního uranu. Kvinta tak funguje jako velký uranový terč. Celá sestava je umístěna v

olověném stínění. Existují dvě verze této sestavy. Do roku 2010 tvořily Kvintu tři identické hexagonální sekce vyplněné uranovými tyčemi. Mezi tyto sekce se podobně jako v případě E+T sestavy zasunovaly držáky se vzorky. Od roku 2011 byly přidány dvě další sekce. Jedna identická s prvními třemi a druhá má ve svém středu nevyplněný prostor pro svazek. Tato průchozí sekce je umístěna na začátku sestavy viz. obrázek 2.7. V rámci této práce jsem se podílel i na přípravě experimentu a měření s touto sestavou. Naměřená data zpracovává M.Suchopár v rámci své disertační práce.



Obrázek 2.6: Sestava Kvinta 2010 [16].



Obrázek 2.7: Sestava Kvinta 2011 [17].

2.2 EFNUDAT

EFNUDAT [18] byl projekt sloužící k přístupu externích pracovníků k různým experimentálním zařízením patřících členským organizacím. Tento projekt byl financován Evropskou komisí v rámci šestého rámcového programu (FP6). Cílem bylo zkvalitnění a získání nových přesných dat. Tato data jsou potřebná pro projekty spojené s transmutací radioaktivního odpadu a s projekty zabývajícími se reaktory čtvrté generace [18]. Skupina z ÚJF využila podporu tohoto projektu pro měření účinných průřezů reakcí neutronů s různými materiály.

Měření proběhlo na kvazi-monoenergetickém neutronovém zdroji s rozsahem energií 11-175 MeV. Tento zdroj založený na reakci ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ [19] je umístěn na protonovém svazku cyklotronu Gustaf Werner. Cyklotron s energií protonů až do 180 MeV a do 45 MeV pro těžší ionty až po Xe je hlavním experimentálním zařízením Svedbergovy laboratoře Uppsalské univerzity.

Cílem měření bylo určit účinné průřezy (n,xn) prahových reakcí neutronů pro různé materiály a různé (vysoké) energie. Naměřená data z reakcí při energiích nad 30 MeV a z reakcí stupně $(n,4n)$ a víc jsou unikátní a nebyla do té doby nikdy měřena. Tato data byla částečně použita v disertační práci [13], částečně budou použita v disertační práci J. Vrzalové a byla publikována v [20].

2.3 ERINDA

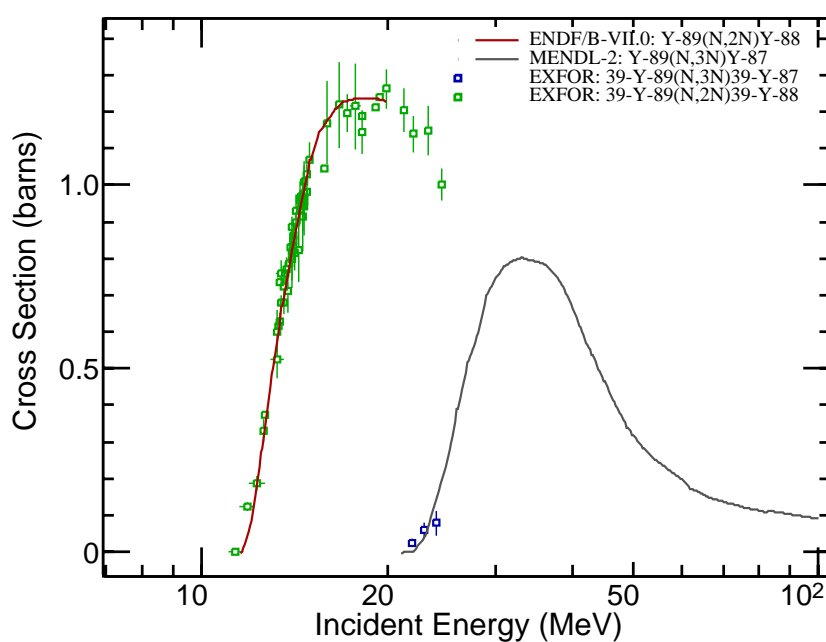
ERINDA je nástupcem projektu EFNUDAT. Projekt je financován v rámci sedmého rámcového programu Evropskou komisí. Cíle jsou prakticky totožné jako v případě EFNUDAT. Rozdíl je v počtu členských institucí. Zatímco EFNUDAT měl deset členů [18], ERINDA má členů třináct [21].

Tato práce vznikla na základě experimentu polské skupiny na neutronovém zdroji ÚJF AV ČR podporovaném právě projektem ERINDA. Cílem experimentu bylo určení účinných průřezů reakcí ${}^{89}\text{Y}(n,xn){}^{89-x+1}\text{Y}$. Yttrium bylo zvoleno z důvodu jeho vhodných prahových reakcí. Díky tomu je dobře použitelné pro dozimetrii neutronů a studium neutronových polí. K tomu je však potřebná znalost účinných průřezů těchto reakcí. Průběžné výsledky byly prezentovány v rámci *2nd ERINDA Progress meeting and a scientific workshop*, který hostila Univerzita v Jyväskylä ve Finsku. Experiment a neutronový zdroj jsou popsány v kapitole 6.

3. Prahové (n,xn) reakce a jejich účinné průřezy

Pro studium neutronových polí v modelových sestavách ADTS se nejčastěji používají kovové aktivační detektory. V těchto detektorech dochází při ozáření neutrony k (n,xn) reakcím. Stupeň reakce závisí na energii neutronů a použitém materiálu. Podle stupně těchto reakcí je tedy možné určit spektrum neutronového pole v místě, kde byl detektor umístěn. Kvalita určení spektra závisí pouze na materiálu, ze kterých byly detektory vyrobeny. Toto platí ovšem pouze v případě dokonalé znalosti účinných průřezů uvažovaných reakcí.

Bohužel skutečnost je taková, že znalost experimentálních hodnot účinných průřezů (n,xn) reakcí je velice slabá. Ve většině případů jsou experimentálně prostudované pouze $(n,2n)$ případně $(n,3n)$ reakce a to zpravidla s energiemi do 30 MeV.



Obrázek 3.1: Průběh účinného průřezu reakce $^{89}\text{Y}(n,2n)^{88}$ a experimentální hodnoty z databází ENDF [22] a EXFOR [23].

Proto se už v rámci své disertační práce zabýval O. Svoboda měření účinných průřezů (n,xn) reakcí. Tato měření probíhala na neutronovém zdroji v ÚJF AV ČR a v rámci projektu EFNUDAT také na neutronovém zdroji v Uppsale ve Švédsku, viz sekce 2.2.

Tato práce navazuje na měření v rámci projektu EFNUDAT a zabývá se měřením účinných průřezů (n,xn) prahových reakcí. Konkrétně jsou zkoumány reakce $^{89}\text{Y}(n,2n)^{88}\text{Y}$ a $^{89}\text{Y}(n,3n)^{87}\text{Y}$. V druhém případě je zkoumán jak totální účinné průřezy, tak parciální účinné průřezy pro $^{89}\text{Y}(n,3n)^{87}\text{Y}$ a $^{89}\text{Y}(n,3n)^{87m}\text{Y}$. Yttrium je charakteristické dobře rozlišitelnými produkty (n,xn) reakcí a jejich jednodu-

chými rozpady. Proto lze o yttriu uvažovat jako o velmi vhodném aktivačním detektoru monitorujícím neutronová pole.

Právě pro tyto charakteristiky je yttrium používáno polskou skupinou pro měření na sestavách Kvinta a Gamma-3. Dobře rozlišitelné prahové (n, xn) reakce činí z yttria vhodný detektor pro určení spektra neutronových polí v sestavách. Bohužel účinné průřezy jsou experimentálně známy pouze pro reakce $^{89}\text{Y}(n, 2n)^{88}\text{Y}$ a $^{89}\text{Y}(n, 3n)^{87}\text{Y}$ s energií do 30 MeV a s dobrým pokrytím pouze do 20 MeV v případě ^{88}Y viz. obrázek 3.1. Pro reakce $^{89}\text{Y}(n, 3n)^{87}\text{Y}$ a $^{89}\text{Y}(n, 3n)^{87m}\text{Y}$ tato data prakticky neexistují (pouze tři body v obrázku 3.1).

Z důvodu téměř neexistujících experimentálních dat začalo měření účinných průřezů (n, xn) reakcí na yttriu. Nejprve v rámci projektu EFNUDAT, kdy byl použit neutronový zdroj v TSL Uppsala. Současně bylo provedeno jedno testovací měření s využitím neutronového zdroje ÚJF AV ČR.

Další měření se uskutečnila v rámci projektu ERINDA taktéž na neutronovém zdroji ÚJF AV ČR. Zkoumané reakce spolu s prahovou energií a použitými γ -přechody jsou uvedeny v tabulce 3.1.

Reakce	Prahová energie E_{thr} [MeV]	$T_{1/2}$	Použité γ -přechody [keV/%]
$^{89}\text{Y}(n, 2n)^{88}\text{Y}$	11,6	106,626 d	898,042/93,68 1836,063/99,24
$^{89}\text{Y}(n, 3n)^{87}\text{Y}$	21,1	79,8 h	484,805/89,85
$^{89}\text{Y}(n, 3n)^{87m}\text{Y}$	21,6	13,37 h	380,79/78,06

Tabulka 3.1: Zkoumané reakce spolu s prahovými energiemi a použitými γ -přechody.

3.1 Požadavky na neutronový zdroj

Neutronový zdroj použitelný pro měření účinných průřezů (n, xn) reakcí metodou aktivační analýzy musí splňovat dvě důležité podmínky:

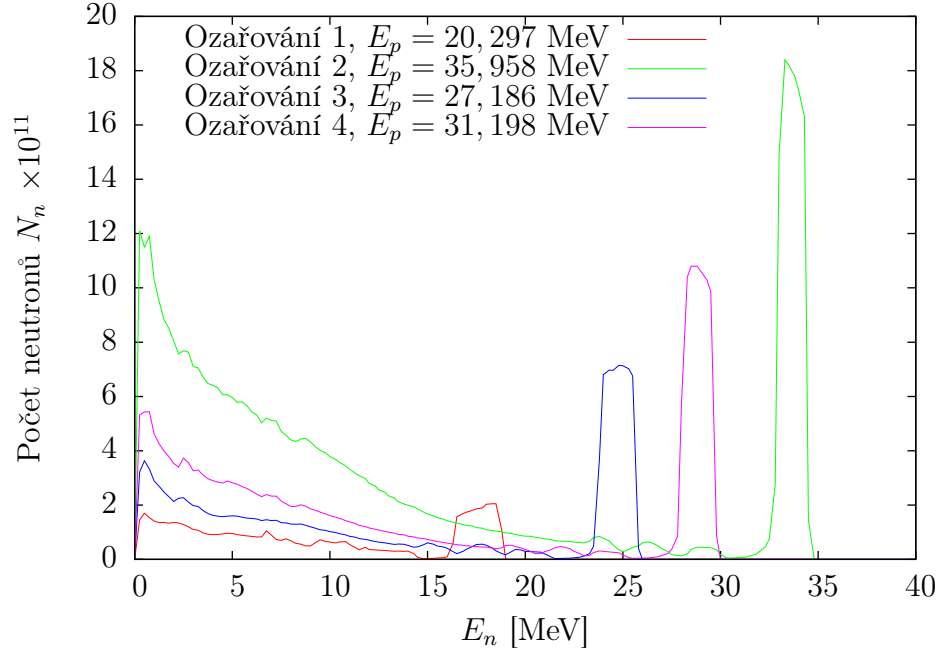
1. produkce monoenergetického nebo alespoň kvazi-monoenergetického svazku s dobře známým spektrem,
2. dostatečná intenzita svazku s ohledem na účinný průřez studovaných reakcí.

Neutronové zdroje v Uppsale i v Řeži obě tyto podmínky splňují. Na obrázku 3.2 je ukázka neutronového spektra zdroje v ÚJF.

Podmínka kvazi-monoenergičnosti je implikována nutností dobré definovatelnosti energie neutronů indukujících studovanou reakci. V případě „bílých“ zdrojů neutronů je prakticky nemožné určit účinný průřez reakce pro určitou diskretní energii neutronů. Spektrum musí být taktéž dobře popsáno, neboť se zpravidla neprodukuje pouze neutrony s energií v oblasti píku, ale produkuje se také značné množství neutronů s nižšími energiemi. Tudiž znalost spektra je nutná pro odečet tohoto pozadí. Vlastní metoda odečtu pozadí je popsána níže.

Druhá podmínka je dána charakterem reakcí. Při energiích v řádech desítek MeV se jedná v naprosté většině případů o přímé jaderné reakce. Účinné průřezy

takových reakcí jsou zpravidla v řádu jednotek barnů a méně. Navíc při využití aktivační metody se jen malá část reakcí projeví detekovaným γ -kvantem. Z tohoto důvodu je nutné mít dostatečně intenzivní tok neutronů pro měření pomocí aktivační analýzy.



Obrázek 3.2: Příklad spekter neutronového zdroje ÚJF AV ČR. Jedná se o spektra neutronů prošlých folií o rozměrech $2,5 \times 2,5 \text{ cm}^2$.

3.2 Odečet pozadí

Jak je vidět na obrázku 3.2, značné množství neutronů má energie o hodnotách nižších než píkova energie. V závislosti na prahové energii a účinném průřezu indukují „pozaďové“ neutrony stejnou (n, xn) reakci jako „píkové“ neutrony, viz. obrázek 3.3. Z tohoto důvodu je nutné provést odečet neutronového pozadí.

Použitá metoda, vyvinutá O. Svobodou [13], využívá znalosti spektra neutronového zdroje a programu Talys pro simulaci účinných průřezů. Principem je poměr konvolucí neutronového spektra a účinného průřezu v oblasti píku a v celém spektru. Matematicky lze tento poměr vyjádřit jako

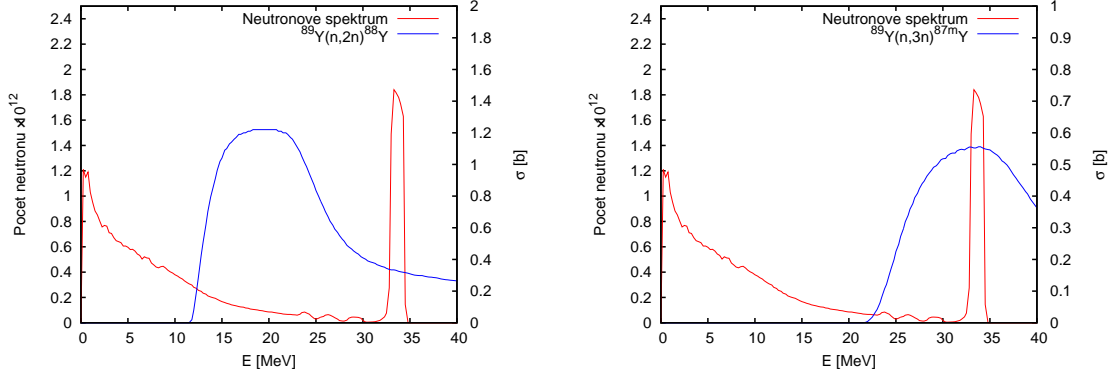
$$C_{bgr} = \frac{\int_{Peak} \sigma(E) \cdot N(E) dE}{\int_{Spectrum} \sigma(E) \cdot N(E) dE}. \quad (3.1)$$

V reálném výpočtu se však integrály ve vztahu (3.1) modifikují na sumy. Je to z důvodu, že neutronové spektrum je známo v binech po 250 keV. Proto se i účinný průřez zkoumané reakce nasimuluje v binech o stejné šířce. Výsledný vztah má pak tvar

$$C_{bgr} = \frac{\sum_{i \in Peak} \sigma_i \cdot N_i}{\sum_i \sigma_i \cdot N_i}. \quad (3.2)$$

Pomocí koeficientu C_{bgr} je možné získat počet jader produkovaných neutrony s píkovou energií $N_{yield,peak}$

$$N_{yield,peak} = N_{yield} \cdot C_{bgr}. \quad (3.3)$$



Obrázek 3.3: Ukázka překryvu účinného průřezu s neutronovým spektrem pro reakce $^{89}\text{Y}(n,2n)^{88}\text{Y}$ a $^{89}\text{Y}(n,3n)^{87m}\text{Y}$.

3.3 Účinný průřez

Pro určení účinného průřezu je nutné určit nejprve počet jader produkovaného izotopu N_{yield} . Tento počet získáme podle vztahu (4.17) resp. (4.25). Takto určené N_{yield} je stále ještě zatížené chybou způsobenou neutronovým pozadím. Po určení korekce na tyto pozadňové neutrony podle vztahu (3.1) resp. (3.2) je možné již účinný průřez zkoumané reakce. Účinný průřez reakce je dán vztahem

$$\sigma = \frac{N_{yield,peak} \cdot S \cdot A}{N_n \cdot N_A \cdot m}, \quad (3.4)$$

kde S je plocha folie, A molární hmotnost, N_n počet neutronů v píce, N_A Avogadrova konstanta a m je hmotnost folie.

4. Využití aktivačních detektorů neutronů

Aktivace materiálů neutrony se užívá zejména pro určení jejich přesného složení. Výhodou je, že tato metoda dokáže určit také izotopické složení. Pokud přesné chemické a izotopické složení ozařovaného materiálu známe, je možné určit neutronový tok. V tom případě musíme znát účinné průřezy příslušných reakcí. Toto neplatí pouze pro neutrony jako primární částice, ale obecně pro jakoukoliv reakci. Pro určení integrálu svazku na urychlovači Nuclotron se např. používají hliníkové aktivační detektory s využitím reakce $^{27}\text{Al}(d,3p2n)^{24}\text{Na}$. Výtěžek, určený pomocí standardních metod γ -spektrometrie, umožňuje díky známému účinnému průřezu určit počet nalétávajících primárních částic.

V následujícím textu budou popsány jednotlivé spektrometrické korekce [24, 13, 12], které je třeba započíst, jestliže chceme určit výtěžek N_{yield} ze změřené plochy píku. V textu jsou uvedeny pouze vlastní korekce. Úplné odvození některých z nich je uvedeno v příloze A.

4.1 Korekce na rozpad během chladnutí a měření

Aktivovaná jádra se rozpadají v souladu s exponenciálním rozpadovým zákonem

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t}, \quad (4.1)$$

kde $\lambda = \ln(2)/T_{1/2}$ je rozpadová konstanta, $T_{1/2}$ je poločas rozpadu, t je čas a N_0 je počáteční počet rozpadajících se jader. Proto je třeba zohlednit dobu mezi ozářením a začátkem měření. Stejně tak je třeba zohlednit i rozpad během měření, jehož délka může být i ve stejném řádu, jako poločas rozpadu zkoumaného izotopu. Poměr mezi počtem rozpadajících se jader na konci ozařování a naměřeným počtem je dán výrazem

$$\frac{N_0}{N_{det}} = \frac{e^{-\lambda t_0}}{1 - e^{-\lambda t_{real}}}. \quad (4.2)$$

4.2 Korekce rozpadu během ozařování

Zkoumané izotopy se nerozpadají pouze po ukončení ozařování, ale začínají se rozpadat ihned po začátku jejich produkce. Rozpadají se tedy i po celou dobu ozařování. Proto je třeba určit kolik jader se během ozařování rozpadlo, aby bylo možné stanovit celkové množství zkoumaného izotopu vyprodukované během ozařování.

Předpokládejme, že t_{irr} je celková doba ozařování. Dále předpokládejme, že produkce probíhala s konstantní rychlostí P a že před začátkem ozařování bylo zastoupení produkovaného izotopu ve vzorku nulové.

Potom je počet nestabilních izotopů určen diferenciální rovnicí

$$\frac{dN}{dt} = P - \lambda N. \quad (4.3)$$

Tato rovnice lze řešit metodou separace proměnných. Celý výpočet je uveden v příloze A.1. Zde je uveden pouze koeficient C_{irr} kterým je třeba přenásobit naměřenou hodnotu. Tento koeficient má tvar

$$C_{irr} = \frac{P \cdot t_{irr}}{N_0} = \frac{\lambda \cdot t_{irr}}{1 - e^{-\lambda \cdot t_{irr}}}, \quad (4.4)$$

kde N_0 je opět počet jader studovaného izotopu na konci ozařování.

4.3 Korekce na nestabilitu svazku

V případě nestability svazku je třeba provést korekci na rozpad během výpadků a poklesů svazku. Tato korekce se dá vypočítat podle následujícího vztahu.

$$B_a = \frac{1 - e^{-\lambda \cdot t_{irr}}}{t_{irr} \sum_i^N \left[\frac{1}{t_p(i)} W(i) e^{-\lambda \cdot t_e(i)} (1 - e^{-\lambda \cdot t_p(i)}) \right]}, \quad (4.5)$$

kde t_{irr} je celková doba ozařování, $t_e(i)$ je čas od konce i -tého intervalu do konce ozařování, $t_p(i)$ je délka i -tého intervalu, $W(i)$ je poměr mezi počtem protonů v i -tém intervalu a celkovým počtem protonů a λ je rozpadová konstanta.

4.4 Účinnostní kalibrace detektoru

Pro správnou interpretaci jakéhokoliv měření je třeba znát odezvu aparatury na měřenou veličinu. V případě γ -spektrometru založeném na HPGe detektoru potřebujeme určit účinnost detekce γ -záření v závislosti na energii a vzdálenosti zářiče od detektoru. Rozlišují se dva typy účinnosti *píková účinnost* a *totální účinnost*.

- Píková účinnost je definována jako pravděpodobnost, že energie deponovaná v detektoru odpovídá plné energii zaznamenaného γ -kvanta.
- Totální účinnost na rozdíl od píkové účinnosti vyjadřuje pravděpodobnost, že v detektoru dojde k depozici jakékoli části energie γ -kvanta.

Znalost píkové účinnosti je nutná pro normalizaci naměřených hodnot. Spolu s totální účinností slouží také pro korekci kaskádních koincidencí viz. sekce 4.5.

Oba typy účinnosti lze vyjádřit pomocí různých funkcí které se fitují na naměřená experimentální data získaná pomocí kalibračních zářičů. Použitelné funkce pro popis účinnosti HPGe detektoru jsou definovány jako následující řady:

$$\varepsilon(E_\gamma) = \sum_{i=0}^n \frac{a_i}{E_\gamma} \quad (4.6)$$

$$\varepsilon(E_\gamma) = \begin{cases} e^{\left(\sum_{i=0}^n a_i \cdot \ln^i(E_\gamma) \right)}, & E_\gamma < E_{step} \\ e^{\left(\sum_{i=0}^N A_i \cdot \ln^i(E_\gamma) \right)}, & E_\gamma \geq E_{step} \end{cases} \quad (4.7)$$

V případě řady (4.7) je možné použít i dekadický logaritmus. V této práci byla pro účinnostní kalibraci využita právě řada (4.7) s dekadickým logaritmem. Vzhledem k použitým kalibračním zářičům viz. podsekcce 4.4.1, 4.4.2 byl experimentálními hodnotami pokryt prakticky celý energetický rozsah spektrometru.

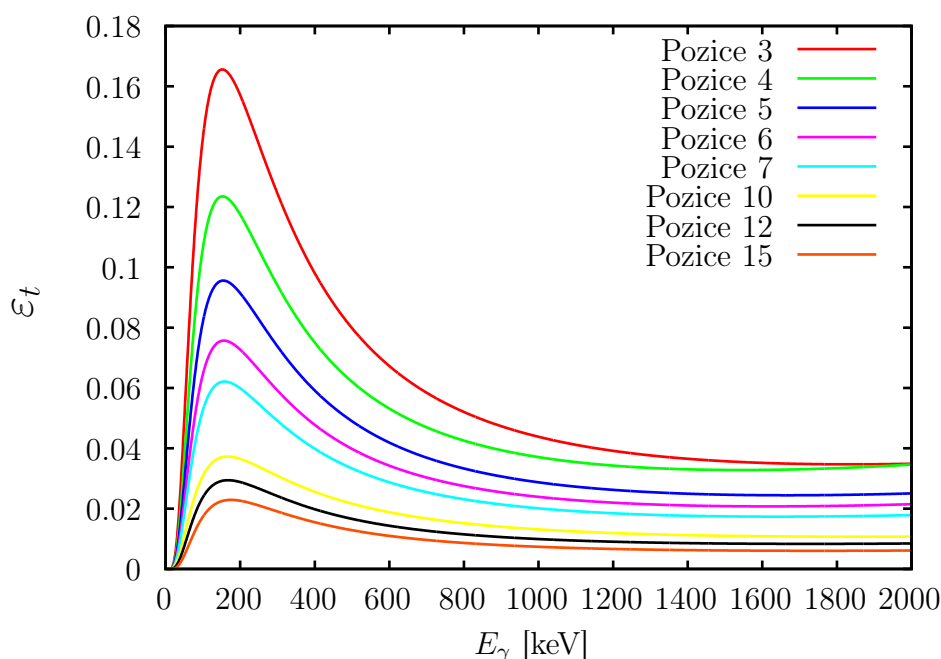
4.4.1 Totální účinnost

Při určování totální účinnosti se sumují naměřené pulzy v energetickém intervalu $(0, E_\gamma]$. Z tohoto důvodu je zřejmé, že je třeba použít monoenergetické kalibrační zářiče, případně zářiče s nejvýše dvěma vhodnými γ -přechody. Na rozdíl od fitování píků nedochází při sumaci pulzů v intervalu $(0, E_\gamma]$ k oddělení pozadí. Proto je třeba toto pozadí změřit a odečíst. Při kalibraci byly použity následující kalibrační zdroje: ^{241}Am , ^{109}Cd , ^{57}Co , ^{137}Cs , ^{88}Y , ^{65}Zn , ^{60}Co , ^{22}Na . Pro určení totální účinnosti pro jednotlivé energie byl použit následující vztah

$$\varepsilon_t = \frac{S_{tot} \cdot \lambda \cdot e^{-\lambda \cdot t_0}}{A_0 \cdot I_\gamma \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t_{real}})} \frac{t_{real}}{t_{live}}, \quad (4.8)$$

kde S_{tot} je počet impulzů, t_0 doba mezi referenčním datem zářiče a časem měření, t_{live} je doba po kterou detektor skutečně pracoval a I_γ je intenzita přechodu.

Na obrázku 4.1 jsou zobrazeny průběhy totální účinnosti pro různé pozice.



Obrázek 4.1: Závislost totální účinnosti na energii E_γ pro detektor Canberra, viz. tabulka 6.4.

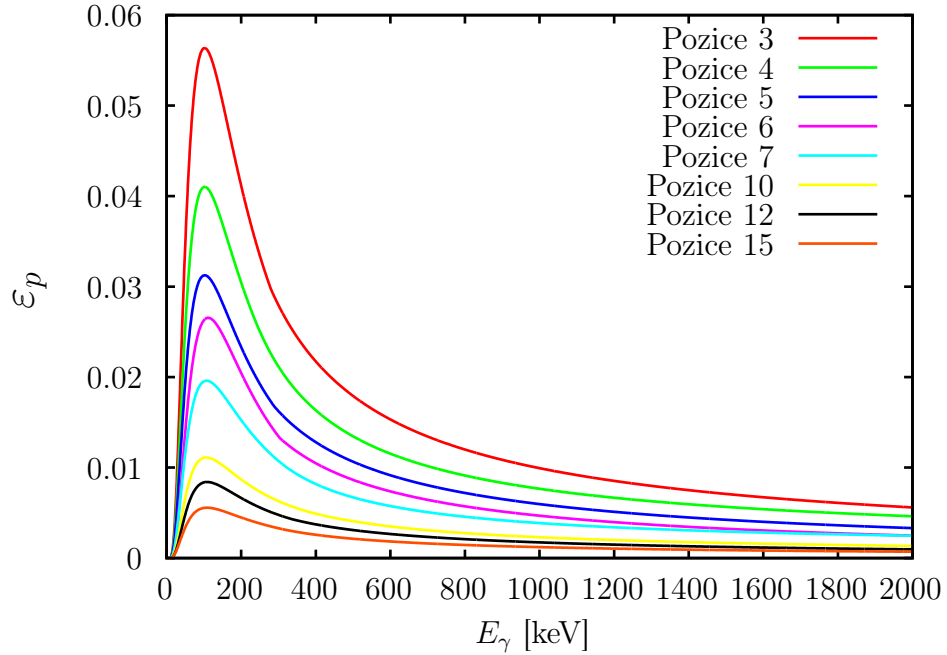
4.4.2 Píková účinnost

V případě píkové účinnosti se pracuje s fitovanými plochami jednotlivých píků. Odpadá tedy nutnost odečtu pozadí, neboť toto pozadí se zjišťuje z okolí píku při fitaci. Stejně tak není zapotřebí použití pouze monoenergetických zářičů. Tím se značně rozšiřuje výběr vhodných etalonů. Mezi nejpoužívanější patří ^{133}Ba a ^{152}Eu . Pro kalibraci detektoru byly použity stejné zářiče jako v případě totální účinnosti rozšířené právě o ^{133}Ba a ^{152}Eu . píková účinnost byla určena podle vztahu

$$\varepsilon_p = \frac{S_{peak} \cdot \lambda \cdot e^{-\lambda \cdot t_0}}{A_0 \cdot I_\gamma \cdot COI \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t_{real}})} \frac{t_{real}}{t_{live}}, \quad (4.9)$$

kde S_{peak} je plocha píku a COI je korekční koeficient kaskádních koincidence, viz. sekce 4.5. Kaskádní koincidence neovlivňují totální účinnost, proto vztah (4.8) na koeficientu COI nezávisí. Kaskádní koincidence však závisí na totální i píkové účinnosti. Pro určení píkové účinnosti tedy musíme nejprve znát totální účinnost a poté iterativně určit píkovou účinnost podle vztahu (4.9). Pro tyto účely slouží část programu CoEf, který byl vyvinut především pro korekce kaskádních koincidence.

Na obrázku 4.2 jsou zobrazeny průběhy píkové účinnosti pro různé.

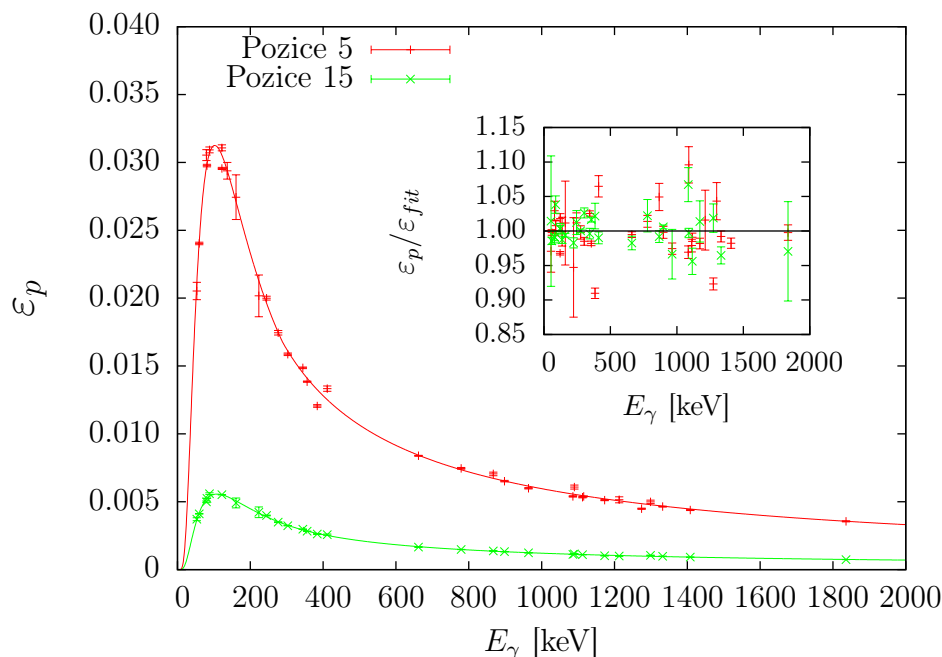


Obrázek 4.2: Závislost píkové účinnosti na energii E_γ pro detektor Canberra, viz. tabulka 6.4.

Obrázek 4.2 ukazuje již spojitě funkce získané fitováním na experimentální data. Příklad těchto dat i s proloženou funkcí pro popis účinnosti je na obrázku 4.3. Jsou zde zobrazena data pro dvě pozice se vzdáleností 5 a 15 cm od detektoru. Ve výřezu je navíc zobrazen poměr mezi experimentálními hodnotami účinnosti a hodnotami nafitovaných funkcí pro odpovídající energie.

Pro určení experimentálních hodnot účinnosti byly použity zpravidla přechody s absolutní intenzitou $I_\gamma \gtrsim 1\%$. Neurčitosti experimentálních hodnot jsou ve většině případů menší než jedno procento. Pouze v několika případech mají hodnotu mezi 5 a 8 %. Jak je vidět z obrázku 4.3, obě křivky se velice dobře shodují s experimentálními hodnotami. Z výřezu je také zřejmé, že většina bodů se neodchyluje od fitované funkce o více než $\pm 5\%$. S ohledem na tyto hodnoty je možné určit horní mez nejistoty účinnosti kalibrace na 5 %.

Všechny výše zmíněné úvahy se dají aplikovat i na kalibrace ostatních pozic. Platí pro ně tedy i horní mez nejistoty kalibrace $\sigma_{\varepsilon_p} = 5\%$.

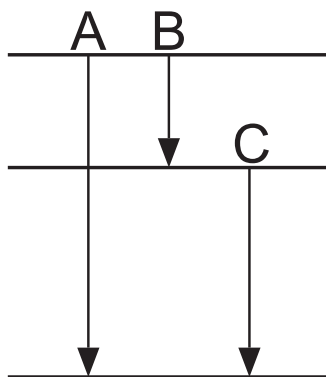


Obrázek 4.3: Srovnání experimentálních hodnot účinnosti a proložené závislosti.

4.5 Korekce pravých kaskádních $\gamma - \gamma$ koincidencí

Většina izotopů má poměrně komplikovanou strukturu energetických hladin a rozpadových schémat. Doba mezi emisí jednotlivých kaskádních γ -kvant je až na výjimky zanedbatelná vzhledem k době, po kterou se nabírá signál v detektoru. Z tohoto důvodu může dojít k zaznamenání více než jednoho emitovaného γ -kvanta a interpretaci jako jediného signálu s vyšší energií. V této části je uveden zjednodušený případ výpočtu korekcí na tento jev. Tento postup vychází z k_0 standardizační metody [25]. Na základě této metody byl také v rámci této práce vyvinut program CoEf pro výpočet koincidenčních korekcí jehož popis je uveden v příloze D. Metoda a použité vztahy jsou detailněji popsány v příloze B.

Uvažujme obecné rozpadové schéma uvedené na obrázku 4.4. Z obrázku je zřejmé, že existuje několik možností, jak se jádro může dostat do základního stavu. Jednou z možností je rozpad přímo do základního stavu provázený emisí γ -kvanta A. Konkurenčním procesem je rozpad přes kaskádu B-C.



Obrázek 4.4: Obecné rozpadové schéma

V daném případě mohou nastat dva koincidenční jevy.

1. Dojde k zaznamenání obou γ -kvant B i C zároveň - v tomto případě se zaznamenaná událost vyhodnotí jako jedno γ -kvantum o energii rovnající se součtu energií kvant B a C . Měřicí aparatura toto tedy vyhodnotí jako γ -kvantum A . Poměr mezi počtem událostí odpovídajících sumaci $B+C$ a počtu událostí odpovídajících A lze vyjádřit vztahem

$$S(A) = S(A = B + C) = \frac{I_\gamma(B)}{I_\gamma(A)} a_{CC} \frac{\varepsilon_p(C)}{\varepsilon_p(A)}, \quad (4.10)$$

kde I_γ je intenzita odpovídajícího přechodu, a je odpovídající větvící poměr a $c = 1/(1 + \alpha_t)$, kde α_t je odpovídající totální konverzní koeficient.

2. Dojde současně k plnému pohlcení kvanta B a částečnému pohlcení kvanta C a naopak - pokud je energie zaznamenaná částečným pohlcením vyšší než rozlišení detektoru, dojde k posunutí události mimo pík plného pohlcení. Koeficient vyjadřující zmenšení píku odpovídajícího přechodu B v následku částečného pohlcení γ -kvanta C je

$$L(B) = L(\underline{B} - C) = a_{CC} \varepsilon_t(C). \quad (4.11)$$

V opačném případě má koeficient vyjadřující zmenšení píku odpovídajícího přechodu C tvar

$$L(C) = L(B - \underline{C}) = \frac{I_\gamma(B)}{I_\gamma(C)} a_{CC} \varepsilon_t(B). \quad (4.12)$$

Výše uvedené vztahy lze zobecnit i pro delší kaskády a několik možných kaskád. Toto zobecnění je uvedeno v příloze B. Definujeme-li úplný koincidenční korekční koeficient jako

$$COI(A) = (1 - L(A))(1 + S(A)). \quad (4.13)$$

Potom správný počet událostí odpovídajících obecnému přechodu A je

$$N(A) = \frac{N_{det}(A)}{COI(A)}. \quad (4.14)$$

Mimo pravých $\gamma-\gamma$ kaskádních koincidencí existují ještě náhodné koincidence. Při těchto koincidencích detektor zaznamená dvě a více kvant pocházejících z různých jader. Vzhledem k malé aktivitě vzorků a nízké geometrické účinnosti detektoru lze tyto koincidence v našem případě zanedbat.

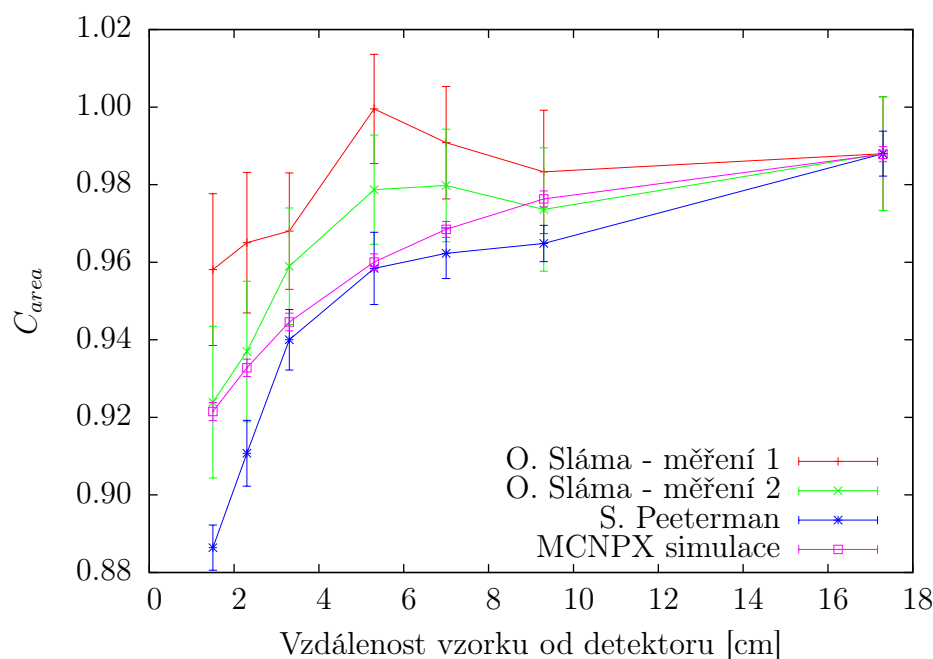
4.6 Korekce účinnosti pro plošné zářiče

Kalibrace detektoru se provádí s pomocí bodových kalibračních zářičů. Při reálném měření jsou však vzorky ve formě folií zpravidla o rozměrech \sim cm. Při velkých vzdálenostech je tato korekce zanedbatelná. S klesající vzdáleností vzorku od detektoru však tato korekce nabývá na důležitosti.

Pro výpočet odezvy detektoru pro bodové a plošné zářiče vytvořil M. Majerle skript využívající MCNPX kód. Více podrobností o MCNPX simulacích lze najít v [26]. Korekce je vyjádřena ve tvaru

$$C_{area} = \frac{\varepsilon_p^{area}}{\varepsilon_p^{point}}. \quad (4.15)$$

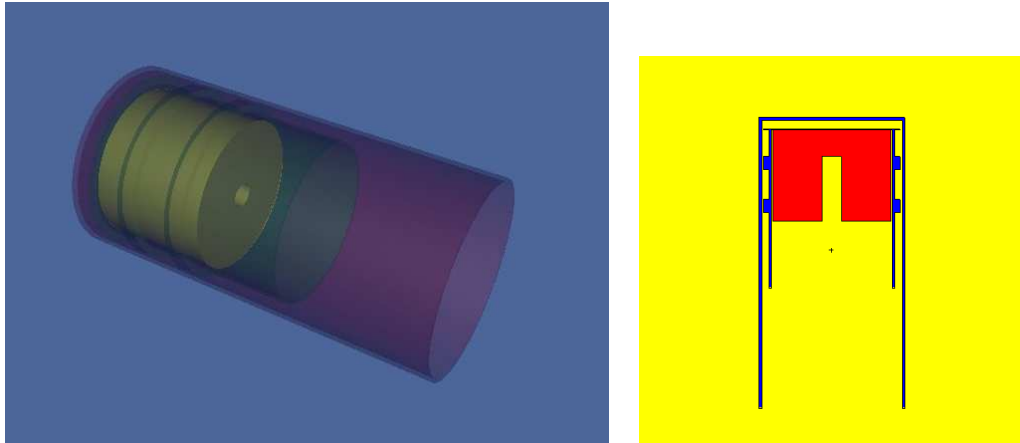
Největším problémem při použití tohoto simulačního kódu je vytvořit správný model detektoru. Informace o vnitřním uspořádání detektorů jsou v naprosté většině případů nedostupné a výrobci odmítají sdělit podrobnosti zejména o tvaru a rozměrech krystalu a mrtvých vrstev. Pro ověření MCNPX výpočtů byla proto provedena řada experimentálních měření středoškolským studentem O. Slámou [27] v rámci soutěže *AMAVET* a zahraničním studentem S. Peetermanem [28]. Výsledky měření a simulace jsou znázorněny na obrázku 4.5.



Obrázek 4.5: Zobrazení vypočtených a naměřených korekčních koeficientů, pro plošné zářiče 2×2 cm². Linie mezi body jsou pouze pro lepší orientaci v grafu.

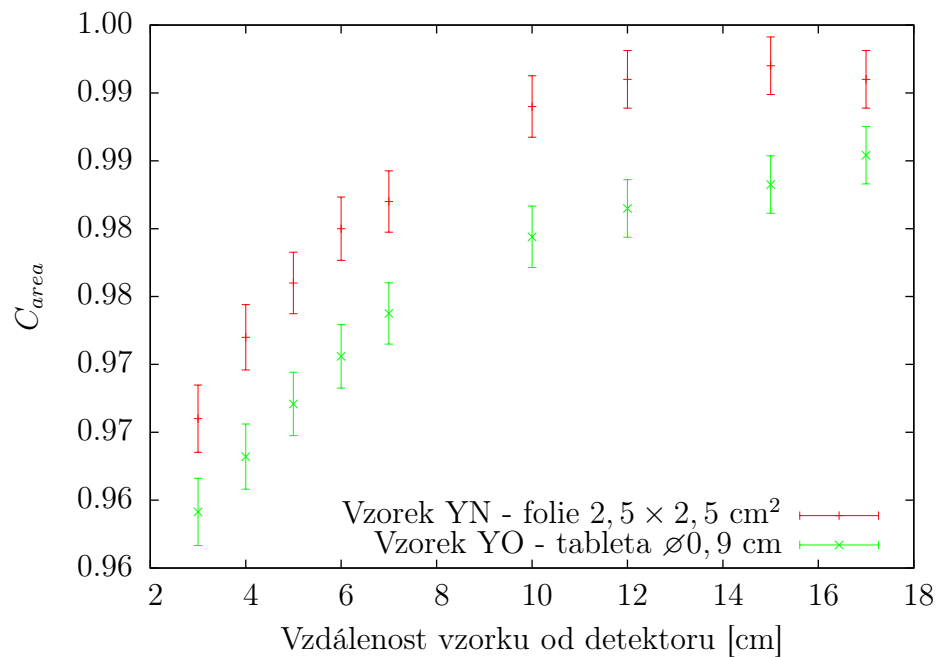
Z tohoto obrázku je zřejmé, že se vypočtené a naměřené hodnoty v rámci chyb shodují. MCNPX simulaci je tedy možné použít pro výpočet korekčních koeficientů.

Pro aplikaci tohoto skriptu i v rámci této práce bylo třeba vytvořit model nového detektoru, který byl použit pro měření. Model byl vytvořen na základě produktového listu k detektoru a dat z prezentace [29]. Na obrázku 4.6 je zobrazen 3D model detektoru a jeho řez.



Obrázek 4.6: Vizualizace modelu detektoru vytvořená pomocí programu VISED.

S pomocí tohoto modelu detektoru a MCNPX kódu byly vypočteny korekční koeficienty pro všechny geometrie použité při měření. Na obrázku 4.7 jsou tyto vypočtené koeficienty zobrazeny pro oba použité typy vzorků yttria. Z obrázku



Obrázek 4.7: Vypočtené korekční koeficienty pro použité yttriové vzorky.

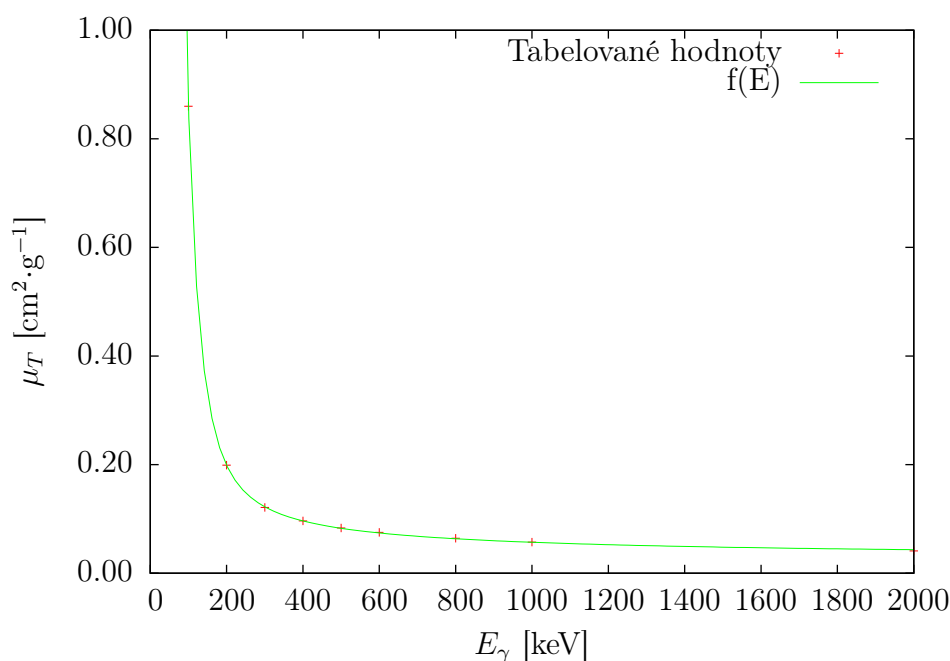
4.7 je vidět systematický posun hodnot pro jednotlivé vzorky. Je to dáno tím, že v simulaci je započtena i tloušťka vzorků. Tloušťky jsou následující $d_{YN} = 0,64 \text{ mm}$ a $d_{YO} \simeq 1,5 \text{ mm}$. Systematický posun není způsoben opravou samoabsorpce. Tou se bude zabývat další odstavec. Je to důsledek změněné geometrie vůči kalibračnímu zářiči.

4.7 Samoabsorpce a její oprava

Koeficient pro samoabsorpci záření gamma v radioaktivním vzorku lze určit jako poměr mezi neutlumeným a utlumeným tokem fotonů

$$C_{abs} = \frac{\int_0^D \frac{I_0}{D} dx}{\int_0^D \frac{I_0}{D} e^{-\mu \cdot x} dx} = \frac{\mu \cdot D}{1 - e^{-\mu \cdot D}}. \quad (4.16)$$

I_0 je nezeslabená intenzita gamma přechodu, D je tloušťka folie. Atenuační koeficient μ [cm^{-1}] je definován jako $\mu = \mu_T \cdot \rho$. Hodnoty totálního atenuačního koeficientu μ_T byly čerpány z [30]. Na obrázku 4.8 jsou zobrazeny hodnoty μ_T proložené funkcí $f(E) = a + b \cdot E^{-1} + c \cdot E^{-2} + d \cdot E^{-3}$. V tomto přístupu jsou



Obrázek 4.8: Tabelované hodnoty μ_T proložené hladkou křivkou.

uvažovány pouze fotony pohybující se rovnoběžně s osou detektoru. Při odchýleném směru může být efektivní tloušťka folie větší. Tento efekt je však vzhledem k rozměrům folií a detektoru dobře zanedbatelný.

4.8 Úplná rovnice pro určení výtěžku

Pomocí výše zmíněných spektrometrických korekcí lze sestavit rovnici pro výtěžek N_{yield} studovaného izotopu ve folii. Výsledný vztah má tvar

$$N_{yield} = \frac{S_{peak} \cdot C_{abs}(E) \cdot B_a}{I_\gamma \cdot \varepsilon_p(E) \cdot COI(E) \cdot C_{area}} \frac{t_{real}}{t_{live}} \frac{e^{-\lambda \cdot t_0}}{1 - e^{-\lambda \cdot t_{real}}} \frac{\lambda \cdot t_{irr}}{1 - e^{-\lambda \cdot t_{irr}}}. \quad (4.17)$$

Z jednotlivých n naměřených výtěžků získaných podle (4.17) je třeba určit střední hodnotu. Tuto střední hodnotu lze získat jako vážený průměr z hodnot x_i s

nejistotami Δx_i podle vztahu (4.18) nejistota takto získané střední hodnoty je dána vztahem (4.19).

$$\bar{X} = \frac{\sum_{i=1}^n \frac{x_i}{(\Delta x_i)^2}}{\sum_{i=1}^n \frac{1}{(\Delta x_i)^2}} \quad (4.18)$$

$$\Delta \bar{X} = \sqrt{\frac{1}{\sum_{i=1}^n \frac{1}{(\Delta x_i)^2}}} \quad (4.19)$$

Dále je třeba určit $\chi^2/(n-1)$. Tuto hodnotu lze určit podle vztahu (4.20). Pokud platí $\chi^2/(n-1) \leq 1$ potom je vážený průměr včetně jeho nejistoty považován za správný. Pokud $\chi^2/(n-1) > 1$, ale stále v rozumných mezích, pak je nejistota váženého průměru vynásobena hodnotou $\sqrt{\chi^2/(n-1)}$. V případě vysoké hodnoty $\chi^2/(n-1)$ byla měření zkontrolována a vyřazena ta, která byla z jakéhokoliv důvodu chybná.

$$\frac{\chi^2}{n-1} = \frac{\sum_{i=1}^n \frac{(x_i - \bar{X})^2}{(\Delta x_i)^2}}{n-1} \quad (4.20)$$

4.9 Korekční koeficienty rozpadů v případě ^{87}Y

V předchozím textu je popsán způsob získání výtěžku reakce pomocí metod aktivní analýzy. Jsou zde popsány i nutné korekce efektů spojených s měřením a samotnými vlastnostmi měřených vzorků. V částech pojednávajících o korekcích rozpadů v době mezi ozařováním a měřením a během rozpadu je však popsán postup v nejjednodušším případě. Tento případ je takový, že produkováný izotop není rozpadovým produktem jiného produkováného izotopu. Toto je splněné v případě ^{88}Y a ^{87m}Y . V případě základního stavu ^{87}Y je však situace komplikovanější. ^{87}Y ve svém základním stavu se totiž produkuje v reakci $^{89}\text{Y}(n, 3n)^{87}\text{Y}$, v této reakci se ovšem produkuje i ^{87m}Y , které se rozpadá na základní stav ^{87}Y . Při určování výtěžku ^{87}Y je tedy nutné zohlednit rozpad ^{87m}Y . V této části jsou uvedeny pouze první a poslední kroky výpočtů. Celé odvození je uvedené v příloze A.2.

4.9.1 Korekce rozpadu během chladnutí a měření

Výchozím bodem pro získání počtu jader po ozařování je rovnice (4.21). Dolní indexy g resp. m označují odpovídající veličiny základního resp. izomerního stavu ^{87}Y .

$$dN_g = -\lambda_g N_g dt + \lambda_m N_m dt \quad (4.21)$$

Řešením rovnice (4.21) a započtením rozpadu během měření společně s několika korekcemi získáme následující vztah

$$N_{g0} = \frac{S_{peak} \cdot C_{abs}(E) \cdot B_a \cdot e^{\lambda_g \cdot t_0}}{I_\gamma \cdot \varepsilon_p(E) \cdot COI(E) \cdot C_{area} \cdot t_{live}} \frac{1}{(1 - e^{-\lambda \cdot t_{real}})} + \frac{\lambda_m \cdot N_{m0}}{\lambda_g - \lambda_m} (1 - e^{(\lambda_g - \lambda_m) \cdot t_0}), \quad (4.22)$$

kde N_{g0} resp. N_{m0} jsou počty jader v základním resp. izomerním stavu po skončení ozařování. N_{m0} lze získat pomocí vztahů z předešlých částí. V tomto vztahu chybí oproti (4.17) korekce rozpadu během ozařování, kterou se zabývá další část.

4.9.2 Korekce rozpadu během ozařování

Při výpočtu této korekce vyjdeme podobně jako v části 4.2 z diferenciální rovnice. V této rovnici se však na rozdíl od (4.3) vyskytuje ještě člen závislý na $N_m(t)$. Tvar této rovnice je následující

$$dN_g = P_g - \lambda_g N_g dt + \lambda_m N_m dt. \quad (4.23)$$

Podobně jako v (4.21) reprezentují dolní indexy odpovídající veličiny pro základní a izomerní stav. Vyřešením rovnice a provedením několika algebraických úprav získáme vztah pro $C_{irr,g}$.

$$C_{irr,g} = \frac{P_g \cdot t_{irr}}{N_{g0}} = \frac{\lambda_g \cdot t_{irr}}{1 - e^{-\lambda_g \cdot t_{irr}}} - \frac{N_{yield,m}}{N_{g0} \cdot (1 - e^{-\lambda_g \cdot t_{irr}})} \left(1 - \frac{\lambda_m \cdot e^{-\lambda_g \cdot t_{irr}} - \lambda_g \cdot e^{-\lambda_m \cdot t_{irr}}}{\lambda_m - \lambda_g} \right). \quad (4.24)$$

Hodnotu $N_{yield,m}$ lze určit pomocí vztahu (4.17). Hledaný vztah pro $N_{yield,g}$ má tvar

$$N_{yield,g} = N_{g0} \cdot C_{irr,g}. \quad (4.25)$$

5. Simulace a program TALYS

V rámci této práce byly pro simulace použity dva programy. Prvním programem je MCNPX [31], jedná se o Monte Carlo kód pro simulaci transportu částic v různých materiálech. Druhým je program TALYS [32], který byl použit pro simulaci účinných průřezů zkoumaných reakcí. Pomocí výstupů z obou programů lze určit také korekci neutronového pozadí, viz. 3.2.

5.1 MCNPX

Pomocí MCNPX jsou simulována spektra neutronového zdroje. Správnost získaných spekter velice závisí na přesnosti popisu geometrie a údajích o protonovém svazku. MCNPX je také využito při výpočtu korekce plošných zářičů 4.6. Autorem obou skriptů pro využití MCNPX kódu je M. Majerle. V případě skriptu pro výpočet spekter stačilo pouze upravit geometrii vzorků. Pro skript plošné korekce bylo nutné vytvořit zcela nový model detektoru. Vizualizace tohoto modelu je na obrázku 4.6. Více o Monte Carlo simulacích je možné nalézt v [26].

5.2 TALYS

TALYS je volně dostupný program pro simulaci různých jaderných reakcí. Program je dostupný na internetové adrese <http://www.talys.eu>. Jedná se o uživatelsky přívětivý program s velkým množstvím volitelných parametrů a simulovaných pozorovatelných. Tyto pozorovatelné se dají rozdělit do čtyř kategorií.

- **Účinné průřezy** - sem patří totální účinné průřezy, elastické i neelastické účinné průřezy, produkční účinné průřezy, účinné průřezy jednotlivých kanálů, atd.
- **Spektra** - do této skupiny patří elastická a neelastická úhlová rozdělení, produkční spektra, atd.
- **Pozorovatelné veličiny štěpení** - účinné průřezy, hmotnostní a izotopická rozdělení.
- **Různé** - silové funkce, specifické předrovnávané stavy, struktura jader, atd.

Při výpočtech účinných průřezů reakcí $^{89}\text{Y}(n,xn)^{89-x+1}\text{Y}$ byly za účelem porovnání použity různé modely hustoty hladin. Použité modelové kombinace a popis jednotlivých modelů [32, 33] jsou uvedeny v následující části 5.2.1.

5.2.1 Použité modely hustoty hladin a jejich popis

V rámci programu TALYS lze použít pět různých modelových kombinací. Ve vstupním souboru jsou tyto kombinace volány pomocí klíčového slova *ldmodel* a čísla modelové kombinace. Jednotlivé kombinace jsou uvedeny v tabulce 5.2.1. Výchozím modelem je *ldmodel* 1 - model s konstantní teplotou + model Fermiho plynu.

ldmodel	Modelová kombinace
1	Model s konstantní teplotou + model Fermiho plynu
2	Model Fermiho plynu se zpětným posuvem
3	Zobecněný supratekutý model
4	Mikroskopické hustoty hladin z Gorielyho tabulky
5	Mikroskopické hustoty hladin z Hilarieho tabulky

Tabulka 5.1: Modelové kombinace použitelné v programu TALYS [33]

Model Fermiho plynu Anglicky *Fermi Gas Model - FGM*. Tento model je nejznámějším analytickým vyjádřením hustoty hladin. Hustota hladin v závislosti na skutečné excitační energii E_x , spinu J a paritě Π je popsána výrazem [34]

$$\rho_F(E_x, J, \Pi) = \frac{1}{2} \frac{2J+1}{2\sqrt{2\pi}\sigma^3} \exp\left[-\frac{(J+\frac{1}{2})^2}{2\sigma^2}\right] \frac{\sqrt{\pi} \exp[2\sqrt{aU}]}{12 a^{1/4} U^{5/4}}. \quad (5.1)$$

Efektivní excitační energie U je dána jako

$$U = E_x - \Delta,$$

kde Δ je energetický posuv. Tento vztah pro efektivní excitační energii bude v různých obměnách vystupovat i v ostatních modelech hustoty hladin. Ve vztahu (5.1) vystupují ještě parametr hustoty stavů a a spinový parametr σ .

Totální hustotu hladin $\rho^{tot}(E_x)$ lze získat sumací $\rho(E_x, J, \Pi)$ přes spin a paritu. Tato veličina pak odpovídá celkovému počtu hladin na MeV okolo excitační energie E_x .

$$\rho^{tot}(E_x) = \sum_J \sum_{\Pi} \rho(E_x, J, \Pi)$$

Pro model Fermiho plynu má pak $\rho_F^{tot}(E_x)$ tvar

$$\rho_F^{tot}(E_x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \frac{\sqrt{\pi} \exp[2\sqrt{aU}]}{12 a^{1/4} U^{5/4}}. \quad (5.2)$$

Model s konstantní teplotou Anglicky *Constant Temperature Model - CTM* [35]. V tomto modelu je interval excitační energie rozdělen na dvě části. Na nízkoenergetickou část $E_x \leq E_M$, kde se aplikuje takzvaný zákon konstantní teploty a na vysokoenergetickou část $E_x \geq E_M$, kde se použije model Fermiho plynu. Totální hustota hladin v CTM modelu je tedy dána jako

$$c = \begin{cases} \rho_T^{tot}(E_x), & E_x \leq E_M \\ \rho_F^{tot}(E_x), & E_x \geq E_M. \end{cases} \quad (5.3)$$

Výraz pro ρ_F^{tot} má stejný tvar jako (5.2), pouze efektivní excitační energie má tvar

$$U = E_x - \Delta^{CTM}.$$

Energetický posuv Δ^{CTM} v sobě pomocí párovací konstanty χ zavádí zohlednění párovacích efektů. Matematické vyjádření je následující

$$\Delta^{CTM} = \chi \frac{12}{\sqrt{A}}, \quad (5.4)$$

kde A je hmotnostní číslo. Párovací konstanta χ je dána jako

$$\chi = \begin{cases} 0, & \text{pro licho-lichá jádra,} \\ 1, & \text{pro sudo-lichá nebo licho-sudá jádra,} \\ 2, & \text{pro sudo-sudá jádra.} \end{cases} \quad (5.5)$$

V nízkoenergetické oblasti, kde se uplatňuje CTM je totální hustota hladin dána výrazem

$$\rho_T^{tot}(E_x) = \frac{1}{T} \exp\left(\frac{E_x - E_0}{T}\right). \quad (5.6)$$

Model Fermiho plynu se zpětným posuvem Anglicky *Back-shifted Fermi Gas Model - BFM* [36]. Tento model pracuje s párovací energií jako s proměnlivým parametrem. Vyjádření hustoty hladin je stejné jako v případě modelu Fermiho plynu.

$$\rho_F(E_x, J, \Pi) = \frac{1}{2} \frac{2J+1}{2\sqrt{2\pi}\sigma^3} \exp\left[-\frac{(J+\frac{1}{2})^2}{2\sigma^2}\right] \frac{\sqrt{\pi} \exp[2\sqrt{aU}]}{12 a^{1/4}U^{5/4}}. \quad (5.7)$$

$$\rho_F^{tot}(E_x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \frac{\sqrt{\pi} \exp[2\sqrt{aU}]}{12 a^{1/4}U^{5/4}}. \quad (5.8)$$

Rozdíl je však v efektivní excitační energii $U = E_x - \Delta^{BFM}$ lišící se energetickým posuvem Δ^{BFM} . Podobně jako v případě CTM je energetický posuv Δ^{BFM} závislý na párovací konstantě χ a hmotnostním čísle A . Navíc zde vystupuje ještě volný parametr δ . Vyjádření je podobné jako v případě (5.4) a má tvar

$$\Delta^{BFM} = \chi \frac{12}{\sqrt{A}} + \delta. \quad (5.9)$$

Párovací konstanta je v případě BFM dána jako

$$\chi = \begin{cases} -1, & \text{pro licho-lichá jádra,} \\ 0, & \text{pro sudo-lichá nebo licho-sudá jádra,} \\ 1, & \text{pro sudo-sudá jádra.} \end{cases} \quad (5.10)$$

Problémem původního BFM modelu byla divergence rovnic (5.7) a (5.8) v případě $U \rightarrow 0$. řešení tohoto problému bylo nalezeno v [37] a uvedeno do praktické podoby v [38]. Výraz pro totální hustotu hladin má tvar

$$\rho_{BFM}^{tot}(E_x) = \left[\frac{1}{\rho_F^{tot}(E_x)} + \frac{1}{\rho_0(t)} \right]^{-1}, \quad (5.11)$$

kde hustota $\rho_0(t)$ je definována jako

$$\rho_0(t) = \frac{e}{24\sigma} \frac{(a_n + a_p)^2}{\sqrt{a_n a_p}} \exp(4a_n a_p t^2), \quad (5.12)$$

kde $a_n = a_p = a/2$ a $t = \sqrt{U/a}$.

Se standardní distribucí spinu má pak hustota hladin tvar

$$\rho_{BFM}(E_x, J, \Pi) = \frac{1}{2} \frac{2J+1}{2\sigma^2} \exp\left[-\frac{(J+\frac{1}{2})^2}{2\sigma^2}\right] \rho_{BFM}^{tot}(E_x). \quad (5.13)$$

Zobecněný supratekutý model Anglicky *Generalized Superfluid Model - GSM*.

Tento model zahrnuje párové efekty podle BCS teorie. Fenomenologická verze modelu [39, 40] je charakterizována fázovým přechodem mezi nízkoenergetickou částí se supratekutým chováním a vysokoenergetickou částí popsanou FGM. Dělicím bodem těchto intervalů je kritická efektivní excitační energie U_c . Pro vyjádření totální hustoty stavů je užitečné zavést vztah

$$\rho^{tot}(E_x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma}} \frac{e^S}{\sqrt{D}}, \quad (5.14)$$

kde S je entropie a D je determinant spojený s aproximací sedlového bodu. Pro použití GSM jsou rozhodující kritické hodnoty efektivní excitační energie U_c , teploty T_c , determinantu D_c , a entropie S_c . Tyto hodnoty jsou určeny vztahy (5.15), (5.16), (5.20), (5.19).

$$U_c = a_c T_c^2 + E_{cond}, \quad (5.15)$$

kde a_c je kritický parametr hustoty stavů.

$$T_c = 0,567\Delta_0 \quad (5.16)$$

Párová korelační funkce Δ_0 je definována jako

$$\Delta_0 = \frac{12}{\sqrt{A}}. \quad (5.17)$$

Na funkci Δ_0 také závisí kondenzační energie E_{cond} , která je dána výrazem

$$E_{cond} = \frac{3}{2\pi^2} a_c \Delta_0^2. \quad (5.18)$$

Kritická hodnota entropie a determinantu jsou dány vztahy

$$S_c = 2a_c T_c, \quad (5.19)$$

$$D_c = \frac{144}{\pi} a_c^3 T_c^5. \quad (5.20)$$

Pro popis hustoty stavů pod hodnotou U_c je užitečné zavést efektivní excitační energii U' .

$$U' = E_x + \chi\Delta_0 + \delta, \quad (5.21)$$

kde δ je volný parametr a χ je dáno jako

$$\chi = \begin{cases} 2, & \text{pro lichá-lichá jádra,} \\ 1, & \text{pro sudo-lichá nebo lichá-sudá jádra,} \\ 0, & \text{pro sudo-sudá jádra.} \end{cases} \quad (5.22)$$

Pro $U' \leq U_c$ platí pro totální hustotu stavů vztah (5.14). Pro jeho vypočtení je nutné znát hodnoty S , D , a σ . Na tomto místě je vhodné definovat novou proměnnou φ jako

$$\varphi^2 = 1 - \frac{U'}{U_c}. \quad (5.23)$$

Pomocí této nové proměnné je možné vyjádřit teplotu T , která bude užitečná při výpočtu entropie.

$$T = 2T_c\varphi \left[\ln \frac{1+\varphi}{1-\varphi} \right]^{-1}. \quad (5.24)$$

Pro entropii S a determinant D platí vztahy

$$S = S_c \frac{T_c U'}{T U_c}, \quad (5.25)$$

$$D = D_c \frac{U'}{U_c} \left(2 - \frac{U'}{U_c} \right)^2. \quad (5.26)$$

Spinový parametr je určen vztahem

$$\sigma = \sigma_c \frac{U'}{U_c}. \quad (5.27)$$

Totální hustotu hladin lze nyní popsat vztahem

$$\rho_{GSM}^{tot}(E_x) = \begin{cases} \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma}} \frac{e^S}{\sqrt{D}}, & \text{pro } U' \leq U_c, \\ \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma}} \frac{\sqrt{\pi} \exp[2\sqrt{aU}]}{12 a^{1/4} U^{5/4}}, & \text{pro } U' \geq U_c. \end{cases} \quad (5.28)$$

kde efektivní excitační energie pro FGM má tvar $U = E_x - \Delta^{GSM}$. Energetický posuv je dán jako

$$\Delta^{GSM} = E_{cond} - \chi\Delta_0 - \delta. \quad (5.29)$$

6. Experimentální uspořádání

6.1 Neutronový zdroj a ozařování

Neutronový zdroj použitý pro experiment je umístěný na isochronním cyklotronu U120-M v Ústavu jaderné fyziky Akademie věd České republiky. Urychlovač je schopný pracovat v pozitivním i negativním módu s rozsahem urychlení protonů 1-38 MeV. Urychlované částice jsou H^+ , H^- , D^+ , D^- , ${}^3\text{He}^{+2}$, ${}^4\text{He}^{+2}$.



Obrázek 6.1: Isochronní cyklotron U120-M [13].

Neutronový zdroj využívá reakci ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$. Konstrukce vychází z neutronového zdroje Y. Uwamina [41]. Urychlené protony dopadají na terč z obohaceného lithia, při interakci těchto protonů s lithiem dochází k produkci quasi-monoenergetického svazku neutronů. Pro odstranění protonů které prošly folií bez interakce slouží grafitový stoper. Přímo za grafitovým stoperem je umístěn držák se vzorky. Nejsou zde použity žádné kolimátory ani stínění. Stoper a terč jsou chlazeny alkoholem na teplotu 5°C . Obrázek 6.2 ukazuje konstrukci neutronového zdroje a jeho reálný vzhled.

Ozařování proběhlo se čtyřmi různými energiemi. Energie, časy ozařování a další údaje jsou uvedeny v tabulce 6.1.

	Ozařování 1	Ozařování 2	Ozařování 3	Ozařování 4
Energie protonů [MeV]	20,297	35,958	27,186	31,198
Energie neutronů [MeV]	17,6	33,6	24,7	28,8
Začátek ozařování	14.9.2012 12:48:29	15.9.2012 11:43:15	5.10.2012 11:31:17	6.10.2009 9:52:29
Doba ozařování [s]	18660	28920	19630	20220

Tabulka 6.1: Parametry jednotlivých ozařování.

Při každém ozařování byly použity jeden „starý“ vzorek yttria ve tvaru tablety a jeden „nový“ yttriový vzorek ve tvaru čtvercové folie. Staré vzorky jsou

vyrobeny z lisovaného yttriového prášku a nové jsou ve formě homogenní folie. U každého yttriového vzorku byla umístěna ještě zlatá folie sloužící jako monitor neutronů v daném místě. Rozměry a hmotnosti jsou uvedeny v tabulkách 6.2 a 6.3.

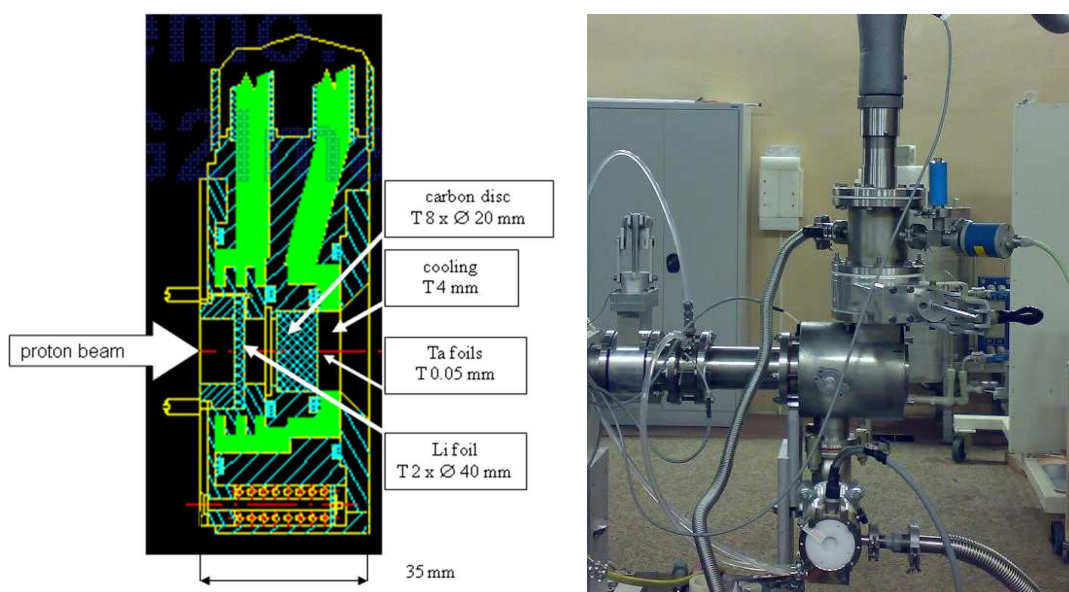
Homogenní vzorky - YN - vzdálenost od neutronového zdroje $d = 12,2$ cm				
Vzorek	1	2	3	4
Rozměry [mm]	25 × 25 × 0,64			
Hmotnost [g]	1,8707	1,7977	1,8460	1,6848

Tabulka 6.2: Vzorky homogenního yttria použité pro experiment

Lisované vzorky - YO - vzdálenost od neutronového zdroje $d = 10,2$ cm				
Vzorek	1	2	3	4
Rozměry [mm]	∅9 × 1,5			
Hmotnost [g]	0,7580	0,5958	0,7198	0,6597

Tabulka 6.3: Vzorky lisovaného yttria použité pro experiment

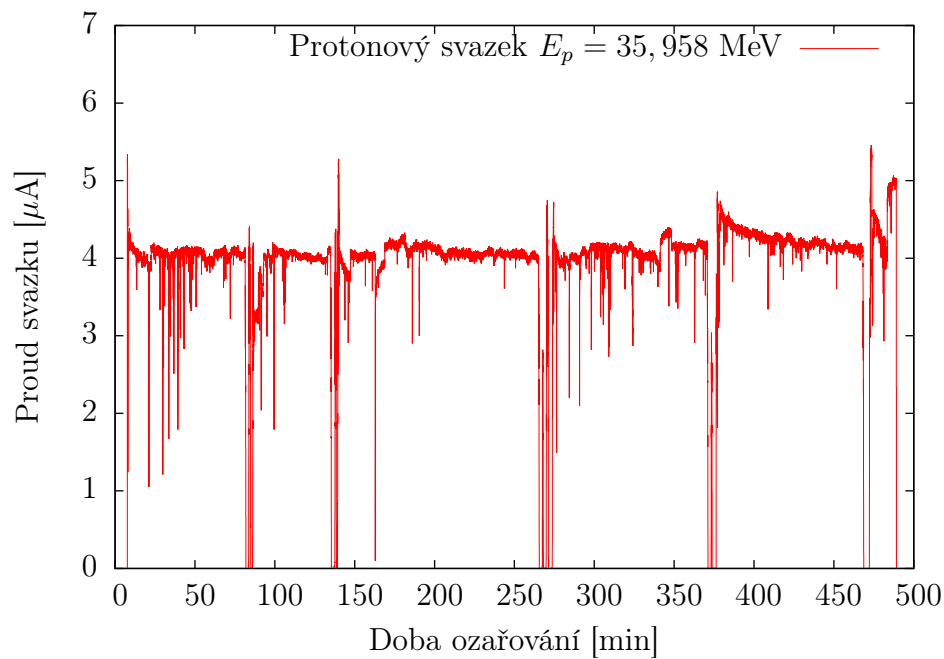
Vzorky byly ozařovány v papírovém obalu. Tento obal slouží pro zachycení „vystřelených“ jader ze folie a také jako ochrana před povrchovou kontaminací detektoru a jiného vybavení. Bezprostředně po ozáření a dozimetrické kontrole byly vzorky přesunuty do spektroskopické laboratoře, kde bylo zahájeno měření.



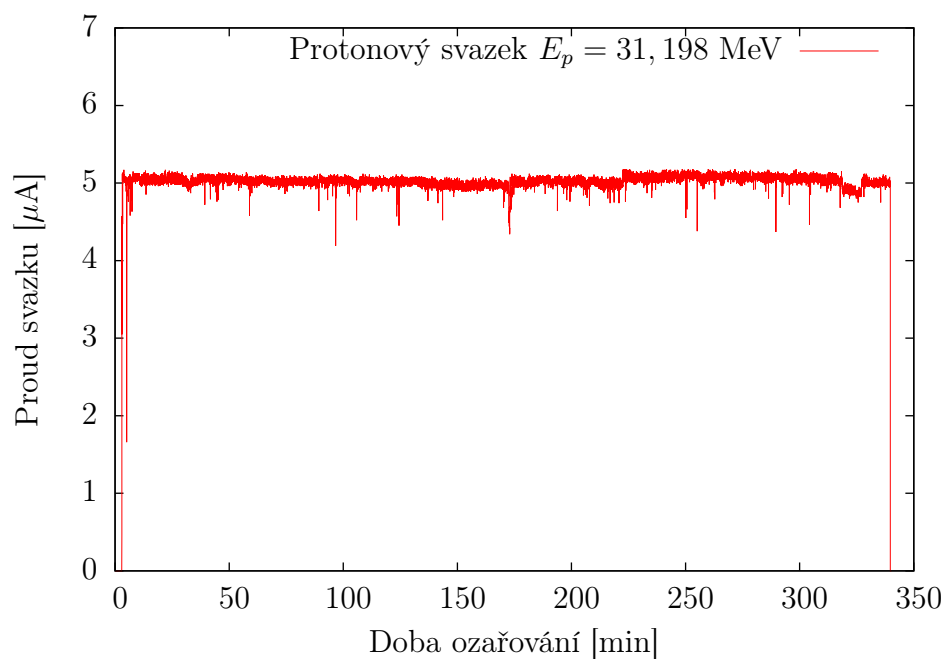
Obrázek 6.2: Výkres neutronového zdroje [42] a fotografie sestaveného zdroje [13].

Spektra neutronového zdroje jsou získávána za pomoci MCNPX simulace. Takto získaná spektra byla porovnána se spektry ze zdroje Y. Uwamina v Japonsku, jehož je zdroj v ÚJF AV ČR kopíí. Mimo to byla spektra porovnána s měřeními metodou time of flight, která na neutronovém zdroji proběhla a dále probíhají. Takto bylo dosaženo pouze 10% nejistoty simulovaného spektra. Příklad takového spektra je na obrázku 3.2. Vizualizace modelu neutronového zdroje včetně vzorků a spektra pro vzorky YN a YO jsou v příloze C.

Pro určení spektra je třeba znát parametry protonového svazku. Tyto parametry jsou nutné i pro určení korekce nestability svazku, viz. část 4.3. Tři ozařování vykazovala dobrou stabilitu, díky čemuž lze tuto korekci dobře zanedbat. Pouze v případě ozařování s $E_p = 35,958$ MeV je nutné tuto korekci (4.5) zahrnout. Na obrázcích 6.4 resp. 6.3 jsou zobrazeny průběhy svazků s největší resp. nejmenší stabilitou.



Obrázek 6.3: Průběh intenzity svazku při ozařování s $E_p = 35,958$ MeV.



Obrázek 6.4: Průběh intenzity svazku při ozařování s $E_p = 31,198$ MeV.

6.2 Spektrometrická aparatura

Po ukončení ozařování byly vzorky přeneseny do spektroskopické laboratoře. Zde probíhalo měření na dvou HPGe detektorech. V případě obou detektorů byl každý vzorek měřen opakovaně v různých vzdálenostech od detektoru. Tímto postupem je možné získat dostatečné množství dat pro minimalizaci statistické chyby. Díky měření ve více geometriích také minimalizovat systematické chyby. V předchozích měřeních [1] se projevoval rozdíl v detekovaném počtu jader v závislosti na orientaci vzorku vůči detektoru, viz. obrázek 6.6. Proto i v případě tohoto experimentu se při jednotlivých měřeních měnila orientace vzorků vůči detektoru. Zmíněný efekt však nebyl v případě současných měření pozorován tak výrazně, viz. obrázky 6.7 a 6.8. Díky změnám orientace při měřeních byla tato systematická chyba eliminována.

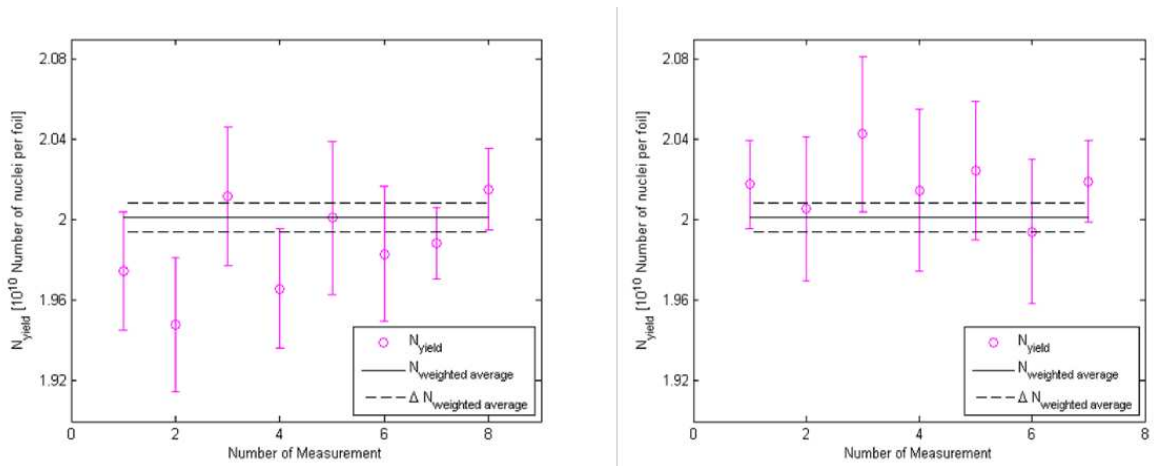
V této práci jsou uvedeny pouze výsledky z detektoru Canberra GC3018. Je to z důvodu, že u druhého detektoru nebylo vzhledem k dalším měřením možné dokončit energetickou kalibraci. Na obrázku 6.5 je zobrazen použitý detektor se stíněním. Parametry spektrometru jsou uvedeny v tabulce 6.4.



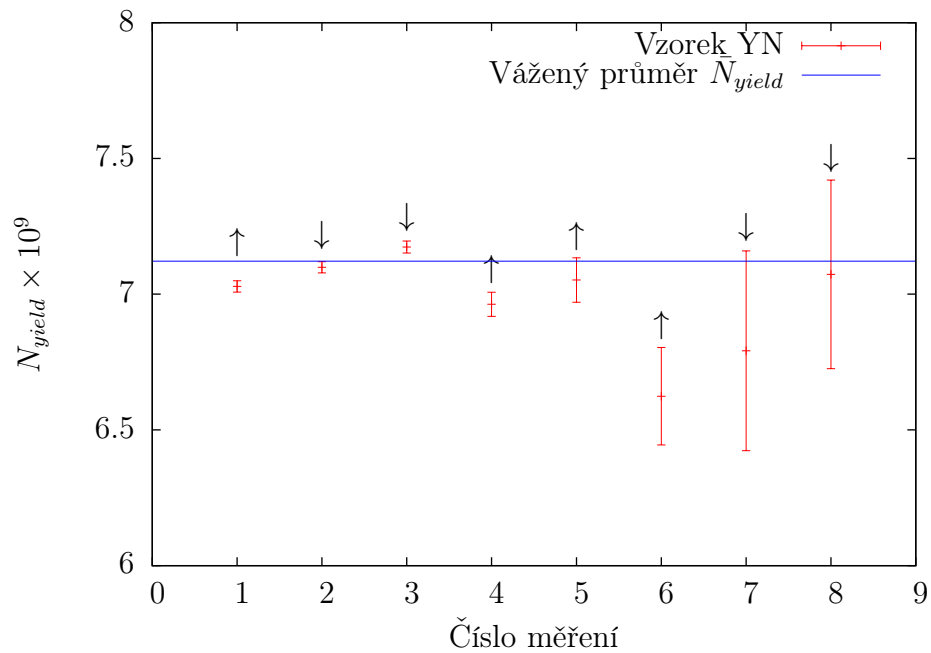
Obrázek 6.5: HPGe detektor použitý pro měření

Detektor	Canberra GC3018	Ortec GMX20190
Relativní účinnost [%]	35	20
Rozlišení FWHM/ E_γ [keV/keV]	0,875/122 & 1,8/1300	0,650/5,9 & 1,9/1330
Bias [V]	+4500	-3000
Počet kanálů	8192	8192

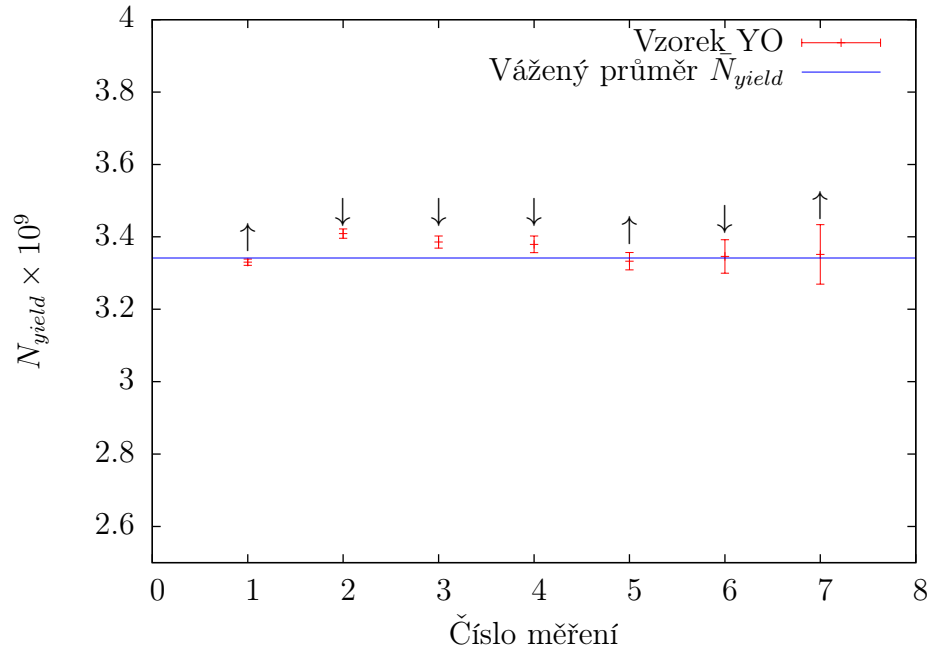
Tabulka 6.4: Parametry použitých γ -spektrometrů.



Obrázek 6.6: Rozdíly v určeném výtěžku v závislosti na orientaci vzorku vůči detektoru [1]. Levý a pravý obrázek znázorňují opačné orientace.



Obrázek 6.7: Ukázka rozdílů v určeném výtěžku v závislosti na orientaci pro vzorek YN. Šipky určují orientaci vzorku vůči detektoru: ↑-ozařovanou stranou od detektoru, ↓-ozařovanou stranou k detektoru.

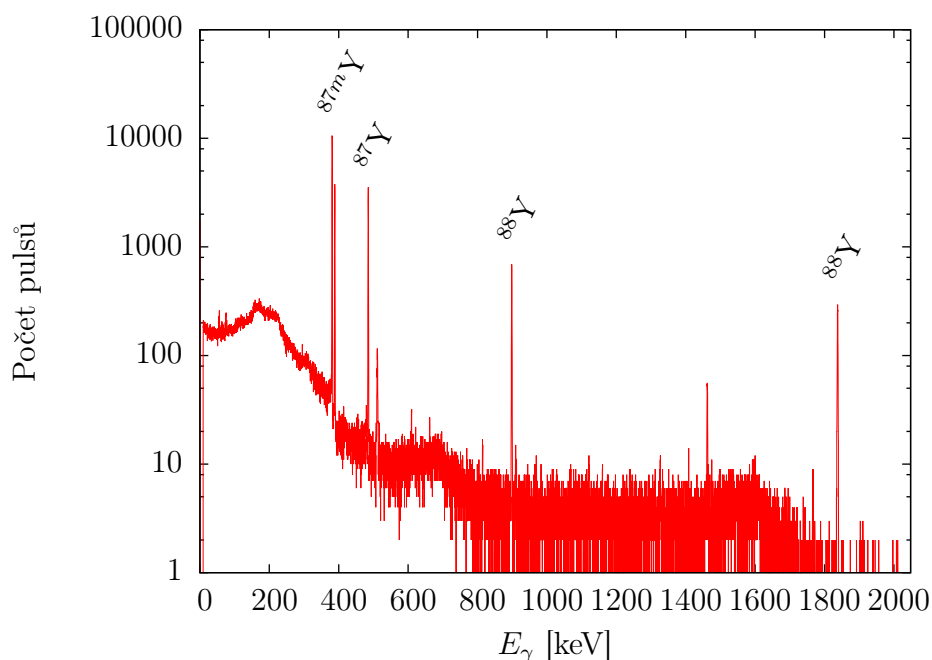


Obrázek 6.8: Ukázka rozdílů v určeném výtěžku v závislosti na orientaci pro vzorek YO. Šipky určují orientaci vzorku vůči detektoru: ↑-ozařovanou stranou od detektoru, ↓-ozařovanou stranou k detektoru.

7. Zpracování dat

7.1 Experimentální data

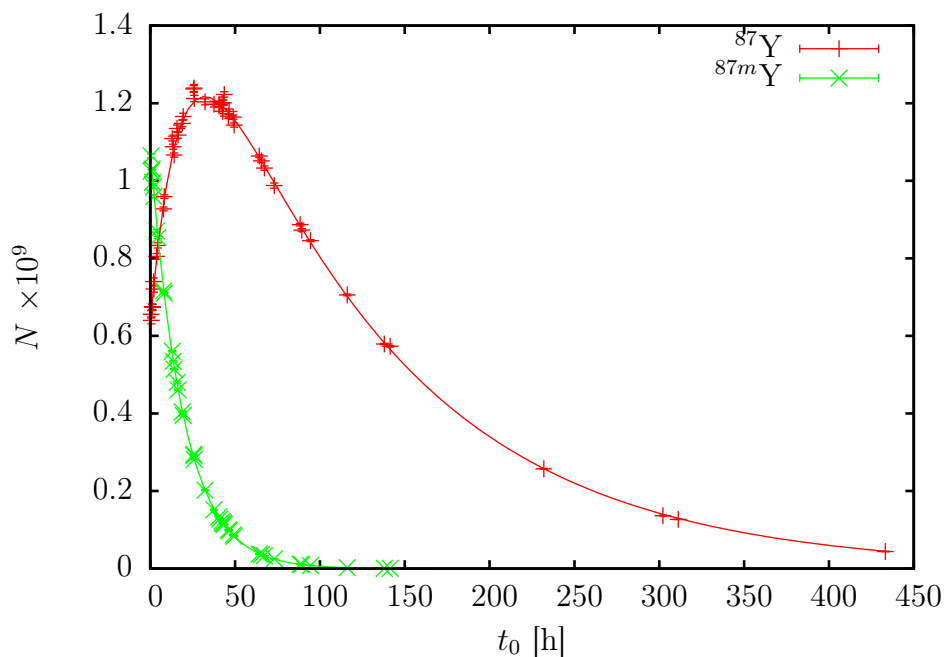
Naměřená spektra byla nabírána pomocí programu GENIE-2000 od firmy Canberra. Tento spektroskopický software je určen nejen pro nabírání spekter, ale také pro jejich analýzu. Tuto analýzu je možné provádět ručně píky po píky a nebo automaticky, kdy program píky vyhledá, nafituje a vygeneruje výstupní soubor se všemi potřebnými údaji pro další zpracování. Vzhledem k jednoduchosti spekter z yttria a velkému množství měření bylo využito možnosti automatického zpracování. S využitím programu používaného skupinou zabývající se neutronovou aktivační analýzou bylo toto zpracování možné provést dávkově. Příklad naměřeného spektra je na obrázku 7.1.



Obrázek 7.1: Ukázka naměřeného spektra ze vzorku YN3 v pozici 10. Energie a intenzity přechodů jsou uvedeny v tabulce 3.1.

Získaná data byla zpracována v souladu s metodikou uvedenou v části 4. Zejména s využitím rovnic (4.17), (4.22), (4.24) a (4.25). K tomu bylo nutné nejprve určit účinnostní kalibraci detektoru pro všechny pozice. Použité zářiče a grafická zobrazení účinnostních křivek jsou uvedeny v částech 4.4.1 a 4.4.2. Experimentální body pro určení píkové účinnosti byly získány pomocí programu CoEf, který iterativně zahrnuje i koincidenční efekty. Tyto efekty jsou významné hlavně v případě ^{152}Eu a ^{133}Ba . Více o použití tohoto programu je uvedeno v příloze D.

Na obrázku 7.2 jsou společně s naměřenými hodnotami zobrazeny rozpadové křivky z rozpadu jader ^{87}Y a ^{87m}Y . Z tohoto obrázku je zřejmá nutnost použití rovnic (4.22) a (4.24) zohledňujících rozpad ^{87m}Y na ^{87}Y .



Obrázek 7.2: Naměřená data z rozpadů ^{87}Y a ^{87m}Y . Spojité čáry vyjadřují teoretické závislosti.

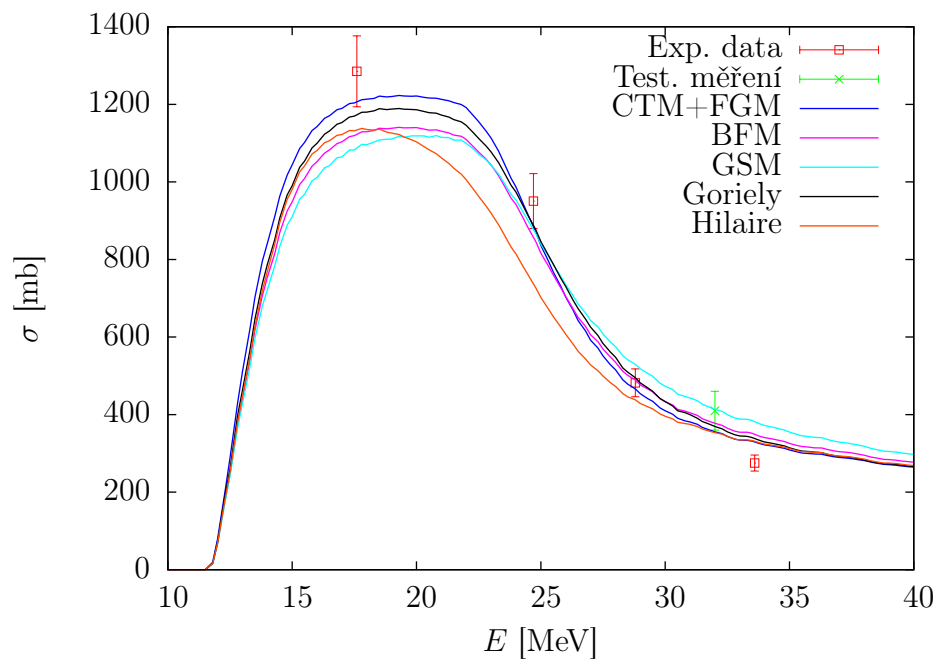
7.2 Porovnání experimentálních a simulovaných dat

Pomocí programu TALYS byly nasimulovány účinné průřezy pro zkoumané reakce. Při simulacích byly použity různé modely hustoty hladin. V této části budou tyto simulace porovnány s naměřenými hodnotami účinných průřezů. Použité hustoty hladin jsou popsány v části 5.2.1. Pro porovnání je uvedeno také testovací měření [1], které mělo za cíl ověřit praktickou proveditelnost experimentu s využitím neutronového zdroje ÚJF AV ČR.

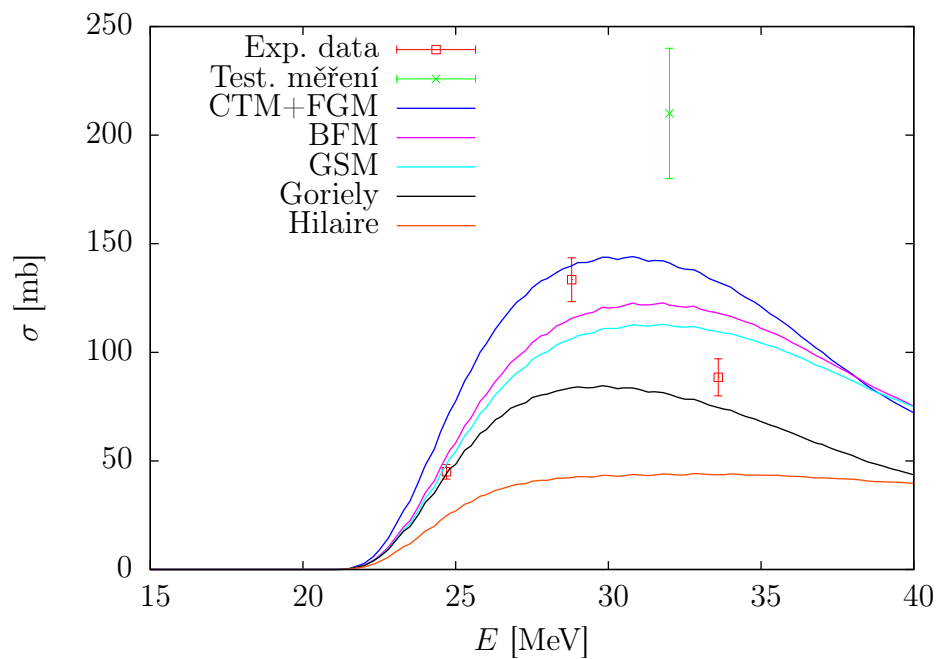
Na obrázcích 7.3, 7.4, 7.5 a 7.6 jsou zobrazeny experimentální hodnoty účinných průřezů $^{89}\text{Y}(n,2n)^{88}\text{Y}$ a $^{89}\text{Y}(n,3n)^{87}\text{Y}$ reakcí. Tyto hodnoty byly získány jako vážený průměr jednotlivých hodnot získaných ze vzorků YN a YO. Z obrázku 7.3 je patrná velice dobrá shoda experimentu se simulací i s testovacím měřením [1]. V případě 7.4 a 7.5 je situace jiná. Data ze současného experimentu s daty z testovacího měření v rámci chyb shodují, avšak je zde vidět určitý posuv. V obou případech se však jedná o předběžná data, která budou dále analyzována. Vzhledem k dobré shodě v případě reakce $^{89}\text{Y}(n,2n)^{88}\text{Y}$ s modelem CTF+FGM lze očekávat, že i účinné průřezy reakcí $^{89}\text{Y}(n,3n)^{87}\text{Y}$ a $^{89}\text{Y}(n,3n)^{87m}\text{Y}$ by měly tomuto modelu odpovídat.

Porovnání dat získaných v rámci této práce a dat z databáze EXFOR pro reakce $^{89}\text{Y}(n,2n)^{88}\text{Y}$ a $^{89}\text{Y}(n,3n)^{87}\text{Y}$ je uvedené na obrázcích 7.7 a 7.8. Pro porov-

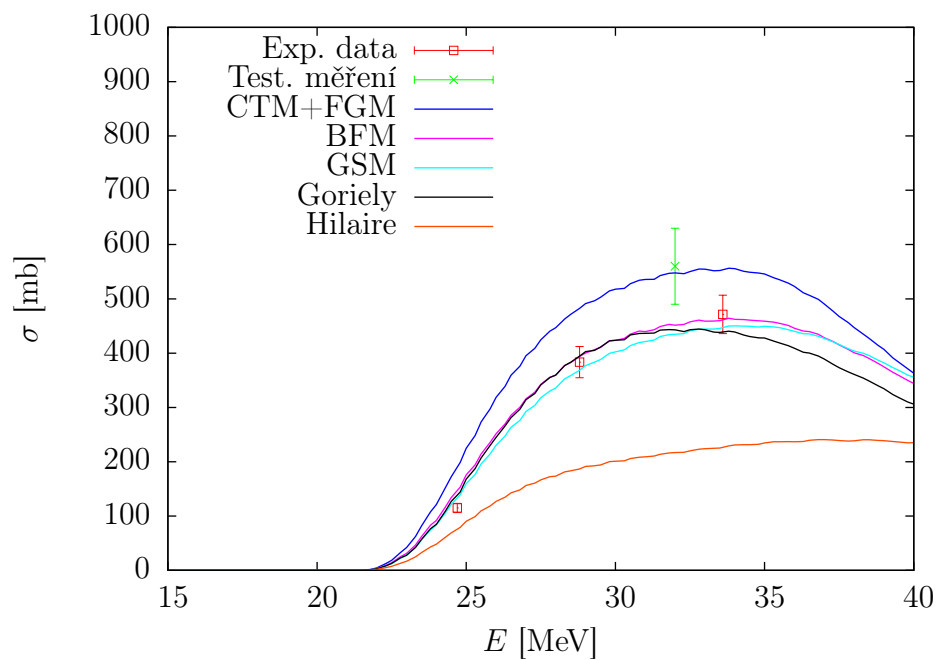
nání jsou zde zobrazeny i simulace účinných průřezů s modelem hustoty hladin CTM+FGM.



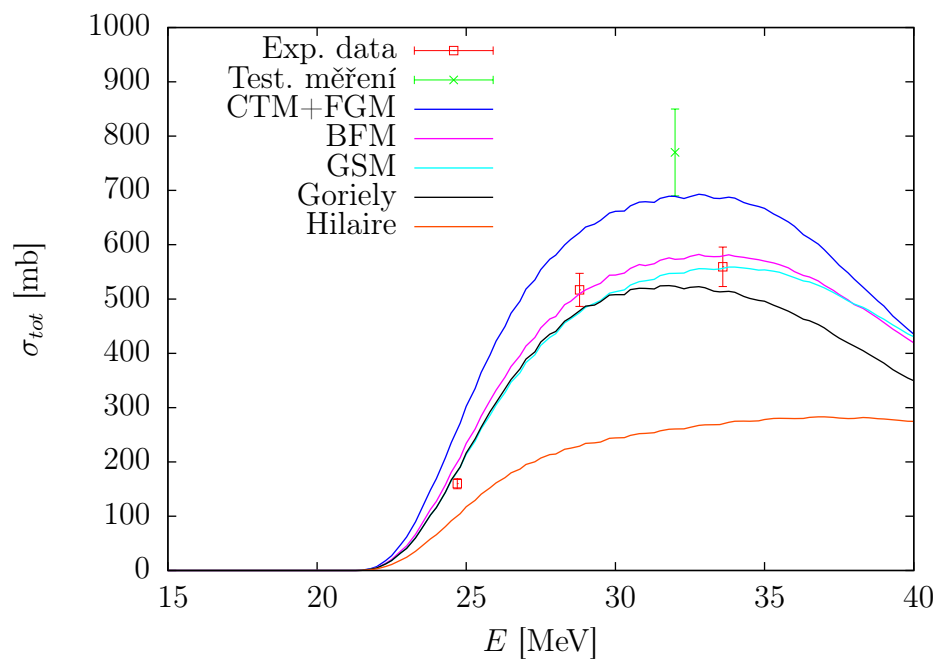
Obrázek 7.3: Účinný průřez reakce $^{89}\text{Y}(n,2n)^{88}\text{Y}$.



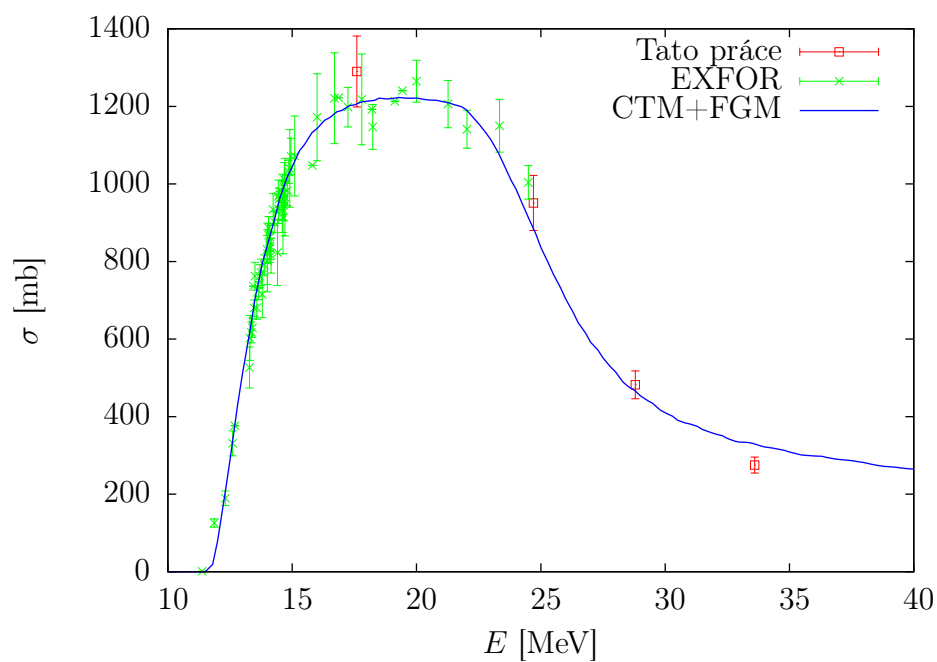
Obrázek 7.4: Účinný průřez reakce $^{89}\text{Y}(n,3n)^{87}\text{Y}$.



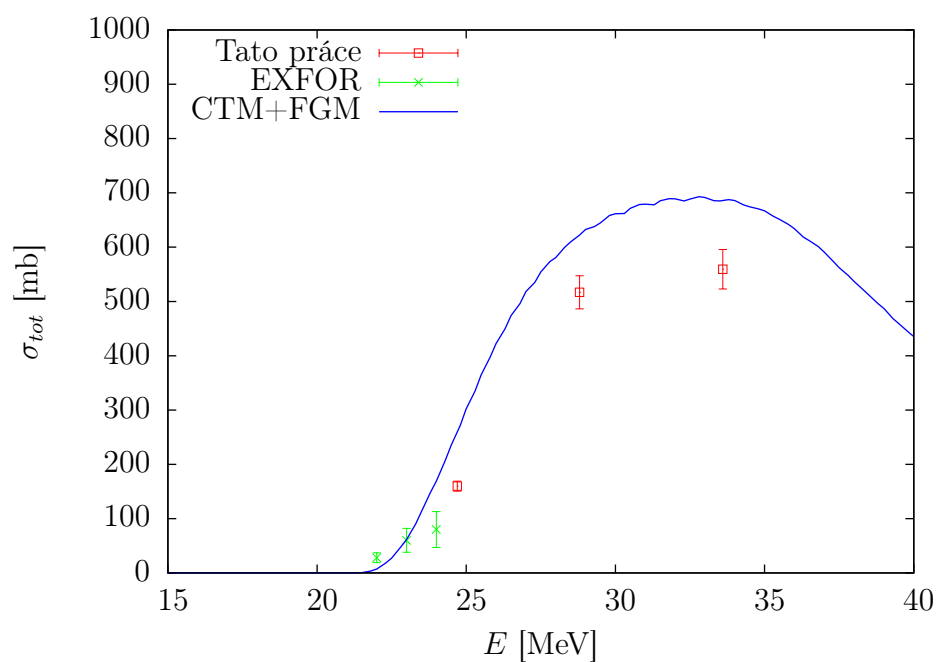
Obrázek 7.5: Účinný průřez reakce $^{89}\text{Y}(n,3n)^{87m}\text{Y}$.



Obrázek 7.6: Totální účinný průřez reakce $^{89}\text{Y}(n,3n)^{87}\text{Y}$.



Obrázek 7.7: Účinný průřez reakce $^{89}\text{Y}(n,2n)^{88}\text{Y}$. Porovnání experimentálních dat získaných v rámci této práce a dat z databáze EXFOR.



Obrázek 7.8: Totální účinný průřez reakce $^{89}\text{Y}(n,3n)^{87}\text{Y}$. Porovnání experimentálních dat získaných v rámci této práce a dat z databáze EXFOR.

Závěr

Pro studium neutronového pole se úspěšně využívají aktivační detektory. Mezi vhodné monoizotopické materiály pro ně patří i yttrium. U nich však pro vyšší energie chybí experimentální data o pravděpodobnosti neutronových reakcí. Proto byl pro získání účinných průřezů prahových reakcí $^{89}\text{Y}(n,2n)^{88}\text{Y}$ a $^{89}\text{Y}(n,3n)^{87}\text{Y}$ proveden experiment s využitím neutronového zdroje ÚJF AV ČR. Účinné průřezy byly určeny pomocí aktivačních detektorů. Naměřená data z těchto detektorů byla zpracována standardní metodikou γ -spektrometrie.

Při měření a zpracování musela být řešena řada metodických problémů. V části 4.5 je uveden základní popis kaskádních $\gamma - \gamma$ koincencí a jejich vliv na měření. Detailněji rozebraná metodika je v příloze B. Za účelem korekce vlivu koincidenčních efektů byl používán *add-in* pro program Microsoft Excel. Autorem tohoto add-inu je M. Majerle. Bohužel databáze, ze které byla čerpána data přestala být aktualizována a udržována. Z tohoto důvodu byl v rámci této práce pro korekce vlivu koincidenčních efektů vyvinut program CoEf. Další funkcí programu je výpočet účinnosti se zohledněním koincidenčních efektů. Použití programu je popsáno v příloze D. Předpokládá se jeho využívání při dalších experimentech.

S ohledem na fakt, že měření bylo prováděno hlavně na úplně novém detektoru Canberra GC3018, bylo třeba vyřešit některé související problémy. Mezi tyto problémy patřila hlavně energetická kalibrace a korekce účinnosti pro plošné zářiče.

Energetická kalibrace je popsána v části 4.4 a byla provedena se standardní sadou kalibračních zářičů. Seznam těchto zářičů pro píkovou i totální účinnost je také uveden v 4.4. Píková účinnost byla přímo určena již se započtením kaskádních koincidenčních efektů pomocí výše zmíněného programu CoEf. Data společně s proložením a znázorněním věrohodnosti fitu jsou ukázána na obrázku 4.3.

Pro určení korekce pro plošné zářiče byl vytvořen pro původní detektor vstupní soubor pro MCNPX. Autorem tohoto skriptu je M. Majerle. Takto vytvořený vstupní soubor byl však pro nový detektor nepoužitelný. Proto bylo nutné vytvořit model nového detektoru. Tento model byl vytvořen na základě katalogových informací, produktového listu detektoru a informací z prezentace [29]. V této prezentaci bylo uvažováno o určování účinnosti detektoru za pomoci MCNPX simulace. Testovaný detektor byl téměř totožný s detektorem GC3018, proto tato prezentace mohla posloužit jako zdroj cenných dat o vnitřní skladbě detektoru.

Z hlediska neurčitostí má největší příspěvek nejistota určení neutronového spektra, která dosahuje 10%. Dalším zdrojem je nejistota kalibrace detektoru, která byla určena na 5%. Statistické a další nepřesnosti jsou na úrovni $\sim 1\%$.

Experimentální hodnoty účinných průřezů jsou uvedeny v tabulce 7.1. V této energetické oblasti se jedná o nová data, která dosud nebyla měřena. Stejně tak dosud nebyly měřeny účinné průřezy zvláště pro reakce $^{89}\text{Y}(n,3n)^{87}\text{Y}$ a $^{89}\text{Y}(n,3n)^{87m}\text{Y}$.

Získané účinné průřezy pro reakci $^{89}\text{Y}(n,2n)^{88}\text{Y}$ dobře korespondují a navažují na experimentální účinné průřezy v databázi EXFOR, viz. obrázek 7.7. V případě reakce $^{89}\text{Y}(n,3n)^{87}\text{Y}$ jsou v databázi pouze tři hodnoty pro energii těsně nad prahovou energií reakce. Ačkoliv se jedná o předběžná data, tak účinné průřezy získané v této práci dobře korespondují s hodnotami z EXFOR, viz. obrázek

E_n [MeV]	Reakce			
	$^{89}\text{Y}(n,2n)^{88}\text{Y}$	$^{89}\text{Y}(n,3n)^{87}\text{Y}$	$^{89}\text{Y}(n,3n)^{87m}\text{Y}$	$^{89}\text{Y}(n,3n)^{87}\text{Y}$ tot
$17,6 \pm 1,1$	1290 ± 90	×	×	×
$24,7 \pm 0,8$	950 ± 70	45 ± 4	115 ± 9	160 ± 9
$28,8 \pm 0,7$	480 ± 40	133 ± 10	383 ± 29	517 ± 30
$33,6 \pm 0,6$	275 ± 21	113 ± 10	470 ± 40	580 ± 40

Tabulka 7.1: Získané hodnoty účinných průřezů. Hodnoty jsou uvedeny v mb.

7.8. Se simulací se shodují pouze účinné průřezy reakce $^{89}\text{Y}(n,2n)^{88}\text{Y}$. Pro reakci $^{89}\text{Y}(n,3n)^{87}\text{Y}$ mohou být modely vzhledem k málo známému mechanismu reakce a nedostatku experimentálních dat nespolehlivé, viz. obrázky 7.3, 7.4, 7.5 a 7.6. Tyto obrázky ukazují také výsledky z testovacího měření [1], které sloužilo k ověření použitelnosti metody popsané v této práci pro určení zkoumaných účinných průřezů.

Analýza experimentálních dat bude probíhat i nadále. Měření popsané v této práci a testovací měření se v rámci chyb shodují. Určitý posuv mezi testovacím měřením a současným bude předmětem další analýzy. Možným zdrojem nepřesností může být použitá metoda odečtu pozadí, případně rozdílné metody určení neutronového spektra.

Cílem další analýzy bude co možná nejlepší popis účinných průřezů a zlepšení eliminace systematických chyb. Za tímto účelem již proběhlo další ozařování s využitím neutronového zdroje ÚJF AV ČR.

Seznam použité literatury

- [1] GEIER, B. Experimental determination of neutron cross sections of yttrium by activation method. Bachelor Thesis, Graz University of Technology, 2011.
- [2] *Pebble Bed Advanced High Temperature Reactor* [online]. Dostupné z: http://pb-ahtr.nuc.berkeley.edu/technology.html#T_Fuel.
- [3] RICHARD, L. Application of Accelerators in Nuclear Waste Management. In *Beam Dynamics Newsletter No. 49*. International Committee for Future Accelerators, 2009.
- [4] KLAPISCH, R. Accelerator driven systems: an application of proton accelerators to nuclear power industry. *Europhysics News*. 2000, 31, 6, s. 26–28.
- [5] BAUER, G. Physics and technology of spallation neutron sources. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. 2001, 463, 3, s. 505–543.
- [6] RUSSELL, G. J. Spallation physics-an overview. In *Proceedings of ICANS-XI*, 1990.
- [7] RUSSELL, G. J. Spallation physics-an overview. In *KEK-Report Vol. 90-25*, 1991.
- [8] ZEMAN, J. *Reaktorová fyzika I*. ČVUT, vyd. 2., přeprac. edition, 1999.
- [9] *Accelerator-Driven Transmutation Experimental Facility - Japan Proton Accelerator Research Complex* [online]. 2011. Dostupné z: <http://j-parc.jp/Transmutation/en/index.html>.
- [10] WESTMEIER, W. et al. Transmutation experiments on ^{129}I , ^{139}La and ^{237}Np using the Nuclotron accelerator. *Radiochimica Acta*. 2005, 93, 2-2005, s. 65–73.
- [11] ADAM, J. et al. Transmutation studies with GAMMA-2 setup using relativistic proton beams of the JINR Nuclotron. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. 2006, 562, 2, s. 741–742.
- [12] SVOBODA, O. Stanovení rozložení neutronů v sestavě složené z olověného terče a uranového blanketu postavené na svazku protonů s energií 0,7 GeV. Diplomová práce, České vysoké učení technické v Praze, 2006.
- [13] SVOBODA, O. *Experimental Study of Neutron Production and Transport for ADTT*. Dissertation Thesis, Czech Technical University in Prague, 2011.
- [14] KRÁSA, A. *Neutron Emission in Spallation Reactions of 0.7 – 2.0 GeV Protons on Thick, Lead Target Surrounded by Uranium Blanket*. Dissertation Thesis, Czech Technical University in Prague, 2008.

- [15] MAJERLE, M. et al. Monte Carlo studies of the Energy plus Transmutation system. *JINR Preprint*. 2007.
- [16] CHILAP, V. *Study of deep subcritical electronuclear systems and feasibility of their application for energy production and radioactive waste transmutation*. Presentace z E&T Workshop Belgrade, 2010.
- [17] SUCHOPÁR, M. *Simulations of new uranium set-up Kvinta used on Nuclotron accelerator at Dubna*. Presentace z AER Working Group F Liblice, 2011.
- [18] *EFNUDAT* [online]. 2007. Dostupné z: <http://www.efnudat.eu/>.
- [19] PROKOFIEV, A. V. et al. Monte Carlo studies of the Energy plus Transmutation system. *Radiation Protection Dosimetry*. 2007, , 126, s. 18–22.
- [20] VRZALOVÁ, J. et al. Cross-section measurements of neutron threshold reactions in various materials. *Physics Procedia*. 2012, 31, s. 126–131.
- [21] *ERINDA* [online]. 2011. Dostupné z: <http://www.erinda.org>.
- [22] *ENDF* [online]. 2007. Dostupné z: <http://www-nds.iaea.org/exfor/endl.htm>.
- [23] *EXFOR* [online]. 2013. Dostupné z: <http://www-nds.iaea.org/exfor/exfor.htm>.
- [24] GILMORE, G. *Practical gamma-ray spectrometry*. Wiley, 2nd ed. edition, c2008.
- [25] CORTE, F. D. *The K_0 -Standardization Method: A Move to the Optimization of Neutron Activation Analysis*. Gent: Institut voor Nucleaire Wetenschappen, Laboratorium voor Analytische Scheikunde, 1986.
- [26] MAJERLE, M. *Monte Carlo methods in spallation experiments*. Dissertation Thesis, Czech Technical University in Prague, 2009.
- [27] SLÁMA, O. Gamma spektroskopie. XVII. *Soutěž vědeckých a technických projektů středoškolské mládeže - AMAVET*. 2010.
- [28] PEETERMANS, S. Neutron Activation Analysis. *Report from the Trainingship at the Nuclear Physics Institute at Řež*. 2009.
- [29] DRYAK, P. – KOVÁR, P. *Experimental and Monte Carlo determination of Gamma Spectrometry Efficiency*. Czech Metrology Institute.
- [30] HNATOWICZ, V. *Handbook of Nuclear Data for Neutron Activation Analysis*. 1. Prague: Czechoslovak Atomic Energy Commission - Nuclear Information Centre, 1986.
- [31] X-6, G. MCNPX 2.3.0 - Monte Carlo N-Particle Transport Code System for Multiparticle and high Energy Application, 2002.
- [32] KONING, A. J. – HIALIRE, S. – DUIJVESTIJN, M. C. TALYS-1.0. In BERSILLON, O. et al. (Ed.) *Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, April 22 to April 27, 2007, Nice, France*, s. 211–214. EDP Sciences, 2008.

- [33] KONING, A. – HILAIRE, S. – GORIELY, S. *Talys-1.4: User Manual*, 2011.
- [34] ERICSON, T. *Advances in Physics*. 1960, 9, s. 425.
- [35] GILBERT, A. – CAMERON, A. G. W. A COMPOSITE NUCLEAR-LEVEL DENSITY FORMULA WITH SHELL CORRECTIONS. *Canadian Journal of Physics*. 1965, 43, 8, s. 1446–1496.
- [36] DILG, W. et al. Level density parameters for the back-shifted fermi gas model in the mass range $40 < A < 250$. *Nuclear Physics A*. 1973, 217, 2, s. 269–298.
- [37] GROSSJEAN, M. – FELDMEIERS, H. Level density of a Fermi gas with pairing interactions. *Nuclear Physics A*. 1985, 444, 1, s. 113–132.
- [38] DEMETRIOU, P. – GORIELY, S. Microscopic nuclear level densities for practical applications. *Nuclear Physics A*. 2001, 695, 1-4, s. 95–108.
- [39] IGNATYUK, A. V. – ISTEKOV, K. K. – SMIRENKIN, G. N. Collective effects in level density, and the probability of fission. *Soviet Journal of Nuclear Physics*. 1979, 29, s. 450–454.
- [40] IGNATYUK, A. et al. Density of discrete levels in Sn116. *Physical Review C*. 1993, 47, 4, s. 1504–1513.
- [41] UWAMINO, Y. et al. High-energy p-Li neutron field for activation experiment. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. 1997, 389, 3, s. 463–473.
- [42] BÉM, P. et al. The NPI cyclotron-based fast neutron facility. In *International Conference on Nuclear Data for Science and Technology 2007*, 2007.

Seznam tabulek

3.1	Zkoumané reakce spolu s prahovými energiemi a použitými γ -přechody.	18
5.1	Modelové kombinace použitelné v programu TALYS [33]	33
6.1	Parametry jednotlivých ozařování.	37
6.2	Vzorky homogenního yttria použité pro experiment	38
6.3	Vzorky lisovaného yttria použité pro experiment	38
6.4	Parametry použitých γ -spektrometrů.	40
7.1	Získané hodnoty účinných průřezů. Hodnoty jsou uvedeny v mb. .	49

Seznam použitých zkratk

ABC - Accelerator Based Conversion Na urychlovači založená konverze
ADEP - Accelerator Driven Energy Production - Urychlovačem řízená produkce energie
ADS - Accelerator Driven System - Urychlovačem řízený systém
ADTS - Accelerator Driven Transmutation System - Urychlovačem řízený transmutační systém
APT - Accelerator Production of Tritium - Urychlovačem produkované tritium
ATW - Accelerator Transmutation of Waste - Transmutace odpadu urychlovačem
AV ČR - Akademie věd České republiky
BFM - Back Shifted Fermi Gas Model - Model Fermiho plynu se zpětným posuvem
CERN - Conseil Européen pour la Recherche - Evropská organizace pro jaderný výzkum
CTM - Constant Temperature Model - Model s konstantní teplotou
E&T RAW - Energy and Transmutation of Radioactive Waste
E+T - Sestava Energy plus Transmutation
EFNUDAT - European Facilities for Nuclear Data Measurement - Evropská zařízení pro měření jaderných dat
ENDF - Evaluated Nuclear Data File - Soubor vyhodnocených jaderných dat
ERINDA - European Research Infrastructures for Nuclear Data Applications - Evropské výzkumné infrastruktury pro aplikace jaderných dat
ESS - European Spallation Source - Evropský spalační zdroj
EUROPART - European Research Programme for the Partitioning of Minor Actinides - Evropský výzkumný program pro štěpení minoritních aktinidů
EUROTRANS - European Research Programme for Transmutation of High Level Nuclear Waste in a Accelerator Driven System - Evropský výzkumný program pro transmutaci vysoce aktivního jaderného odpadu v urychlovačem řízeném systému
EXFOR - Experimental Nuclear Reaction Data - Experimentální data jaderných reakcí
FGM - Fermi Gas Model - Model Fermiho plynu
FP5 - Fifth Framework Programme - Pátý rámcový program
FP6 - Sixth Framework Programme - Šestý rámcový program
FP7 - Seventh Framework Programme - Sedmý rámcový program
GSM - Generalised Superfluid Model - Zobecněný supratekutý model
HPGe - High-Purity Germanium - Vysoce čisté germanium
MCNPX - Monte-Carlo N-Particle extended
MEGAPIE - Megawatt Spallation Target Pilot Experiment - Pilotní experiment megawatového spalačního terče
MOX - Mixed oxide fuel - Palivo ze směsi oxidů uranu a plutonia
MTA - Materials Testing Accelerator
MYRRHA - Multi-purpose hybrid research reactor for high-tech applications - Víceúčelový hybridní výzkumný reaktor pro high-tech aplikace
PB-AHTR - Pebble Bed Advanced High Temperature Reactor - Pebble bed pokročilý vysokoteplotní reaktor

PSI - Paul Scherrer Institut

SINQ - Swiss Spallation Neutron Source - Švýcarský spalační zdroj neutronů

SNS - Spallation Neutron Source Oak Ridge - Spalační zdroj neutronů v Oak Ridge, USA

SÚJV - Spojený ústav jaderných výzkumů

TEF - Transmutation Experimental Facility J-PARC - Transmutační experimentální zařízení v J-PARC

TEF-P - Transmutation Physics Experimental Facility - Experimentální zařízení transmutační fyziky

TEF-T - ADS Target Test Facility - Testovací zařízení terče pro ADS

ÚJF - Ústav jaderné fyziky

Přílohy

A. Odvození korekčních koeficientů pro započtení rozpadů jader

A.1 Odvození korekčního koeficientu C_{irr} pro jednoduchý bez izomerní produkt

Výpočet diferenciální rovnice (A.4) a výsledek (A.6) lze využít i jako odvození koeficientu (4.4). Stejně jako výše, i zde platí, že $N_0 = N(t_{irr})$. Vyjádříme tedy (A.6) jako

$$N_0 = \frac{P}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_{irr}}). \quad (\text{A.1})$$

Vyjádříme poměr P/N_0 a celou rovnici vynásobíme t_{irr} . Výsledkem už je hledaný koeficient C_{irr}

$$C_{irr} = \frac{P \cdot t_{irr}}{N_0} = \frac{\lambda \cdot t_{irr}}{1 - e^{-\lambda t_{irr}}}. \quad (\text{A.2})$$

A.2 Korekční koeficienty rozpadů pro ^{87}Y

A.2.1 Rozpad ^{87m}Y během ozařování

Pro určení korekčního koeficientu (4.24) vyjdeme z rovnice

$$dN_g(t) = P_g dt - \lambda_g N_g(t) dt + \lambda_m N_m(t) dt. \quad (\text{A.3})$$

K vyřešení této rovnice je třeba znát funkci $N_m(t)$.

Pro $N_m(t)$ však platí rovnice

$$dN_m(t) = P_m dt - \lambda_m N_m(t) dt, \quad (\text{A.4})$$

která je analogická s rovnicí (4.3). Tuto rovnici lze přepsat do tvaru

$$dt = \frac{dN_m(t)}{P_m - \lambda_m N_m(t)}. \quad (\text{A.5})$$

Což je již diferenciální rovnice se separovanými proměnnými. Řešením této rovnice je

$$N_m(t) = \frac{P_m}{\lambda_m} (1 - e^{-\lambda_m t}). \quad (\text{A.6})$$

S výsledkem (A.6) lze rovnici (A.3) přepsat do tvaru

$$dN_g(t) = [P_g - \lambda_g N_g(t) + P_m (1 - e^{-\lambda_m t})] dt. \quad (\text{A.7})$$

Tento tvar nadále upravíme

$$\frac{dN_g(t)}{dt} = P_g - \lambda_g N_g(t) + P_m (1 - e^{-\lambda_m t}) \quad (\text{A.8})$$

a přepíšeme do konečné podoby

$$\frac{dN_g(t)}{dt} + \lambda_g N_g(t) = P_g + P_m (1 - e^{-\lambda_m t}). \quad (\text{A.9})$$

Diferenciální rovnice (A.9) má tvar

$$y' + a(x)y = b(x).$$

Řešením této rovnice je

$$y(x) = \exp(-A(x)) [B(x) + c], c \in \mathbb{R},$$

kde

$$A(x) = \int a(x) dt, B(x) = \int b(x) e^{A(x)} dt.$$

V našem případě $x \rightarrow t$,

$$a(t) = \lambda_g$$

a

$$b(t) = P_g + P_m (1 - e^{-\lambda_m t}).$$

Řešením (A.9) a tedy i (A.3) je vztah

$$N_g(t) = e^{-\lambda_g t} \left[\frac{P_g + P_m}{\lambda_g} e^{\lambda_g t} + P_m \frac{e^{-(\lambda_m - \lambda_g)}}{\lambda_m - \lambda_g} + c \right] = \frac{P_g + P_m}{\lambda_g} + \frac{P_m e^{-\lambda_m t}}{\lambda_m - \lambda_g} + c e^{-\lambda_g t}. \quad (\text{A.10})$$

Hodnotu c získáme z okrajové podmínky $N_g(0) = 0$. Po jednoduchém výpočtu získáme

$$c = -\frac{P_g(\lambda_m - \lambda_g) + \lambda_m P_m}{\lambda_g(\lambda_m - \lambda_g)}. \quad (\text{A.11})$$

Naším cílem je získat koeficient $C_{irr,g} = \frac{P_g \cdot t_{irr}}{N_{g0}}$, kde $N_{g0} = N_g(t_{irr})$. Proto po dosazení (A.11) do (A.10) vyjádříme (A.10) v $t = t_{irr}$. Po jednoduchých algebraických úpravách a vynásobením obou stran rovnice t_{irr} již získáme koeficient $C_{irr,g}$ ve tvaru (4.24).

$$C_{irr,g} = \frac{\lambda_g \cdot t_{irr}}{1 - e^{-\lambda_g t_{irr}}} - \frac{N_{yield,m}}{N_{g0} \cdot (1 - e^{-\lambda_g t_{irr}})} \left(1 - \frac{\lambda_m \cdot e^{-\lambda_g t_{irr}} - \lambda_g \cdot e^{-\lambda_m t_{irr}}}{\lambda_m - \lambda_g} \right) \quad (\text{A.12})$$

$$N_{yield,m} = P_m \cdot t_{irr}$$

A.2.2 Rozpad ^{87m}Y během chladnutí a měření

Na rozdíl od předchozího případu nedochází nyní k produkci izomerního stavu a základní stav je produkován pouze rozpadem stavu izomerního. Odpovídající diferenciální rovnice má tedy tvar

$$dN_g(t) = -\lambda_g N_g(t) dt + \lambda_m N_m(t) dt. \quad (\text{A.13})$$

Pro $N_m(t)$ platí diferenciální rovnice

$$dN_m(t) = -\lambda_m N_m(t) dt \quad (\text{A.14})$$

a jejím řešením je

$$N_m(t) = N_{m0}e^{-\lambda_m t}, \quad (\text{A.15})$$

kde $N_{m0} = N_m(t_{irr})$ je počet jader ^{87m}Y po ukončení ozařování. Během měření byl čas vztažen ke konci ozařování, proto $N_{m0} = N_m(t_{irr}) = N_m(0)$. Analogicky i pro N_{g0} .

Pro řešení rovnice (A.13) využijeme následující ansatz

$$N_g(t) = C_g e^{-\lambda_g t} + C_m e^{-\lambda_m t}. \quad (\text{A.16})$$

Hodnotu C_m získáme vložení (A.16) a (A.15) do rovnice (A.14). Jednoduchým výpočtem získáme tvar C_m jako

$$C_m = \frac{\lambda_m N_{m0}}{\lambda_g - \lambda_m}. \quad (\text{A.17})$$

Dosazením do rovnice (A.16) a užitím okrajové podmínky $N_g(0) = N_{g0}$ získáme po jednoduchém výpočtu i výraz pro C_g

$$C_g = N_{g0} - N_{m0} \frac{\lambda_m}{\lambda_g - \lambda_m}. \quad (\text{A.18})$$

Řešením rovnice (A.13) je tedy

$$N_g(t) = \left(N_{g0} - N_{m0} \frac{\lambda_m}{\lambda_g - \lambda_m} \right) e^{-\lambda_g t} + \frac{\lambda_m N_{m0}}{\lambda_g - \lambda_m} e^{-\lambda_m t}. \quad (\text{A.19})$$

Vyjádřením N_{g0} , aplikací zbylých korekcí na $N_g(t)$ a přeznačením $t \rightarrow t_0$ získáme již výraz (4.22)

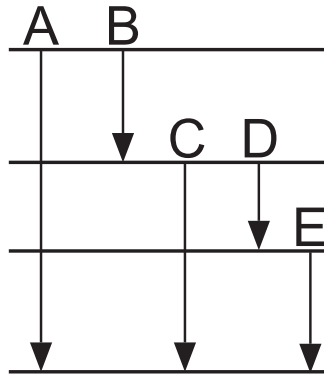
$$N_{g0} = \frac{S_{peak} \cdot C_{abs}(E) \cdot B_a \cdot e^{\lambda_g \cdot t_0} t_{real}}{I_\gamma \cdot \varepsilon_p(E) \cdot COI(E) \cdot C_{area} t_{live}} \frac{1}{(1 - e^{-\lambda \cdot t_{real}})} + \frac{\lambda_m \cdot N_{m0}}{\lambda_g - \lambda_m} (1 - e^{(\lambda_g - \lambda_m) \cdot t_0}). \quad (\text{A.20})$$

B. Metodika výpočtu pravých $\gamma - \gamma$ koincencí

V této části bude stručně rozebrána metodika výpočtu korekcí koincidenčních efektů. Popis těchto efektů je uveden v části 4.5 a zde se jím již nebudeme zabývat. Použitá metodika je odvozena v práci [25], ze které je též čerpáno.

B.1 $\gamma - \gamma$ koincidenční sumace

Uvažujme rozpadové schéma zobrazené na obrázku B.1. Potom pro pravděpodob-



Obrázek B.1: Obecné rozpadové schéma pro účel odvození korekčního koincidenčního koeficientu S .

nost $\gamma - \gamma$ sumace $S(A = B + C)$ platí následující vztah

$$S(A = B + C) = \frac{I_B}{I_A} a_{CC} \frac{\varepsilon_p(B) \varepsilon_p(C)}{\varepsilon_p(A)}. \quad (\text{B.1})$$

Což je pouze zopakovaný vztah (4.10). Pro kaskádu $S(A = B + D + E)$ platí

$$S(A = B + C) = \frac{I_B}{I_A} a_{CC} \frac{\varepsilon_p(B) \varepsilon_p(C)}{\varepsilon_p(A)}. \quad (\text{B.2})$$

Vztahy (B.1) a (B.2) lze zobecnit pro libovolně dlouhou kaskádu $S = (A = \gamma_1 + \dots + \gamma_n)$. Toto zobecnění má tvar

$$S = (A = \gamma_1 + \dots + \gamma_n) = \frac{I_{\gamma_1}}{I_A} \prod_{i=2}^n (a_{\gamma_i} c_{\gamma_i} \varepsilon_p(\gamma_i)) \frac{\varepsilon_p(\gamma_1)}{\varepsilon_p(A)}. \quad (\text{B.3})$$

Vzhledem k typickým hodnotám peakové účinnosti ε_p je možné čtyř a více krokové kaskády zanedbat. Z tohoto pohledu se může jevit zobecnění (B.3) jako zbytečné. Toto zobecnění nalezne však uplatnění v případě implementace této metody do počítačového programu, např. program CoEf vytvořený v rámci této práce.

B.2 $\gamma - \gamma$ koincidenční ztráty

Mějme pěti-krokovou kaskádu $A - B - C - D - E$. Pěti-krokovou kaskádu volíme proto, že více-krokové kaskády dávají již zanedbatelný příspěvek do celkové pravděpodobnosti $\gamma - \gamma$ koincidenčních ztrát. Obecně nás může zajímat pravděpodobnost ztráty L pro libovolný přechod z této kaskády. Pro $L(A)$ platí

$$L(A) = F_1 - F_2 + F_3 - F_4. \quad (\text{B.4})$$

Členy F_i jsou různé v závislosti na pozici vyšetřovaného přechodu A např. $B - A - C - D - E$, $B - C - D - A - E$. Platí navíc, že zanedbatelnou hodnotu má pouze člen F_1 . Proto se zde budeme zabývat pouze tímto členem. Dále jsou uvedeny pouze tři případy: $A - B - C - D - E$, $B - C - A - D - E$ a $B - C - D - E - A$ a zobecnění.

$A - B - C - D - E$:

$$L(A) = a_B c_B \varepsilon_t(B) + a_B a_C c_C \varepsilon_t(C) + a_B a_C a_D c_D \varepsilon_t(D) + a_B a_C a_D a_E c_E \varepsilon_t(E) \quad (\text{B.5})$$

$B - C - A - D - E$:

$$L(A) = \frac{I_B}{I_A} a_C a_{AC} \varepsilon_t(B) + \frac{I_C}{I_A} a_{AC} \varepsilon_t(C) + a_D c_D \varepsilon_t(D) + a_D a_E c_E \varepsilon_t(E) \quad (\text{B.6})$$

$B - C - D - E - A$:

$$L(A) = \frac{I_B}{I_A} a_C a_D a_E a_{AC} \varepsilon_t(B) + \frac{I_C}{I_A} a_D a_E a_{AC} \varepsilon_t(C) + \frac{I_D}{I_A} a_E a_{AC} \varepsilon_t(D) + \frac{I_E}{I_A} a_{AC} \varepsilon_t(E) \quad (\text{B.7})$$

Pro zobecnění uvažujme kaskádu $\gamma_0 - \gamma_1 - \gamma_2 - \gamma_3 - \gamma_4$. Potom pravděpodobnost koincidenční ztráty pro i -tý přechod $L(\gamma_i)$ má tvar

$$L(\gamma_i) = \sum_{j=0}^{i-1} \left[\frac{I_{\gamma_j}}{I_{\gamma_i}} \prod_{k=j+1}^i (a_{\gamma_k}) c_{\gamma_i} \varepsilon_t(\gamma_j) \right] + \sum_{j=i+1}^4 \left[\prod_{k=i+1}^j (a_{\gamma_k}) c_{\gamma_j} \varepsilon_t(\gamma_j) \right]. \quad (\text{B.8})$$

V případě, že se uvažovaný přechod nachází ve více kaskádách. Potom se příspěvky z těchto kaskád sčítají. Např. $A - B - C - D$ a $A - M - N$ potom pro $L(A)$ platí

$$L(A) = L[A - B - C - D] + L[A - M - N]. \quad (\text{B.9})$$

Často dochází také k situaci, kdy se určitá část kaskády zahrnující uvažovaný přechod vyskytuje i v jiné kaskádě. V tom případě je nutné tyto opakující se části odečíst s násobkem odpovídajícím *počet opakování-1*. Např. $B - A - C$, $B - A - D$, $B - A - E - F$, $G - A - E - F$ potom pro $L(A)$ platí

$$\begin{aligned} L(A) = & L[B - A - C] + L[B - A - D] + \\ & + L[B - A - E - F] + L[G - A - E - F] - \\ & - 2L[B - A] - L[A - E - F]. \end{aligned} \quad (\text{B.10})$$

Tímto postupem se zajistí, že každá část kaskády se započte pouze jednou. Je možné, že uvedeným postupem se odečtou všechny pod části nějaké kaskády. Potom je tuto nutné příspěvek této pod části nutné opět přičíst. Bližší rozbor této problematiky je uveden v [25].

B.3 Výsledný vztah pro korekci $\gamma - \gamma$ koincidenčních efektů

Po určení absolutních pravděpodobností sumace $S(A)$ a ztrát $L(A)$ je možné již určit vztah mezi naměřeným počtem přechodů $N_{det}(A)$ a opraveným počtem $N(A)$

$$N_{det}(A) = N(A) - L(A)N(A) + S(A)N(A) - L(A)S(A)N(A). \quad (\text{B.11})$$

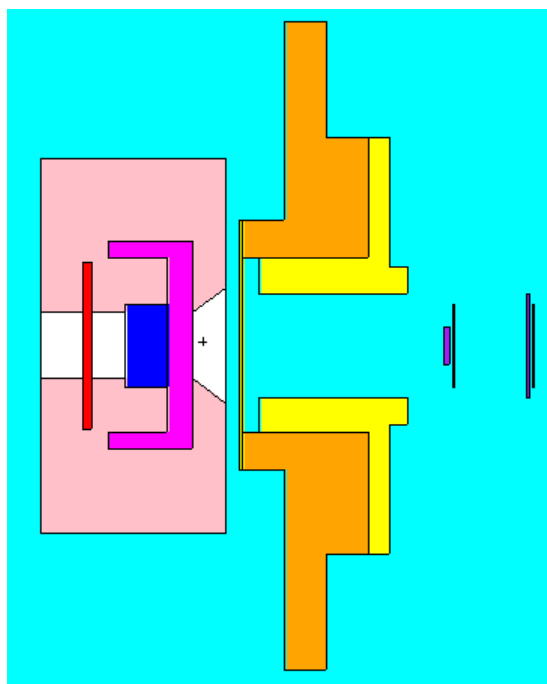
Poslední člen ve vztahu (B.11) vyjadřuje skutečnost, že i sumační „přechod“ podléhá koincidenčním ztrátám. Vztah (B.11) se dá upravit do tvaru (4.14)

$$N(A) = \frac{N_{det}(A)}{COI(A)}, \quad (\text{B.12})$$

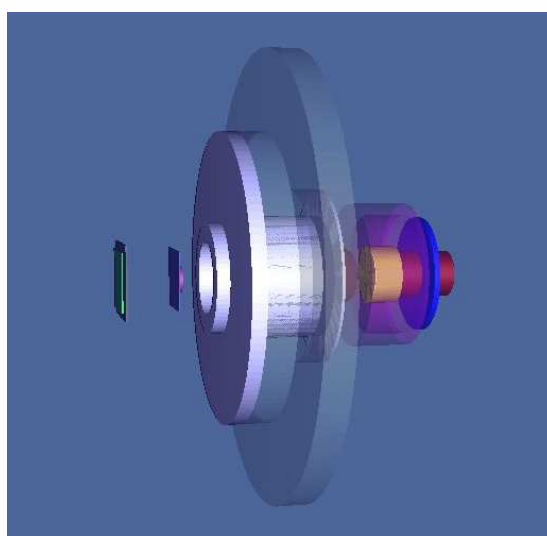
kde

$$COI(A) = (1 - L(A))(1 + S(A)). \quad (\text{B.13})$$

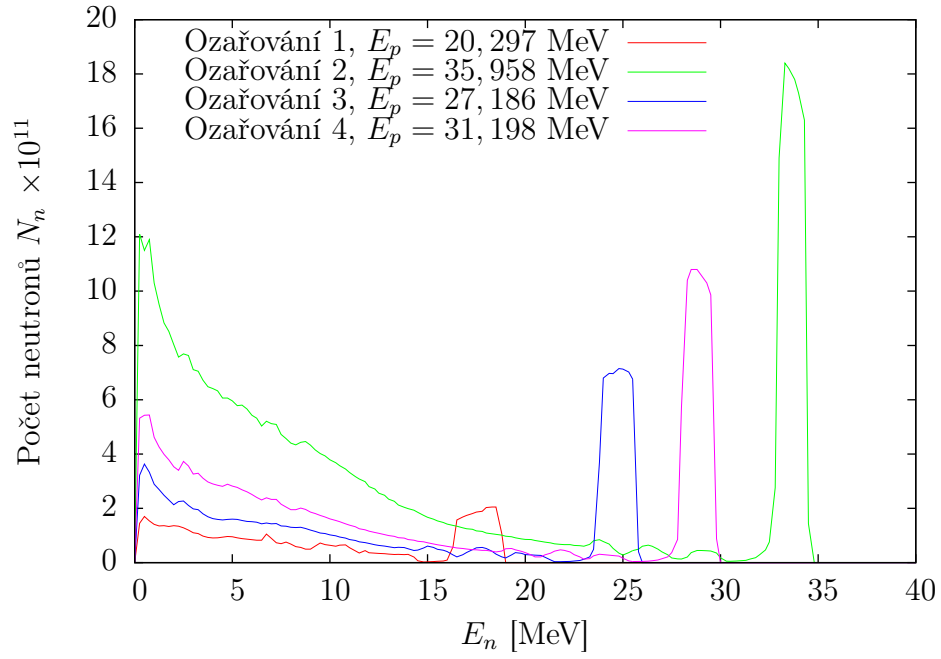
C. Grafické znázornění modelu neutronového zdroje a neutronových spekter



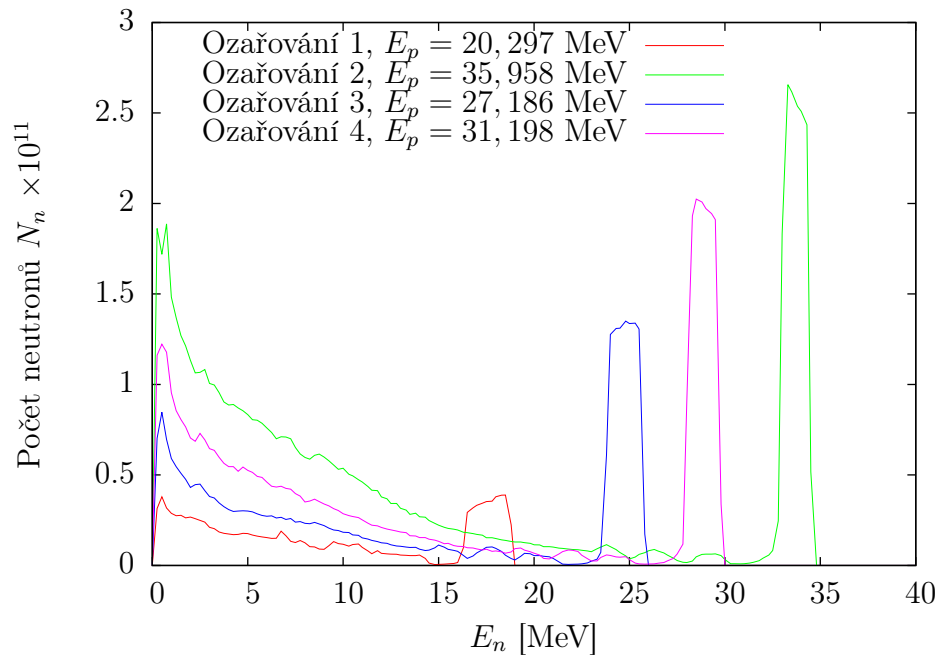
Obrázek C.1: Vizualizace modelu neutronového zdroje pomocí programu VISED - řez rovinou symetrie.



Obrázek C.2: 3D zobrazení modelu neutronového zdroje včetně folií pomocí programu VISED. Některé části jsou pro větší názornost průhledné.



Obrázek C.3: Neutronová spektra pro vzorek YN pro použité energie protonů.

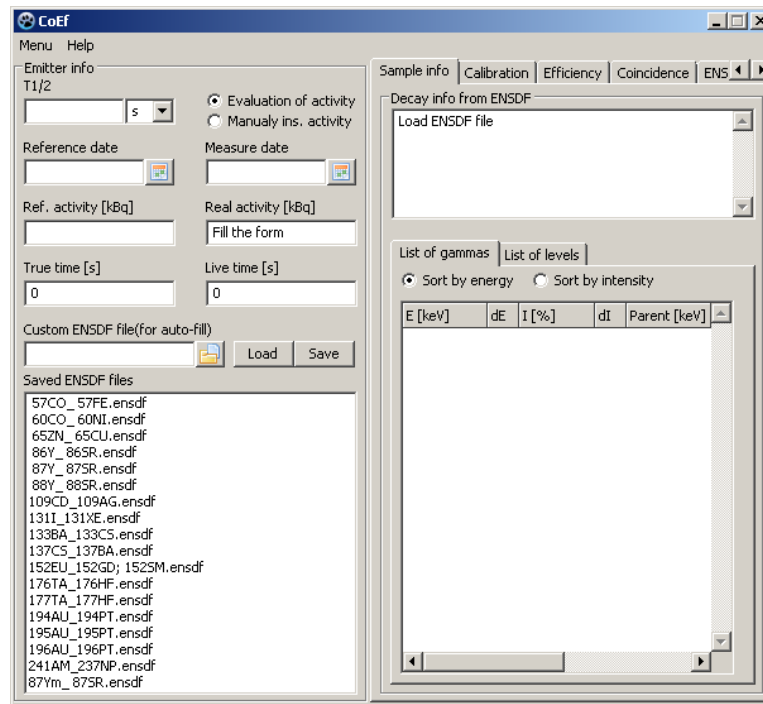


Obrázek C.4: Neutronová spektra pro vzorek YO pro použité energie protonů.

D. Program CoEf a jeho použití

D.1 Po spuštění a záložka *Sample info*

Obrázek D.1 ukazuje okno programu po spuštění. Levá část okna zůstává ve všech případech využití programu neměnná a obsahuje oblast *Emitter info* (informace o zářiči). V této oblasti jsou zobrazeny, případně vkládány a upravovány údaje o zářiči.



Obrázek D.1: Okno programu po jeho spuštění

Těmito údaji jsou:

- $T_{1/2}$... poločas rozpadu společně s jednotkou: y - rok(year), d - den(day), h - hodina(hour), m - minuta(minute), s - sekunda(second),
- Reference date... datum k němuž se vztahuje známá aktivita zářiče,
- Measure date... datum měření nebo dne, pro který je třeba aktivitu určit,
- Reference activity... známá aktivita zpravidla vztažená k určitému datu,
- Real activity... skutečná, okamžitá aktivita,
- True time... skutečný čas měření,
- Live time... čas, po který detektor pracoval,
- Custom ENSDF file... pole pro načtení ENSDF souboru z libovolného umístění,

- Saved ENSDF files...seznam uložených datových souborů (tyto soubory jsou umístěny v podadresáři *data* v adresáři programu).

Dále je zde možné přepnutí mezi výpočtem aktivity na základě poločasu rozpadu a referenční aktivity *Evaluation of activity* a ručním zadáním aktivity do pole Real activity *Manually ins. activity*.

V pravé části okna je záložkový panel sloužící k přepínání jednotlivých módů programu. Jsou zde obsaženy záložky: *Sample info*, *Calibration*, *Efficiency*, *Coincidence*, *ENSDF* a *Decay scheme*.

Na záložce *Sample info* se nachází oblast *Decay info from ENSDF* (Informace o rozpadu z ENSDF) nachází se zde textové pole s informacemi:

- Parent n... mateřské jádro,
- Daughter n... dceřiné jádro/a,
- T1/2... poločas rozpadu,
- Branching ratio... větvicí poměr(y).

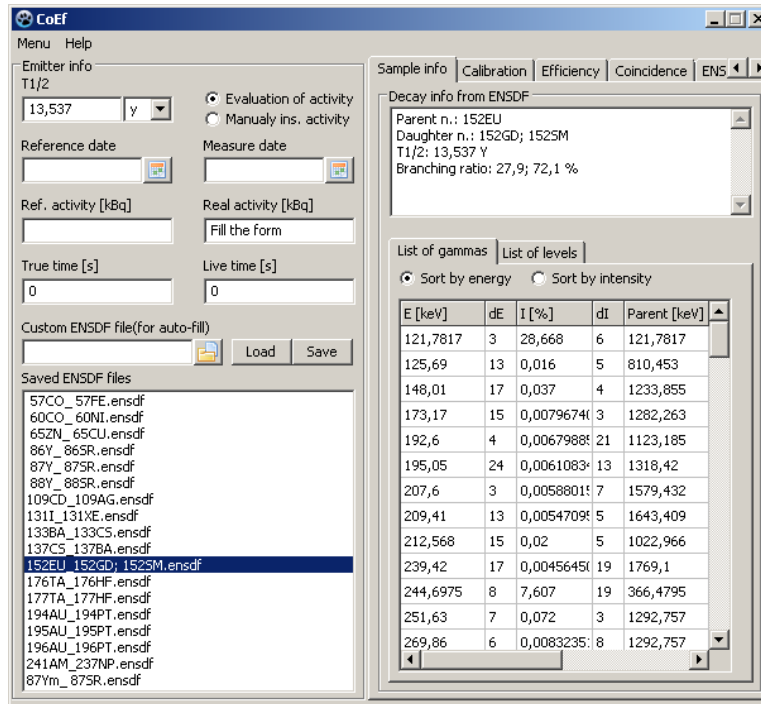
Dále jsou zde dvě záložky *List of gammas* (seznam emitovaných γ - kvant) a *List of levels* (seznam energetických hladin).

Na záložce *List of gammas* lze vybrat způsob řazení podle energie nebo podle intenzity. V obou případech se řadí od nejvyšších hodnot k nejnižším. Ke každé energii se zobrazují následující informace:

- *E*... energie emitovaného γ - kvanta,
- *dE*... chyba energie emitovaného γ - kvanta,
- *I*... intenzita emitovaného γ - kvanta,
- *dI*... chyba intenzity emitovaného γ - kvanta,
- Parent... mateřská energetická hladina,
- Daughter... dceřiná energetická hladina,
- *a*... větvicí poměr,
- *c*... pravděpodobnost zářivého přechodu,
- Source... zdrojové jádro γ - kvanta.

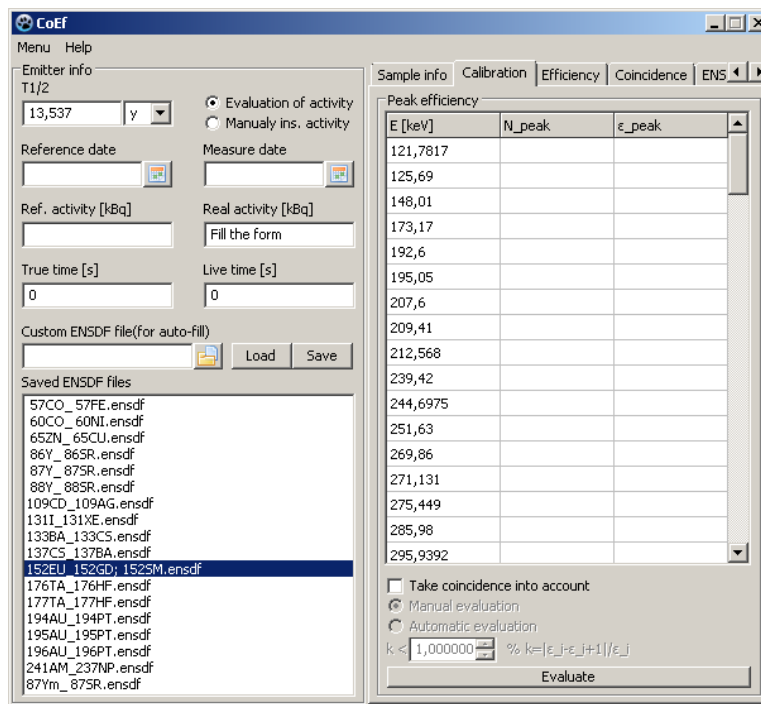
Tabulka je stejně jako všechny ostatní v programu kopírovatelná to tabulkového procesoru např. Microsoft Excel.

Na záložce *List of levels* se zobrazuje seznam energetických hladin jádra/jader. Tyto hladiny jsou seřazeny od nejnižších po nejvyšší. V případě více možností rozpadů mateřského jádra jsou hladiny dceřiných jader zobrazeny po sobě, ve stejném pořadí, jako jsou dceřiná jádra uvedena v textovém poli výše.



Obrázek D.2: Program s načteným souborem pro 152Eu

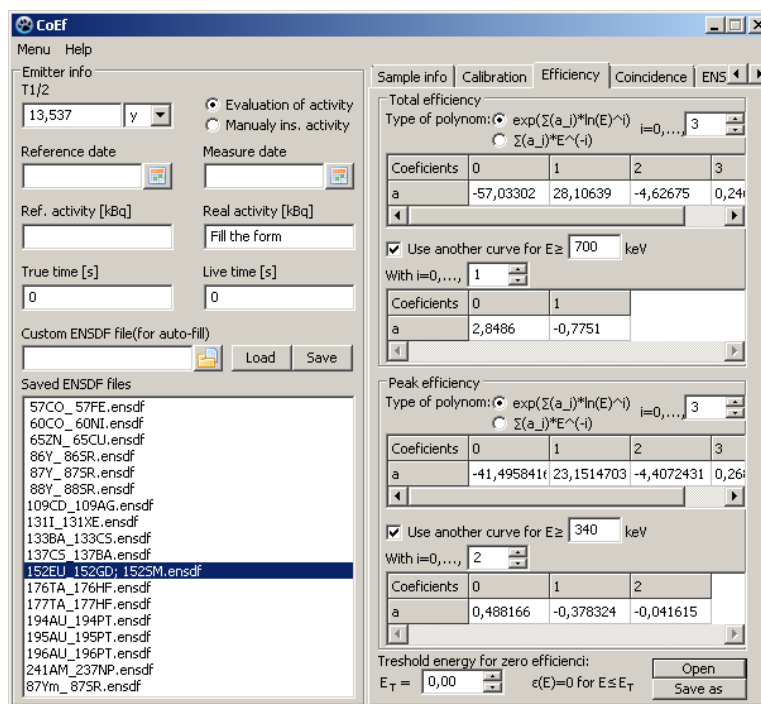
D.2 Záložka *Calibration*



Obrázek D.3: Záložka *Calibration* s načteným souborem

Na obrázku D.3 je zobrazený program se záložkou *Calibration*. Tato záložka slouží k určení účinnosti kalibrace detektoru. **V tomto programu lze vypočítat pouze body odpovídající jednotlivým energiím. Křivku je třeba fitovat za použití jiného programu např. Gnuplot.** Naměřené hodnoty ploch jednotlivých pík se zapisují do sloupce N_peak v tabulce. Po stisknutí tlačítka *Evaluate* dojde k výpočtu účinnosti detektoru pro danou energii a geometrii a hodnoty se zobrazí ve sloupci ϵ_peak . V případě započtení koincidenčních efektů je třeba nejprve určit účinnost bez těchto efektů a poté zaškrtnout pole *Take coincidence into account*. Zaškrtnutím pole se aktivují dvě možnosti vyhodnocení a to *Manual evaluation*, kdy jednotlivé kroky iterace jsou prováděny stisknutím tlačítka *Evaluate* a *Automatic evaluation*, kdy bude iterace probíhat dokud nedosáhnout jednotlivé kroky iterace poměru menšího než zadaný poměr k . Zpět k nekorigovaným hodnotám se lze vrátit odškrtnutím pole *Take coincidence into account* a stisknutím tlačítka *Evaluate*. **Pro opravy na koincidenční efekty je nutné mít vyhodnocenou totální účinnost a tuto také zadanou do programu viz. část D.3.** Tato záložka slouží primárně k určení píkové účinnosti, lze však použít i k určení totální účinnosti, kdy do sloupce N_peak zadáme součet pulzů od začátku spektra po konec píku vyšetřované energie. Pro výpočet totální účinnosti nemá smysl započítávat koincidence neboť totální účinnost je na koincidencích prakticky nezávislá. **Pro výpočet účinnosti je třeba mít vypočtenou/vyplněnou aktivitu pole *Real activity* a vyplněná pole *True time* a *Live time* v levé části okna.**

D.3 Záložka *Efficiency*



Obrázek D.4: Záložka *Efficiency* se zadanou účinností

Tato záložka slouží pro zadávání známých průběhů účinnosti. Tyto účinnosti jsou nutné pro určení oprav koincidenčních efektů. Jsou zde dvě identické oblasti *Total efficiency* a *Peak efficiency*. Obě mají identické ovládací prvky, proto zde bude uveden obecný popis pouze těchto prvků. Průběh činnosti lze vyjádřit pomocí dvou funkcí.

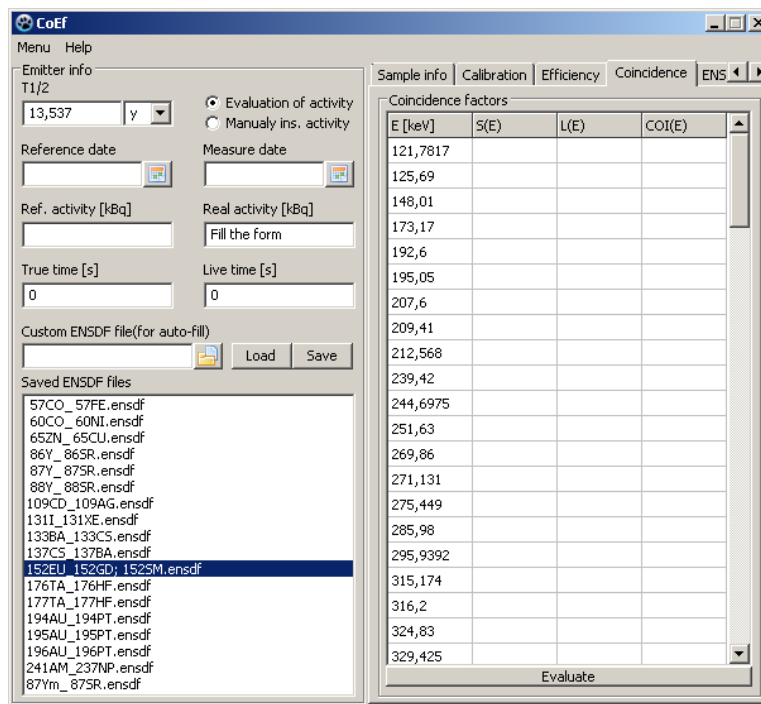
$$\varepsilon(E) = \exp \sum_{i=0}^n a_i \ln^i E \quad (\text{D.1})$$

$$\varepsilon(E) = \sum_{i=0}^n a_i E^{-i} \quad (\text{D.2})$$

Obě funkce (D.1) i (D.2) jsou ekvivalentní. Stupeň n lze zadat v poli vedle výběru typu účinnostní funkce. Koeficienty se zadávají do tabulky *Coefficients*, která se mění v závislosti na stupni n . Pro obě účinnosti lze zadat hraniční energii, od které je účinnost popsána jinou funkcí avšak stejného typu. Tato možnost se zapíná zaškrtnutím pole *Use another curve for $E \geq$* a vyplněním této energie. Stupeň n této další funkce a její koeficienty se vkládají stejným způsobem avšak do pole a tabulky pod zaškrtačím polem *Use another curve for $E \geq$* .

Úplně dole na záložce je položka *Threshold energy for zero efficiency*. Do pole označeného E_T se zadává energie (v keV) pod kterou je účinnost nulová (píková i totální). Vedle této položky jsou dále tlačítka *Open* pro otevření souboru s účinnostmi a *Save as* pro uložení účinností do souboru.

D.4 Záložka *Coincidence*



Obrázek D.5: Záložka *Coincidence* s načteným souborem

Na této záložce se po stisknutí tlačítka *Evaluate* vypočtou korekční koeficienty $COI(E)$, kde E vystupuje jako parametr. **Pro výpočet je nutné mít zadanou píkovou i totální účinnost na záložce *Efficiency*.** Opravenou hodnotu plochy píku získáme podle vztahu

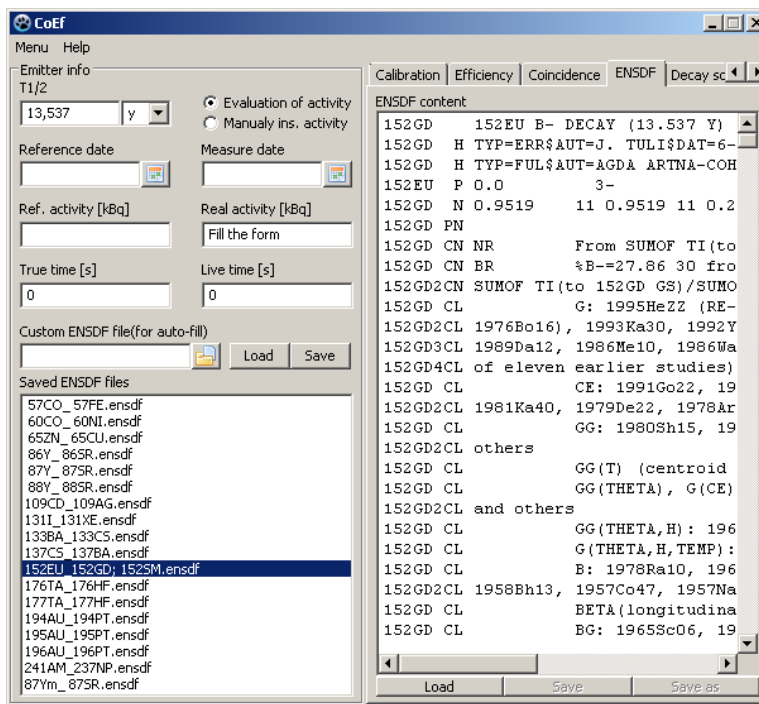
$$N(E) = \frac{N_{det}(E)}{COI(E)}, \quad (D.3)$$

kde N_{spec} je plocha píku určená ze spektra. Koeficient $COI(E)$ je určen jako

$$COI(E) = (1 - L(E))(1 + S(E)). \quad (D.4)$$

Výpočet korekčních koeficientů je založen na metodě odvozené v [25].

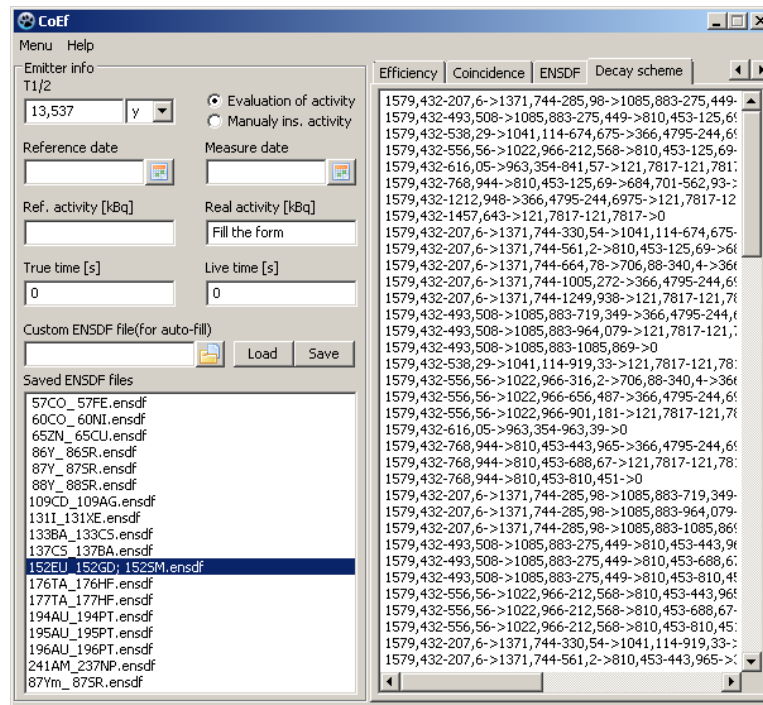
D.5 Záložka *ENSDF*



Obrázek D.6: Záložka *ENSDF* s načteným souborem

V této záložce je zobrazen obsah datového souboru. Tento obsah zde lze měnit případně načíst a uložit úplně nový soubor. Datové soubory jsou k nalezení v databázi <http://www.nndc.bnl.gov/>. Pro načtení (upraveného) obsahu textového pole slouží tlačítka *Load*. Po úspěšném načtení lze pomocí tlačítka *Save* obsah uložit do existujícího souboru v implicitním adresáři nebo pomocí tlačítka *Save as* uložit do nového souboru. **V textovém poli nesmí být žádný prázdný řádek ať už před obsahem souboru nebo za obsahem souboru.** Dále v případě vkládání více datových souborů do jednoho jako v případě zobrazeného 152EU -> 152Gd, 152Sm nesmí být mezi těmito soubory taktéž žádný prázdný řádek.

D.6 Záložka *Decay Scheme*



Obrázek D.7: Záložka *Decay Scheme* s načteným souborem

Na této záložce jsou zobrazeny možné rozpadové γ - kaskády ve tvaru

$$E_{level} - E_{\gamma} - > E'_{level} - \dots - > 0.$$