

Vedecká rada Fakulty matematiky, fyziky a informatiky
Univerzita Komenského v Bratislave

RNDr. Daniel Kollár

Autoreferát dizertačnej práce

Neutrónové účinné prierezy a interakcie častíc kozmického žiarenia
so zemským a mimozemským materiálom

Na získanie vedecko-akademickej hodnosti *philosophiae doctor*
v odbore doktorandského štúdia:
11–24–9 Jadrová a subjadrová fyzika

Bratislava 2003

Dizertačná práca bola vypracovaná v dennej forme doktorandského štúdia na Katedre jadrovej fyziky Fakulty matematiky, fyziky a informatiky, Univerzity Komenského v Bratislave.

Predkladateľ: RNDr. Daniel Kollár
Katedra jadrovej fyziky
Fakulta matematiky, fyziky a informatiky UK
842 48 Bratislava

Školiteľ: Prof. RNDr. Jozef Masarik, DrSc.
Fakulta matematiky, fyziky a informatiky UK

Oponenti: Prof. Dr. Reiner Wieler ETH Zürich
Prof. Ing. Slavko Chalupka, CSc. PF UPJŠ Košice
Doc. RNDr. Karel Kudela, DrSc. SAV Košice

Autoreferát bol rozoslaný dňa

Obhajoba dizertačnej práce sa koná dňa
10. decembra 2003 o 13:00 hod

na Fakulte matematiky, fyziky a informatiky Univerzity Komenského, Mlynská dolina, 842 48 Bratislava, miestnosť č. F1 377 pred komisiou pre obhajobu dizertačnej práce doktorandského štúdia vymenovanou dňa 28. októbra 2003 predsedom spoločnej odborovej komisie vo vednom odbore 11–24–9 Jadrová a subjadrová fyzika.

Predseda spoločnej odborovej komisie:

Prof. RNDr. Jozef Masarik, DrSc.
FMFI UK, 842 48 Bratislava

Obsah

| | |
|--|----|
| 1 Úvod | 4 |
| 2 Produkcia kozmogénnych nuklidov v reakciách neutrónového záchytu v chondritoch | 6 |
| 3 Neutrónové účinné prierezy a produkcia kozmogénnych nuklidov na Zemi | 10 |
| 4 Simulácia transportu neutrónov pre aktivačné experimenty | 11 |
| 5 Prehľad najvýznamnejších dosiahnutých výsledkov | 13 |
| 6 Summary | 14 |
| Referencie | 17 |
| Zoznam publikácií | 19 |

1 Úvod

V klasickej epoche štúdia stôp zanechaných kozmickým žiarením (KŽ) v látke, počínajúc rokom 1950 a končiac prvými štúdiami mesačných vzoriek, boli uskutočnené dve veci. Boli vyvinuté metódy na detekciu širokého spektra žiarením indukovaných zmien a ďalej boli pomocou dát nameraných týmito metódami vyvinuté modely, ktoré demonštrovali, že tieto efekty prebiehali aj v dávnej minulosti a že stredné intenzity galaktického a slnečného kozmického žiarenia boli podľa stôp v materiáloch približne konštantné.

V súčasnosti sú vyvíjané nové modely, ktoré sa pokúšajú presnejšie simulovať procesy prebiehajúce pri interakciách KŽ s látkou, predovšetkým s objektami Slnečnej sústavy. Presné modely umožňujú po použití experimentálnych dát rekonštrukciu histórie jednotlivých objektov Slnečnej sústavy ako aj Slnečnej sústavy ako celku. Ďalej umožňujú ozrejmienie vzťahov medzi jej jednotlivými objektami, konkrétne napríklad vzťahov dvojice Slnko – Zem.

Na popis interakcií boli použité dva typy modelov. Prvým je experimentálne ožarovanie hrubých terčov v laboratórnych podmienkach [napr. 1, 2] a simulovanie skutočných podmienok vo vesmíre s presnosťou umožňujúcou počítanie produkčných rýchlostí. Výhodou tohoto prístupu je priamy vzťah medzi experimentom a skutočným javom. Druhým typom je teoretický výpočet spektier a tokov jadrových častíc v danej hĺbke pod povrchom ožarovaného objektu a ich následné použitie, spolu s excitačnými funkciami, na výpočet produkčných rýchlostí študovaných kozmogénnych nuklidov v tejto hĺbke. Tento prístup je úzko spätý s fyzikálnymi princípmi a modelmi a je preto ľahšie možné ho zdokonaľiť, keď budú k dispozícii nové dáta, prípadne nové fyzikálne teórie.

Teoretické modely sa odlišujú v spôsobe, akým počítajú hĺbkovo závislé spektrá a toky častíc. Staršie modely sa väčšinou pokúšali o popis týchto závislostí pomocou rôznych analytických funkcií, ktoré boli konštruované berúc do úvahy fyzikálne teórie a experimentálne dáta [napr. 3–5]. S príchodom počítačovej éry sa začali na simuláciu kaskády častíc v látke využívať stochastické Monte Carlo modely [napr. 6–8].

Väčšina týchto modelov využíva na výpočet produkcie kozmogénnych nuklidov účinné prierezy. Dostupnosť presných excitačných funkcií pre jednotlivé jadrové reakcie je rozhodujúcim faktorom pre aplikovateľnosť modelov v kozmochemických, geochemických, geochronologických a mnohých ďalších typoch aplikácií. Existuje však veľké množstvo reakcií, pre ktoré sú excitačné funkcie nekompletné, alebo chýbajú úplne. Pre protónmi indukované reakcie dôležité vo fyzike kozmického žiarenia tomu tak väčšinou nie je, pretože bolo ich meraniu v posledných dvoch desaťročiach ich meraniu venované veľké úsilie.

Pre neutróny je situácia omnoho komplikovanejšia, keďže ich nulový elektrický náboj nedovoľuje uskutočniť jednoduché monoenergetické merania účinných prierezov pri ener-

giách nad 14 MeV. Na zaplnenie dier v neutrónových excitačných funkciách sú preto používané rôzne nepriame metódy. V mnohých prípadoch však výsledky získané pomocou jednotlivých metód navzájom nesúhlasia a je potrebné vybrať vhodnú sadu účinných prierezov pre konkrétnu aplikáciu.

Práca sa zaoberá tromi hlavnými témami. Ako prvý je prezentovaný model na výpočet produkcie kozmogénnych nuklidov v reakciách neutrónového záchyty v mimozemských objektoch. Motiváciou na výber tejto témy bola neexistencia systematiky (n, γ) reakcií v meteoritoch a povrchoch planét, ktorá by bola založená na Monte Carlo simulácii transportu častíc. Pre spalačné reakcie takéto systematiky existujú [6, 8]. Model podobný prezentovanému bol už čiastočne niekoľkokrát použitý, avšak bez toho, aby boli detailne preskúmané všetky jeho aspekty. Cieľom tejto časti práce bolo rozšíriť oblasť aplikovateľnosti Monte Carlo modelov pre spalačnú produkciu kozmogénnych nuklidov až k termálnym energiám neutrónov a tým umožniť ich aplikáciu aj na komplexné problémy pri štúdiu meteoritov a planét.

V súčasnosti sú pri simuláciách spalogénnej produkcie kozmogénnych nuklidov v mimozemských objektoch používané dve sady účinných prierezov. Excitačné funkcie zahrnuté v týchto sádach sa pre niektoré reakcie odlišujú na širokých energetických intervaloch o viac ako 100%. Ďalšou témou študovanou v práci je aplikácia týchto dvoch sád pri simuláciách spalogénnej produkcie kozmogénnych nuklidov v zemskej atmosfére a v skalách na zemskom povrchu ako aj štúdium vplyvu výberu účinných prierezov na produkciu.

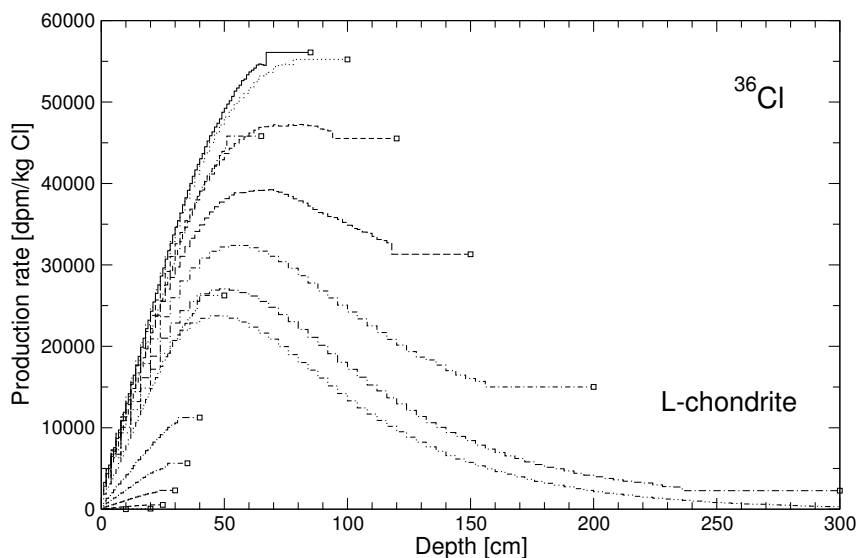
Okrem aplikácií pri výskume kozmu majú účinné prierezy pre produkciu zvyškových jadier veľký význam aj v mnohých ďalších oblastiach základného ako aj aplikovaného výskumu siahajúceho od environmentálnych vied, medicíny, kozmických a leteckých technológií, až po *urýchľovačovú transmutáciu jadrového odpadu a urýchľovačové znásobovanie energie*. Konkrétnym problémom urýchľovačových technológií je potreba extrémneho množstva údajov, či už sa to týka pokrytia terčových prvkov alebo typov dát pre jednotlivé jadrové reakcie. Keďže je prakticky nemožné zmerať všetky potrebné dáta, je nutné spoľiehať sa do značnej miery na teoretické odhady. Vychádzajúc z faktu, že prediktívna sila súčasných modelov a kódov nespĺňa požadované kritériá, skupina európskych laboratórií vyvinula iniciatívu smerujúcu k zlepšeniu tejto situácie. Táto iniciatíva bola zrealizovaná v rámci projektu HINDAS (*High- and Intermediate-Energy Data for Accelerator-Driven Systems* [9]) z piateho rámcového programu Európskej únie.

Autor práce je členom skupiny, ktorá pracuje na tretej časti projektu HINDAS, ktorou je produkcia zvyškových nuklidov v protónmi a neutrónmi indukovaných jadrových reakciách. Posledná časť práce sa zaoberá Monte Carlo simuláciami transportu neutrónov pre neutrónové aktivačné experimenty, ktoré sú použité na určenie neutrónových excitačných funkcií.

2 Produkcia kozmogénnych nuklidov v reakciách neutrónového záchytu v chondritoch

Toky častíc v meteoroidoch rôznych veľkostí a chemického zloženia boli simulované pomocou programového balíka LCS [10], ktorý zahŕňa kód MCNP [11] na simuláciu transportu neutrónov až do termálnych energií. Na výpočet produkčných rýchlostí kozmogénnych rádionuklidov ^{36}Cl , ^{41}Ca , ^{60}Co , ^{59}Ni a ^{129}I ako funkcií veľkosti meteoroidu a hĺbky pod jeho povrchom boli použité excitačné funkcie z evaluovaných súborov ENDF/B-VI [12] a JEF-2.2 [13].

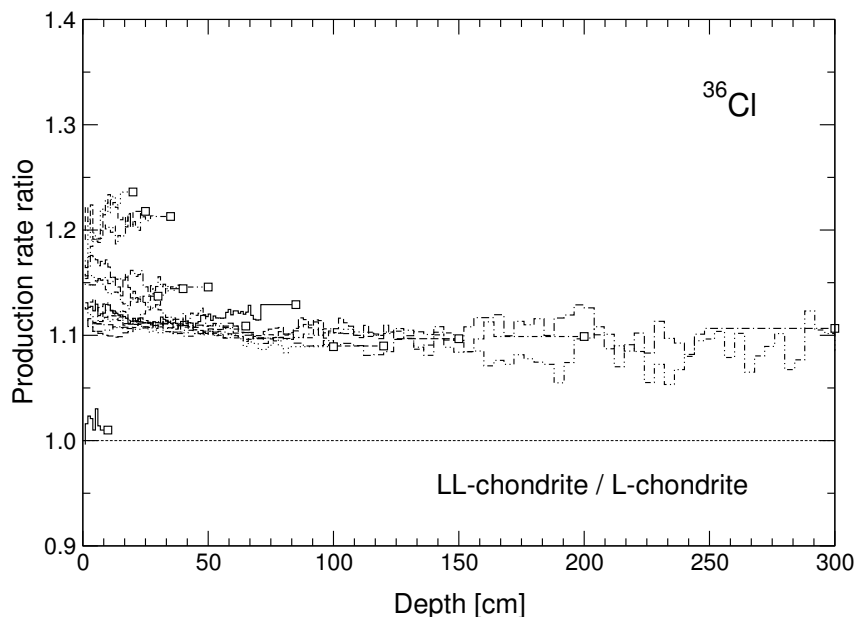
Produkčné rýchlosti uvedených izotopov silne závisia od veľkosti ožarovaného meteoroidu ako aj od hĺbky pod jeho povrchom. Hĺbkové profily produkčnej rýchlosti ^{36}Cl v meteoroide s elementárnym zložením l-chondritov sú zobrazené na Obr. 1. Meteoroidy s polomerom menším ako ≈ 35 cm sú príliš malé na to, aby sa v nich neutróny spomalili na termálne energie, takže je v nich zvyčajne (n, γ) produkcia omnoho nižšia ako spalogénna. Pre väčšie meteoroidy produkcia rapídne stúpa až po polomer 85 cm. Pre väčšie meteoroidy nastáva v hĺbke 50 – 80 cm maximum produkcie a za ním dochádza k monotónnemu poklesu produkčnej rýchlosti smerom k centru meteoroidu.



Obrázok 1: Hĺbkové profily produkčnej rýchlosti ^{36}Cl v meteoroidoch s polomerom 10 – 500 cm a chemickým zložením zodpovedajúcim L-chondritom. Hodnoty sú normované na celkový tok primárnych protónov $J_0(E > 10 \text{ MeV}) = 1 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$.

V závislosti od tvaru excitačnej funkcie pre konkrétnu (n, γ) reakciu sa hĺbkové profily pre ostatné skúmané kozmogénne nuklidy jemne odlišujú od profilov pre ^{36}Cl . Významnejší rozdiel nastáva len v prípade ^{129}I , pre ktorý je produkčná rýchlosť dosť veľká už v meteoroide s polomerom 20 cm, pričom maximálna produkčná rýchlosť je dosiahnutá v centre meteoroidu s polomerom 65 cm.

Na rozdiel od spalogénnej produkcie sme pre produkciu nuklidov neutrónovým zá-
 chytom zistili rozdiely v produkčnej rýchlosti medzi jednotlivými triedami chondritov,
 medzi ktorými sú len malé rozdiely v chemickom zložení. V závislosti od tvaru excitač-
 nej funkcie sa rozdiely prejavujú zmenou hodnoty produkčnej rýchlosti ako aj zmenou
 tvaru jej hĺbkového profilu. Pre obyčajné chondrity sme dostali rozdielne hodnoty po-
 meru produkčných rýchlostí medzi L-, LL- a H-chondritmi pre každý skúmaný izotop.
 Hĺbková závislosť tohto pomeru medzi LL- a L-chondritmi pre izotop ^{36}Cl je znázornená
 na Obr. 2. V meteoroidoch s $R > 50$ cm je tento pomer konštantný pre všetky hĺbky



Obrázok 2: Produkčné rýchlosti ^{36}Cl v LL-chondritoch ako funkcia hĺbky relatívne vzhľadom
 na produkčné rýchlosti v L-chondritoch pre meteoroidy s polomerom 10 – 500 cm.

a veľkosti. V menších meteoroidoch je tento pomer závislý od veľkosti a eventuálne aj
 od hĺbky. Stredné pomery pre jednotlivé skúmané kozmogénne nuklidy sú zaznamenané
 v Tab. 1. Tieto rozdiely sú spôsobené odlišnými koncentraciami prvkov kyslíka a železa

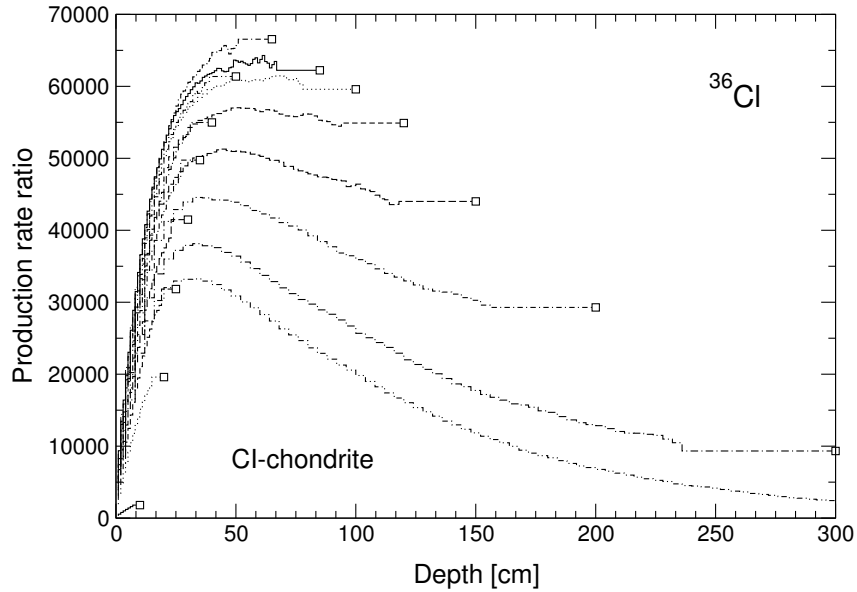
Tabuľka 1: Stredné pomery produkčných rýchlostí kozmogénnych nuklidov ^{36}Cl , ^{41}Ca , ^{60}Co ,
 ^{59}Ni a ^{129}I v L-, LL- a H-chondritoch.

| Pomer | ^{36}Cl | ^{41}Ca | ^{60}Co | ^{59}Ni | ^{129}I |
|------------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|
| LL-chondrit/L-chondrit | 1.1 | 1.08 | 1.01 | 1.09 | 0.95 |
| H-chondrit/L-chondrit | 0.82 | 0.85 | 0.93 | 0.84 | 1.2 |

v chemickom zložení jednotlivých tried obyčajných chondritov. Kyslík je ako najľahší
 prvok v uvažovanom chemickom zložení zároveň aj najlepším moderátorom neutrónov a
 preto jeho väčšie množstvo má za následok zvýšenie tokov tepelných neutrónov a tým

aj (n, γ) produkcie kozmogénnych nuklidov. Na druhej strane relatívne vysoký účinný prierez železa pre absorpciu tepelných neutrónov spôsobuje ich úbytok a prejavuje sa na znížení produkcie.

Podstatne väčšie rozdiely sú evidentné pri CI-chondritoch, kde prítomnosť vodíka spôsobuje prudký nárast tokov tepelných neutrónov a tým aj tokov už pri malých polomeroch meteoroidov ($R > 15$ cm). Hĺbkové profily ^{36}Cl v CI-chondritoch sú znázornené na Obr. 3.



Obrázok 3: Hĺbkové profily produkčnej rýchlosti ^{36}Cl v CI-chondritoch pre meteoroidy s polomerom 10 – 500 cm. Hodnoty sú normované na celkový tok primárnych protónov $J_0(E > 10 \text{ MeV}) = 1 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$.

Efekty spôsobené malými zmenami v chemickom zložení implikujú nevyhnutnosť vykonať nové simulácie vždy, keď sa objaví meteorit s nezvyčajným zložením. To je obzvlášť dôležité pre meteority obsahujúce vodík.

Prezentované výpočty sú založené na čisto fyzikálnom modeli spočívajúcom v Monte Carlo simulácii transportu častíc a excitačných funkciách za použitia len jedného voľného parametra, ktorým je stredný tok častíc galaktického kozmického žiarenia na orbitách meteoroidov za posledných niekoľko miliónov rokov. Keďže neexistujú vhodné experimentálne hĺbkové profily kozmogénnych nuklidov v meteoritoch, tento parameter bol určený najlepším fitom napočítaného hĺbkového profilu ^{41}Ca v mesačnom povrchu na ^{41}Ca profil nameraný vo vzorkách z vrtu z Apolla 15 [14], pričom bolo potrebné zobrať do úvahy heliocentrický gradient toku častíc galaktického kozmického žiarenia [15, 16]. Výsledná získaná hodnota je

$$J_0(E > 10 \text{ MeV}) = 2.99 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1} .$$

Táto hodnota je výrazne nižšia ako sú hodnoty získané podobným spôsobom modelmi pre spalogenú produkciu kozmogénnych nuklidov pri porovnaní s nameranými hĺbkovými profilmi v L-chondrite Knyahinya [17, 18]. Príčina tohoto rozdielu je neznáma a poukazuje na potrebu ďalšieho štúdia v tejto oblasti.

Porovnanie nameraných produkčných rýchlostí s nameranými koncentraciami kozmogénnych nuklidov ukazuje dobrú zhodu. Je preto možné dôjsť k záveru, že tento model môže byť s dostatočnou spoľahlivosťou použitý na široké spektrum aplikácií. Vylepšenia je možné urobiť predovšetkým čo sa týka výberu vhodných excitačných funkcií pre (n, γ) reakcie. Model môže byť ľahko rozšírený o ďalšie neutrónovým záchytnom produkované kozmogénne nuklidy, čo z neho robí univerzálny nástroj na štúdium meteoritov ako aj iných kozmickým žiarením ožarovaných objektov.

3 Neutrónové účinné prierezy a produkcia kozmogénnych nuklidov na Zemi

Dôležitosť výberu sady neutrónových účinných prierezov na simuláciu produkcie kozmogénnych nuklidov bola ukázaná pre mimozemské objekty. Dve sady účinných prierezov vyvíjané skupinami Rolfa Michela a Roberta C. Reedyho, obe často používané v kozmochemických aplikáciách [napr. 17, 19], ukazujú značné rozdiely hlavne pre jadrové reakcie indukované neutrónmi.

V práci boli na výpočty produkčných rýchlostí v atmosfére a na zemskom povrchu použité diferenciálne spektrá protónov a neutrónov napočítané Masarikom a Beerom [7] pomocou programových balíkov LCS [10] a GEANT [20], pričom boli uvažované rozdielne hodnoty stredného toku častíc galaktického kozmického žiarenia zodpovedajúce jednotlivým sadám účinných prierezov ($J_0(E > 10 \text{ MeV}) = 4.56 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ pri použití Reedyho účinných prierezov, resp. $3.9 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ pri použití Michelových účinných prierezov).

Produkčné rýchlosti ^{10}Be a ^7Be v atmosfére napočítané pomocou Michelových účinných prierezov sú podstatne vyššie ako napočítané pomocou Reedyho účinných prierezov. Je teda možné povedať, že dve kombinácie parametrov „účinné prierezy – J_0 “, ktoré dávali podobné výsledky pre meteority, nie sú ekvivalentné pre zemskú atmosféru. Porovnanie s experimentálnymi dátami z atmosféry je však problematické, pretože nie je jasné, či hodnoty namerané v archívoch na Zemi reprezentujú globálne ustrednené produkčné rýchlosti, alebo či zohrávajú dôležitú úlohu aj lokálne efekty.

Pre zemský povrch je zhoda lepšia. Je to spôsobené tým, že geometria ožarovania aj uvažované reakcie sú tie isté ako v prípade mimozemských objektov, na ktorých boli obidve sady účinných prierezov vyvíjané. Pri *in-situ* produkovaných kozmogénnych nuklidoch odpadá aj väčšina problémov s depozíciou a mixovaním materiálu a je preto možné aj priame porovnanie výpočtov s experimentom.

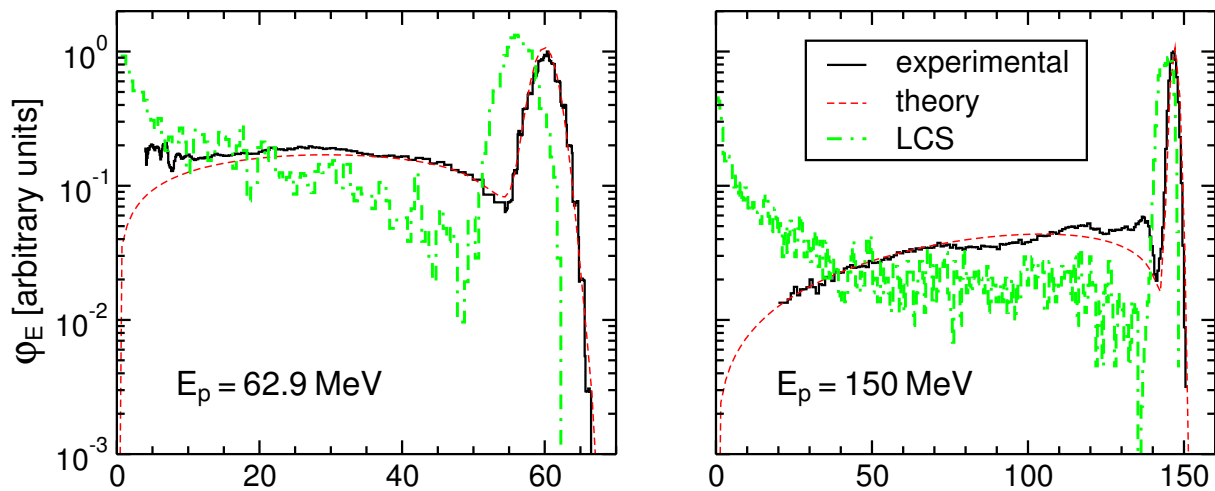
Vo všeobecnosti sa dá povedať, že použitie Michelových účinných prierezov vedie k vyšším hodnotám produkčných rýchlostí. Keďže boli výsledky získané s Reedyho účinnými prierezmi v porovnaní s experimentálnymi hodnotami nižšie [19], použitie Michelových účinných prierezov vedie k lepšej zhode. Neistoty výpočtov sú však omnoho väčšie ako sú rozdiely vznikajúce použitím rôznych sád účinných prierezov ako aj z porovnania s experimentálnymi hodnotami.

Prezentované porovnanie poukázalo na dôležitosť účinných prierezov a to hlavne pre neutrónmi indukované jadrové reakcie, pre správny popis produkcie kozmogénnych nuklidov ako v mimozemských objektoch tak aj na Zemi. Je preto nevyhnutné vynaložiť ďalšie úsilie na vývoj experimentálnych a teoretických metód na vylepšenie excitačných funkcií pre všetky relevantné jadrové reakcie.

4 Simulácia transportu neutrónov pre aktivačné experimenty

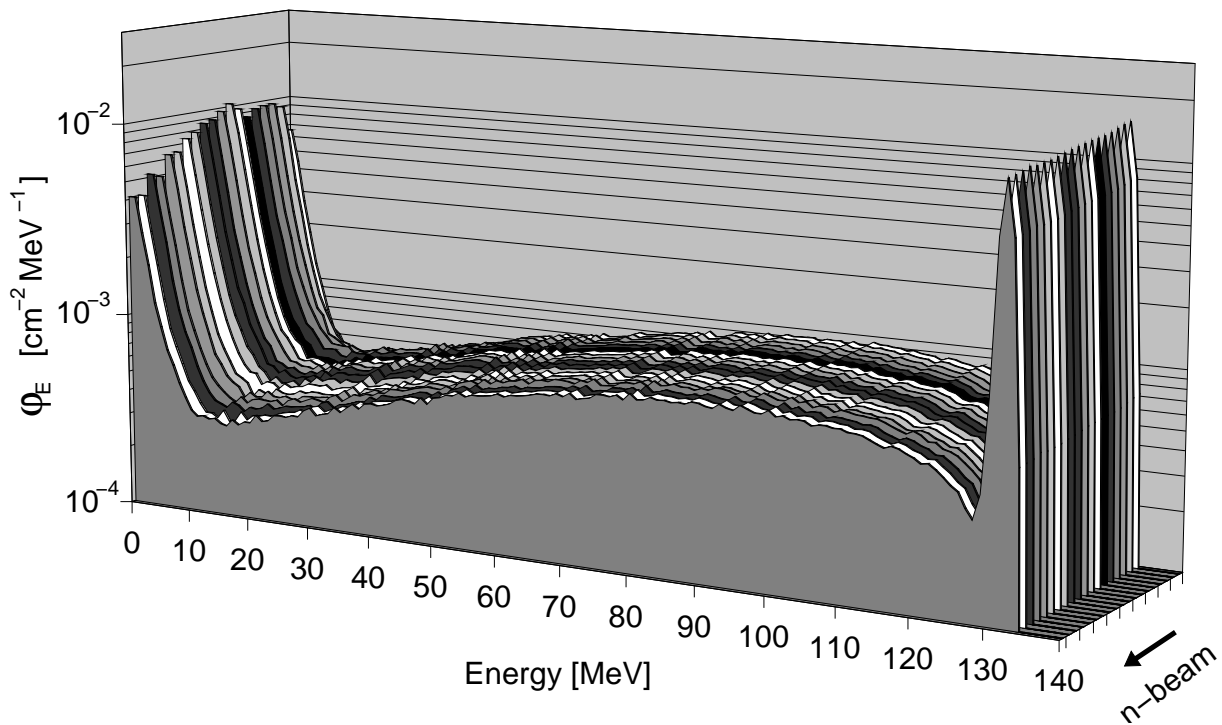
V rámci práce bol simulovaný transport neutrónov pre 6 ožarovaní kvázimonoenergetickým zväzkom neutrónov na urýchľovači v UCL/Louvaine-la-Neuve v Belgicku a 16 ožarovaní na urýchľovači v TSL/Uppsala vo Švédsku. Metóda použitá na odvodenie účinných prierezov vyžaduje detailný popis neutrónového poľa vo vnútri každého ožarovaného terča.

Keďže experimentálne určené spektrá neutrónov vo zväzku neboli k dispozícii pre všetky ožarovania, na výpočet kvázimonoenergetických spektier z reakcie ${}^7\text{Li}(p, n)$ vo všetkých takýchto prípadoch bol použitý semiempirický model [21]. Okrem toho bol na výpočet týchto spektier tiež aplikovaný programový balík LCS [10]. Ukázalo sa však, že nedokáže spoľahlivo reprodukovat' reálne spektrá. Na Obr. 4 sú znázornené spektrá napočítané obidvoma spôsobmi spolu s nameranými spektrami.



Obrázok 4: Porovnanie kvázimonoenergetických neutrónových spektier napočítaných pomocou LCS a pomocou semiempirického modelu s nameraným spektrom pre jedno z ožarovaní na UCL/Louvaine-la-Neuve (vľavo) a pre spektrum z práce [22] (vpravo).

Transport neutrónov v terčoch bol simulovaný pomocou LCS. Simulácia pokrývala toky neutrónov od termálnych energií až do energie 180 MeV a jej výsledkom bolo úplné neutrónové spektrum pre každú fóliu v terči pri danom ožarovaní. Na Obr. 5 sú znázornené nasimulované spektrá vo všetkých fóliách jedného z ožarovaní na TSL/Uppsala s energiou primárnych protónov 136.7 ± 1.0 MeV. Vývoj spektra pozdĺž terča závisí od materiálov jednotlivých fólií ako aj na poradí fólií v danom terči a vykazuje podobné vlastnosti pre všetky ožarovania. Moderácia neutrónov v terči ako aj produkcia nízkoenergetických sekundárnych neutrónov prispievajú k zvýšeniu toku neutrónov s energiou pod ≈ 50 MeV na začiatku terča. Zároveň však dochádza k absorpcii neutrónov. Pri nízkoenergetických



Obrázok 5: Nasimulované diferenciálne spektrá neutrónov vo všetkých fóliách terča pre jedno z ožarovaní na TSL/Uppsala s energiou primárnych protónov 136.7 ± 1.0 MeV normované na 1 primárny neutrón.

neutrónoch nastáva v prvej polovici terča rovnováha medzi produkciou a absorpciou, ktorá sa prejavuje ako maximum toku neutrónov. Ďalej v terči presahuje absorpcia neutrónov ich produkciu pre všetky energie a dochádza k poklesu toku neutrónov. Pre vysokoenergetické neutróny je pozorovaný len pokles toku pozdĺž celého terča.

Dobrá zhoda nasimulovaných a nameraných spektier neutrónov po prechode terčom poukazuje na správnosť použitej metódy a dáva predpoklady na získanie čo možno najpresnejších excitačných funkcií. Aj keď nie sú namerané účinné prierezy pre neutrónmi indukované spalačné jadrové reakcie väčšinou k dispozícii, prvé získané excitačné funkcie sú s existujúcimi dátami v dobrej zhode. V súčasnosti prebieha vyhodnocovanie dát z experimentov a výsledky budú zahŕňať excitačné funkcie pre približne 120 reakcií.

5 Prehľad najvýznamnejších dosiahnutých výsledkov

V nasledujúcich bodoch sú stručne a prehľadne zosumarizované najdôležitejšie výsledky dosiahnuté v rámci predkladanej dizertačnej práce.

- Bol vyvinutý a analyzovaný model na výpočet produkčných rýchlostí kozmogénnych nuklidov v reakciách neutrónového záchytu v mimozemských objektoch založený na Monte Carlo simulácii transportu častíc. Bolo ukázané, že pri (n, γ) reakciách zohrávajú významnú úlohu aj malé odchýlky v chemickom zložení ožarovaného materiálu a je preto potrebné vykonať nové simulácie vždy, keď sa objaví nový meteorit s nezvyčajným chemickým zložením.
- Bola určená hodnota stredného toku častíc galaktického kozmického žiarenia na zemskej orbite a na orbite meteoroidov vyplývajúca z produkčných rýchlostí záchytových produktov. Táto hodnota sa výrazne odlišuje od hodnôt vyplývajúcich z výpočtov modelujúcich spalogenú produkciu kozmogénnych nuklidov, pričom sú príčiny tohto rozdielu zatiaľ neznáme. V práci bolo po prvýkrát poukázané na tento problém.
- Bolo ukázané, že účinné prierezy pre spalačné jadrové reakcie sú kritickým parametrom pre modelovanie produkcie kozmogénnych nuklidov v zemskej atmosfére ako aj na zemskom povrchu. Keďže je dostupnosť dobrých účinných prierezov hlavne pre neutrónmi indukované jadrové reakcie zďaleka nedostačujúca, nové merania a vývoj kódov sú nevyhnutnou podmienkou na spoľahlivé použitie modelov v geochemických, kozmochemických a mnohých ďalších aplikáciách.
- Bol otestovaný semiempirický a Monte Carlo model na výpočet kvázimonoenergetického spektra neutrónov pochádzajúceho z reakcie ${}^7\text{Li}(p, n)$. Výsledky ukázali, že Monte Carlo programový balík LCS v súčasnosti nepopisuje uspokojivo jednotlivé kanály tejto reakcie a preto nemôže byť na výpočet kvázimonoenergetického spektra neutrónov použitý.
- Boli vykonané simulácie transportu neutrónov pre spolu 22 neutrónových ožarovaní mnohomateriálových terčov. Výsledné napočítané spektrá budú v rámci projektu HINDAS z piateho rámcového programu Európskej únie použité pri vývoji excitačných funkcií až do energií 180 MeV pre približne 120 neutrónmi indukovaných jadrových reakcií.

6 Summary

Simulations of the interactions of cosmic ray particles with the Solar system matter and particularly of the production of cosmogenic nuclides are necessary for the interpretation of measured data for a wide range of applications. This work concerns three main topics that belong to this field.

First, a model for the production of cosmogenic nuclides in neutron capture reactions in extraterrestrial matter is presented. A motivation for this part of work was the non-existence of systematics for (n, γ) reactions in meteoroids and planetary surfaces based on Monte Carlo simulation of particle transport. As such systematics exist for spallation production [17, 19] the aim was to extend it to n-capture reactions. The fluxes of particles in meteoroids of various sizes and bulk chemical compositions were simulated using the LCS [10], that includes the code MCNP [11] for the simulation of neutron transport down to thermal energies. For the calculation of the production rate of cosmogenic nuclides ^{36}Cl , ^{41}Ca , ^{60}Co , ^{59}Ni and ^{129}I as a function of the size of the meteoroid and depth below its surface the excitation functions from evaluated nuclear data files ENDF/B-VI [12] and JEF-2.2 [13] were used.

Production rates of investigated isotopes showed strong dependence on the size of the meteoroid as well as on the depth of the sample below the surface. Unlike spallation production, for neutron capture we found differences when considering different bulk chemical compositions of individual chondrite classes. For ordinary chondrites we obtained different values of the production rate ratio between L-, LL- and H-chondrites for each isotope. In meteorites with $R > 50$ cm the ratios were constant for all depths and sizes. The differences are mainly due to the different concentrations of light elements (like oxygen), that have better moderation abilities, as well as due to the different concentrations of iron, that has relatively high cross section for the absorption of thermal neutrons. The differences in production rates are for individual nuclides in range 2–30% depending on the shape of the excitation function for its production. For CI-chondrites, that contain hydrogen, the production rate depth profiles differ significantly from those in ordinary chondrites. The effects of bulk composition imply the necessity of new calculations for each meteorite class and for new falls or finds of meteorites with unusual composition. This is particularly important for meteorites containing hydrogen.

The only free parameter of the model, the mean galactic cosmic ray particle flux, can be determined by comparing calculated depth profiles to those measured in meteorites. As the suitable experimental depth profiles from meteorites are not available, we determined this parameter by adjusting calculated production rates to ^{41}Ca depth profiles measured in Apollo 15 drill core [14] and considering the heliocentric gradient of the GCR flux [15, 16]. The obtained value of $J_0(E > 10 \text{ MeV}) = 2.99 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ significantly differs

from both J_0 values obtained by adjusting the calculated spallation production rates of cosmogenic nuclides to the depth profiles from the L-chondrite Knyahinya in [18] and [17]. The reasons for this difference remain unknown and imply the necessity of further investigations in this field.

The comparison of the calculated production rates to the measured cosmogenic nuclide concentrations showed a good agreement which makes it possible to conclude that this model can be used with reasonable confidence for a wide range of applications. The model can easily be extended to other neutron capture produced nuclides which turns it into a general tool for the investigation of meteorites as well as other cosmic ray irradiated bodies in general.

Another covered topic is the investigation of the influence that the selection of the set of spallation cross sections has on the calculation of production rates of cosmogenic nuclides in the Earth's atmosphere and terrestrial surface rocks. The importance of this selection was shown before for extraterrestrial objects [6, 17]. Two sets of cross sections from the group of Rolf Michel and the group of Robert C. Reedy, both widely used in cosmochemical applications, show significant differences especially for neutron induced reactions. Whereas both these sets were used successfully to describe the spallogenic production of cosmogenic nuclides in meteoroids, for the Earth's atmosphere and terrestrial surface rocks these result in different production rate predictions. The differences arise mainly from differences in neutron excitation functions.

The atmospheric production of ^{10}Be and ^7Be calculated using Michel's cross sections is significantly higher than that calculated using Reedy's cross sections, so the two combinations "*cross sections* - J_0 " (Reedy - $J_0 = 4.8 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, Michel - $J_0 = 4.06 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) that give very similar production rate results for meteorites are not equivalent for the atmosphere. For the surface rocks the irradiation geometry and studied reactions are the same as for extraterrestrial matter and therefore also the agreement for the two cross section sets is much better than for the atmosphere.

Generally, the use of newer cross sections from the group of Michel usually leads to higher production rates even with lower J_0 value used. As the calculation using the Reedy's cross sections underestimated the in-situ production for most nuclides when compared to the experimental data [19], the calculation using Michel's cross sections results in better agreement. However, the uncertainties of the calculations are much higher than the differences arising from different cross sections used and also from the comparison to the measured data.

Presented investigation implies the necessity of further development of experimental and calculational methods for the improvement of the excitation functions for all relevant nuclear reactions.

The last part of the work concerns the Monte Carlo simulation of neutron transport for neutron activation experiments. The experiments were performed within the HINDAS project [9] in order to determine excitation functions for the production of residual radionuclides from a variety of target elements up to 175 MeV. Within this work, 6 irradiations performed at UCL/Louvain-la-Neuve, Belgium and 16 irradiations performed at TSL/Uppsala, Sweden using the quasi-monoenergetic neutron beam produced in reaction ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ were simulated.

The unfolding procedure used to obtain the excitation functions requires the detailed description of the neutron field inside each irradiated target. As the measured neutron spectrum in a beam was not always available, semi-empirical model [21] was used to calculate the quasi-monoenergetic neutron spectrum for such irradiations. The LCS [10] was also used for the Monte Carlo calculation of the primary neutron spectra but it proved not to be feasible to satisfactorily reproduce the measured neutron spectra.

The transport of neutrons inside the target was simulated using the LCS. The simulation covered neutron fluxes from thermal energies to energies up to 180 MeV and resulted in full neutron spectrum for all individual foils in target stack. The development of the neutron field along the stack depends on the individual foil materials used and their order in the stack for particular irradiation. Generally, it shows the same principal characteristics for all irradiations. Moderation of neutrons in the stack but mainly the production of low-energy secondary neutrons cause an increase of neutron fluxes with energies below ≈ 50 MeV at the beginning of the stack. At the same time neutrons of all energies can be absorbed while passing through the stack material. For low-energy neutrons an equilibrium between production and absorption occurs in the first half of the stack where the maximum in total neutron fluxes can be seen. Further in the stack the absorption outbalances the secondary neutron production for all energies and there is an overall decrease in neutron fluxes. For higher energies only the decrease can be seen.

A good agreement of the simulated and measured neutron spectra after passing the target stack verified the justification of the used method and make good conditions for obtaining the most accurate excitation functions possible. Even though the measured cross sections for neutron induced spallation reactions are usually not available, first evaluated excitation functions show good agreement with the few existing experimental data. Presently, the evaluations of the data from the irradiation experiments are in progress and the results comprise excitation functions for about 120 reactions.

Referencie

- [1] M. Honda, Spallation Products Distributed in a Thick Iron Target Bombarded by 3-Bev Protons, *J. Geophys. Res.* **67**, 4847 (1962).
- [2] D. Lal and B. Peters, Cosmic ray produced radioactivity on the Earth, in *Handbuch der Physik XLVI/2*, pages 551–612, 1967.
- [3] P. Eberhardt, J. Geiss, and H. Lutz, Neutrons in meteorites, in *Earth Science and Meteoritics*, edited by J. Geiss and E. D. Goldberg, pages 143–168, North Holland, Amsterdam, 1963.
- [4] R. C. Reedy and J. R. Arnold, Interaction of solar and galactic cosmic-ray particles with the Moon, *J. Geophys. Res.* **77**, 537–555 (1972).
- [5] K. O’Brien, Secular variations in the production of cosmogenic isotopes in the Earth’s atmosphere, *J. Geophys. Res.* **84**, 423–431 (1979).
- [6] J. Masarik and R. C. Reedy, Effects of bulk composition on nuclide production processes in meteorites, *Geochim. Cosmochim. Acta* **58**, 5307–5317 (1994).
- [7] J. Masarik and J. Beer, Simulation of particle fluxes and cosmogenic nuclide production in the Earth’s atmosphere, *J. Geophys. Res.* **104**, 12099–12112 (1999).
- [8] I. Leya, H.-J. Lange, S. Neumann, R. Wieler, and R. Michel, The production of cosmogenic nuclides in stony meteoroids by galactic cosmic ray particles, *Meteorit. Planet. Sci.* **35**, 259–286 (2000).
- [9] A. Koning, H. Beijers, J. Benlliure, O. Bersillon, J. Blomgren, J. Cugnon, M. Duijvestijn, P. Eudes, D. Filges, F. Haddad, S. Hilaire, C. Lebrun, F.-R. Lecolley, S. Leray, J.-P. Meulders, R. Michel, R. Neef, R. Nolte, N. Olsson, R. Ostendorf, E. Ramstroem, K.-H. Schmidt, H. Schuhmacher, I. Slypen, H.-A. Synal, and R. Weinreich, HINDAS – A European nuclear data program for accelerator-driven systems, *J. Nucl. Sci. Techn.*, Suppl. 2 , 1161–1166 (2002).
- [10] R. E. Prael and H. Lichtenstein, *User guide to LCS: The LAHET Code System*, Los Alamos National Laboratory report, LA-UR-89-3014, 1989.
- [11] J. F. Breismeister, *MCNP—A Monte Carlo N-Particle Transport Code, version 4B*, Los Alamos National Laboratory report, LA-12625-M, 1997.
- [12] V. McLane and members of the cross section evaluation working group, *ENDF-201, ENDF/B-VI summary documentation supplement*, NNDC BNL report, BNL-NCS-17541, 1991, <http://www.nndc.bnl.gov/nndc/endl/>.

- [13] J. Rowlands, *The JEF-2.2 nuclear data library*, OECD/NEA Data Bank, JEFF report 17, 2000, <http://t2.lanl.gov/cgi-bin/nuclides/jefind>.
- [14] K. Nishiizumi, D. Fink, J. Klein, R. Middleton, J. Masarik, R. C. Reedy, and J. R. Arnold, Depth profile of ^{41}Ca in an Apollo 15 drill core and the low-energy neutron flux in the Moon, *Earth Planet. Sci. Lett.* **148**, 545–552 (1997).
- [15] J. A. van Allen and B. A. Randall, Interplanetary cosmic ray intensity – 1972–1984 and out to 32 AU, *J. Geophys. Res.* **90**, 1399–1412 (1985).
- [16] W. R. Webber and J. A. Lockwood, Interplanetary cosmic-ray radial and latitudinal gradients derived in 1984 using IMP 8, Voyager, and Pioneer data, *Astrophys. J.* **302**, 511–516 (1986).
- [17] I. Leya, H.-J. Lange, M. Lüpke, U. Neupert, R. Daunke, O. Fanenbruck, R. Michel, R. Rösel, B. Meltzow, T. Schiekkel, F. Sudbrock, U. Herpers, D. Filges, G. Bonani, B. Dittrich-Hannen, M. Suter, P. W. Kubik, and H.-A. Synal, Simulation of the interaction of GCR protons with meteoroids: On the production of radionuclides in thick gabbro and iron targets irradiated isotropically with 1.6 GeV protons, *Meteorit. Planet. Sci.* **35**, 287–318 (2000).
- [18] R. C. Reedy, J. Masarik, K. Nishiizumi, J. R. Arnold, R. C. Finkel, M. W. Caffee, J. Southon, A. J. T. Jull, and D. J. Donahue, Cosmogenic-radionuclide profiles in Knyahinya: New measurements and models, in *Lunar Planet. Sci. Conf. Abstracts*, volume 24, pages 1195–1196, 1993.
- [19] J. Masarik and R. C. Reedy, Terrestrial cosmogenic-nuclide production systematics calculated from numerical simulations, *Earth Planet. Sci. Lett.* **136**, 381–395 (1995).
- [20] *GEANT – detector description and simulation tool*, CERN Program Library W5013, 1994.
- [21] S. Neumann, *Aktivierungsexperimente mit Neutronen mittlerer Energie und die Produktion kosmogener Nuklide in extraterrestrischer Materie*, PhD thesis, Universität Hannover, 1999.
- [22] N. Nakao, Y. Uwamino, T. Nakamura, T. Shibata, N. Nakanishi, M. Takada, E. Kim, and T. Kurosawa, Development of a quasi-monoenergetic neutron field using the $^7\text{Li}(p, n)^7\text{Be}$ reaction in the 70–210 MeV energy range at RIKEN, *NIMA* **420**, 218–231 (1999).

Zoznam publikácií

- D. Kollár, J. Masarik, Numerical simulation of particle fluxes and cosmogenic nuclide production in Earth atmosphere, *Acta Physica Universitatis Comenianae* **XL**, 81–89, 1999
- J. Masarik, D. Kollár, S. Vanya, Numerical simulation of in-situ production of cosmogenic nuclides: Effects of irradiation geometry, *NIMB* **172**, 786–789, 2000
- D. Kollár, I. Leya, J. Masarik, R. Michel, Calculation of cosmogenic nuclide production rates in the Earth atmosphere and in terrestrial surface rocks using improved neutron cross sections, *Meteoritics & Planetary Science* **35** Suppl. (Abstract), A90, 2000
- D. Kollár, J. Masarik, R. C. Reedy, Cosmogenic radionuclide profiles in Tagish Lake meteorite, *Meteoritics & Planetary Science* **36** Suppl. (Abstract), A103, 2001
- W. Glasser, R. Michel, S. Neumann, H. Schuhmacher, V. Dagendorf, R. Nolte, U. Herpers, A. N. Smirnov, I. Ryzhov, A. V. Prokofiev, P. Malmborg, D. Kollár, J.-P. Meulders, Cross sections for the production of residual nuclides at medium energies relevant for accelerator driven technologies, *NEA report, INDC(Ger)-048*, 26–33, 2002
- W. Glasser, R. Michel, S. Neumann, H. Schuhmacher, V. Dagendorf, R. Nolte, U. Herpers, A. N. Smirnov, I. Ryzhov, A. V. Prokofiev, P. Malmborg, D. Kollár, J.-P. Meulders, Cross sections for the production of residual nuclides by medium-energy neutrons, *TSL progress report 2000–2001*, 22–25, Uppsala, Sweden, 2002
- W. Glasser, R. Michel, S. Neumann, H. Schuhmacher, V. Dagendorf, R. Nolte, U. Herpers, A. N. Smirnov, I. Ryzhov, A. V. Prokofiev, P. Malmborg, D. Kollár, J.-P. Meulders, Radionuclide Production from Lead by Neutron-induced Reactions up to 175 MeV, *Journal of Nucl. Sci. and Technology*, Suppl. 2, 373–376, 2002
- D. Kollár, J. Masarik, K. Nishiizumi, R. C. Reedy, Monte Carlo simulation of cosmogenic nuclide production in the Brenham pallasite, *34th Lunar Planet. Sci. Conf. abstract*, 1670, 2003
- D. Kollár, R. Michel, J. Masarik, Numerical simulation of neutron capture production of cosmogenic nuclides in stony meteorites, *Meteoritics & Planetary Science* **38** Suppl. (Abstract), A89, 2003
- K. C. Welten, K. Nishiizumi, D. J. Hillegonds, R. C. Finkel, B. Lavielle D. Kollár, J. Masarik, Short cosmic-ray exposure ages of the Horse Creek mesosiderite and

Pitts iron meteorite, *Meteoritics & Planetary Science* **38** Suppl. (Abstract), A121, 2003

D. Kollár, R. Michel, J. Masarik, Monte Carlo simulation of GCR neutron capture production of cosmogenic nuclides in stony meteorites, *Meteoritics & Planetary Science*, 2003, submitted