

Vedecká rada Fakulty elektrotechniky a informatiky  
Slovenskej technickej univerzity

---

**Ing. Ondrej Szöllös**

**Autoreferát dizertačnej práce**

## **Zdroj rádioaktívnych neutrón–nadbytočných jadier**

na získanie vedecko–akademickej hodnosti  
philosophiae doctor  
v odbore doktorandského štúdia  
11–24–9 jadrová a subjadrová fyzika

Bratislava 2005

Dizertačná práca bola vypracovaná v externej forme doktorandského štúdia na  
Fakulte jadrovej fyziky a techniky Slovenskej technickej univerzity

Predkladateľ: Ing. Ondrej Szöllös

Školiteľ: Ing. Ján Kliman, CSc.  
Fyzikálny ústav SAV  
Dúbravská cesta 9  
845 11 Bratislava

Oponenti: 1. Prof. Ing. Vladimír Nečas, CSc.  
Katedra jadrovej fyziky a techniky, FEI STU  
Ilkovičova 3, 812 19, Bratislava

2. Doc. RNDr. Matej Florek, CSc.  
Katedra jadrovej fyziky a biofyziky, FMFI UK  
Mlynská Dolina, 842 48, Bratislava

3. Ing. Štefan Gmuca, CSc.  
Fyzikálny ústav SAV  
Dúbravská cesta 9  
845 11 Bratislava

Autoreferát bol rozoslaný dňa .....

Obhajoba dizertačnej práce sa koná ..... o ..... h

na .....  
pred komisiou pre obhajobu dizertačnej práce v odbore doktorandského štúdia  
vymenovanou predsedom spoločnej odborovej komisie vo vednom odbore 11–24–9  
jadrová a subjadrová fyzika.

Predseda spoločnej odborovej komisie:  
Prof. RNDr. Jozef Masarik, DrSc.  
Katedra jadrovej fyziky, FMFI UK  
Mlynská Dolina, 842 48, Bratislava

# 1 Úvod

Posledných niekoľko rokov sa pozornosť fyzikov upriamuje na urýchlenie rádioaktívnych prvkov a experimentálnu prácu s nimi. Ich použitie predstavuje veľmi významné rozšírenie možností skúmania jadrovej hmoty.

Výsledky posledných rokov dokazujú, že charakteristiky exotických jadier sa často odlišujú od našich predstáv, získaných výskumom stabilných jadier. Za exotické jadrá považujeme protón–nadbytočné alebo neutrón–nadbytočné rádioaktívne jadrá vzdialené od osi stability. Exotické jadrá tvoria viac ako 80% všetkých jadier. Aj z tohto dôvodu sa v modernej experimentálnej jadrovej fyzike presadzuje v posledných rokoch trend vyrábať rádioaktívne iónové zväzky a pomocou jadrových reakcií s nimi získavať nové informácie o jadrovej štruktúre, ktoré sú nedostupné pri výskume rádioaktívneho rozpadu.

Zariadenia na výrobu rádioaktívnych iónových zväzkov môžeme rozdeliť podľa spôsobu produkcie sekundárneho zväzku do troch základných kategórií:

1. **Technika ISOL „Isotope Separation On–Line“.** Táto technika produkuje rádioaktívne jadrá zväzkami ľahkých nabitých častíc alebo neutrónov veľkých intenzít s energiou od 30 MeV do  $1 \div 3$  GeV. Takéto projekty umožňujú použitie terčov veľkej hrúbky na dosiahnutie vysokých intenzít sekundárnych zväzkov, majú však praktické obmedzenie na polčas rozpadu rádioaktívnych jadier  $T_{1/2} \approx 1 \div 25$  s v dôsledku difúzie a efúzie z matrice terča a ionizačných procesov. V súčasnosti je intenzita primárneho zväzku limitovaná depozitom energie v produkčnom terči ( $\sim 10$  kW) [1]. Získané produkty sa transportujú (difúziou, prúdom plynu – *jet*) do iónového zdroja, kde zároveň dochádza k chemickej separácii. Po extrakcii sa elektromagnetickou separáciou selektuje požadovaná hmotnosť. Nízkoenergetický zväzok sa potom zvyčajne dourýchli na potrebnú energiu.
2. **Fragmentácia „In-Flight“.** Metóda je určená na produkciu jadier vzdialených od osi stability zväzkami ťažkých iónov (pováčšine  $^{238}\text{U}$ ) urýchlených do relativistických energií. Používajú sa zväzky vysokých intenzít, prakticky je možné dosiahnuť úroveň  $\sim 100$  kW pri použití rýchle rotujúcich terčov a pri dostatočne rozptýlených primárnych zväzkoch. Hlavnými limitujúcimi faktormi je maximálne dosiahnuteľný výkon súčasných urýchľovačov a nároky na radiačnú ochranu. Výhodou oproti ISOL – metóde je krátky čas separácie ( $\sim \mu\text{s}$ ) a veľká energia fragmentov, ktoré môžu byť priamo použité na vyvolanie sekundárnych jadrových reakcií.
3. **Jadrový reaktor.** Produkcia neutrón–nadbytočných rádioaktívnych zväzkov je v tomto prípade založená na štiepení materiálu terča tepelnými neutrónmi v reaktoroch s vysokým tokom neutrónov. Obmedzenia intenzity

sekundárných zväzkov vyplývajú z požiadaviek na tepelnú záťaž produkčného terča ( $\sim 10 \text{ kW/cm}^3$ ). Nezanedbateľným faktorom je aj zložitosť vývodu zväzku z aktívnej zóny reaktora a výmena terča, časti jeho chladenia, iónového zdroja a transportného iónovodu.

Jedným z projektov na produkciu neutrón–nadbytočných rádioaktívnych jadier je aj DRIBs (**D**ubna **R**adioactive **I**on **B**eams) [2]. Komplex DRIBs je budovaný na základe cyklotrónov U400, U400M a urýchľovača elektrónov — mikrotrónu MT–25. Tieto zariadenia sa osvedčili dlhoročným využívaním v Laboratóriu jadrových reakcií Spojeného ústavu jadrového výskumu v Dubne. Projekt sleduje dva základné ciele, jeho realizácia je rozdelená na dve etapy:

- I. **etapa** produkcia zväzkov ľahkých exotických jadier v kombinácii cyklotrónov U400M—U400, ukončená v decembri 2002,
- II. **etapa** produkcia neutrón–nadbytočných rádioaktívnych iónových zväzkov produktov štiepenia v prepojení mikrotrónu MT–25 a cyklotrónu U400.

## 1.1 Ciele práce

Cieľom dizertačnej práce bolo preskúmať možnosť získania zväzkov neutrón–nadbytočných jadier využitím existujúcich urýchľovačov v SÚJV Dubna, na báze urýchľovača elektrónov—mikrotrónu MT–25. Vykonať výpočty a experimenty a na ich základe navrhnúť optimálne riešenie zdroja neutrón–nadbytočných jadier využitím reakcie fotoštiepenia indukovaného brzdným žiarením elektrónov. Hlavné ciele práce je možné zhrnúť v nasledujúcich bodoch:

- analyzovať možnosť vytvorenia zdroja exotických neutrón–nadbytočných jadier využitím reakcie fotoštiepenia,
- vybrať optimálne využiteľný terčový materiál,
- odhadnúť možné výťažky jednotlivých izotopov neutrón–nadbytočných jadier a porovnať ich s experimentálne získanými výsledkami,
- určiť optimálne geometrické rozmery a materiál brzdneho a štiepneho terčov s ohľadom na ich realizáciu,
- určiť kumulovanú aktivitu štiepných fragmentov, aktinoidov a trícia v produkčnom terči, ktorá bude podkladom pre zhodnotenie radiačnej bezpečnosti zdroja neutrón–nadbytočných jadier.

## 2 Výpočtová časť

### 2.1 Výťažky fragmentov z fotoštiepenia

Na výpočet výťažkov fragmentov štiepenia bol použitý  $Z_p$  model Wahla [3, 4]. Je to jednoduchý empirický model, založený na výpočte najpravdepodobnejšieho náboja. Popisuje experimentálne dáta a systematickosť nábojového rozdelenia v produktoch štiepenia pomocou jednoduchých matematických funkcií. Je vhodný na odhadnutie nezávislých výťažkov produktov štiepenia, ktoré ešte neboli experimentálne zmerané. Je však potrebné poznať plný rozsah hmotnostného rozdelenia  $Y(A)$  a, pre presnejší odhad, aj závislosť multiplicity emitovaných neutrónov  $\bar{\nu}_{A^*}$  od predneutrónovej hmotnosti fragmentu  $A^*$  a odchýlku  $\Delta Z$  najpravdepodobnejšieho náboja  $Z_p$  od stredného náboja  $Z_{UCD}$  vypočítaného na základe nezmeneného nábojového rozdelenia (UCD) v zloženom jadre a fragmentoch. Hmotnostné rozdelenie výťažkov bolo získané aproximáciou experimentálne nameraných hodnôt z prác [5, 6, 7], s ohľadom na jemnú štruktúru v oblastiach  $A \approx 92$  a  $A \approx 133$  opísaných v práci [5]. Chýbajúce body boli získané pod podmienkou, že výťažok ľahkého fragmentu  $Y(A_L)$  je rovnaký ako výťažok komplementárneho ťažkého fragmentu  $Y(A_{H_c})$  (platí pre binárne štiepenie). Rozdelenie bolo vypočítané pre interval hmotností  $79 \leq A \leq 155$  s parametrami z tabuľky 1, pričom pomer pík–dolina P/V bol pre opis symetrickej časti prevzatý z práce [7]. Stredný počet emitova-

Tabuľka 1: Parametre hmotnostného rozdelenia výťažkov použité pri výpočte a porovnané s hodnotami z prác [7, 11]: P/V — pomer pík–dolina, MLM — stredná hmotnosť maxima na polovičnej šírke pre ľahkú časť rozdelenia, MHM — stredná hmotnosť maxima na polovičnej šírke pre ťažkú časť rozdelenia, FWHM — plná šírka na polovičnej výške pre ľahkú aj ťažkú časť rozdelenia,  $\bar{\nu}$  — stredný počet emitovaných neutrónov.

parameter	táto práca	práca [7]	práca [11]
P/V	19,0	$19,0 \pm 2,0$	$16,0 \pm 0,5$
MLM (amu)	96,8	$97,1 \pm 0,3$	$99,3 \pm 0,5$
MHM (amu)	137,6	$138,0 \pm 0,3$	$138,6 \pm 0,5$
FWHM (amu)	15,3	$15,6 \pm 0,4$	$16,4 \pm 0,1$
$\bar{\nu}$	3,5	$3,0 \pm 0,4$	

ných neutrónov  $\bar{\nu}$  bol vypočítaný z rovnice [8]:  $\bar{\nu}(E_{exc.}) = \bar{\nu}_0 + \frac{d\nu}{dE_{exc.}} \Delta E$ , pričom stredná excitačná energia štiepiaceho sa jadra  $^{238}\text{U}$  indukovaná brzdným žiarením elektrónov s energiou 25 MeV je  $E_{exc.} \approx 12,7$  MeV. Tvar emisnej krivky neutrónov  $\bar{\nu}_{A^*}$  bol extrapolovaný z hodnôt emisných kriviek pre fotoštiepenie  $^{238}\text{U}$  brzdným žiarením elektrónov s energiou  $E_e = 20$  MeV a  $E_e = 30$  MeV publikovaných v

práci [9] a s energiou  $E_e = 25$  MeV z práce [10]. Výsledná krivka bola normovaná na vypočítaný stredný počet emitovaných neutrónov ( $\bar{\nu}(12,7 \text{ MeV}) \approx 3,5$ ). Tento postup bol zvolený v dôsledku nezhody v hodnotách stredného počtu emitovaných neutrónov na jedno štiepenie publikovaných v práci [10] ( $\bar{\nu} \approx 3,0$ ) s výsledkami z práce [9].

Závislosť  $\Delta Z$  od hmotnosti fragmentu  $A$  bola počítaná z hodnôt pre fragmenty vznikajúce pri fotoštiepení  $^{238}\text{U}$  brzdným žiarením elektrónov s energiami  $E_e = 20$  MeV a  $E_e = 30$  MeV [9]. Získané hmotnostné rozdelenie je normované na 200%.

Nezávislé výťažky fragmentov štiepenia boli získané z rovnice:  $IY(A, Z) = FIY(A, Z) \cdot Y(A) \cdot c_f$ , kde  $c_f$  je normalizačná konštanta zohľadňujúca počet štiepení (integrálny výťažok štiepenia):  $100c_f = \int_{E_{th}}^{E_e} \sigma_{\gamma, F}(k) W_e(k) dk$ , kde  $E_{th}$  je prahová energia fotoštiepenia,  $E_e$  je energia elektrónov (maximálna energia  $\gamma$ -kvánt),  $\sigma_{\gamma, F}(k)$  je mikroskopický účinný prierez fotoštiepenia a  $W_e(k)$  je váhová funkcia proporcionálna brzdnému  $\gamma$ -spektru elektrónov s energiou  $E_e$ .

Výťažky fragmentov vznikajúcich v izomerných stavoch boli získané pomocou známych *izomerných pomerov* —  $g$  [12], čo je pomer izomerného výťažku  $Y_m$  ku výťažku daného izotopu v základnom stave  $Y_g$ . Pre výťažok izotopu v izomernom stave platí:  $Y_m(A, Z) = Y(A, Z) - \frac{Y(A, Z)}{g+1}$ .

## 2.2 Rozbiehavosť zväzku a hustota štiepenia

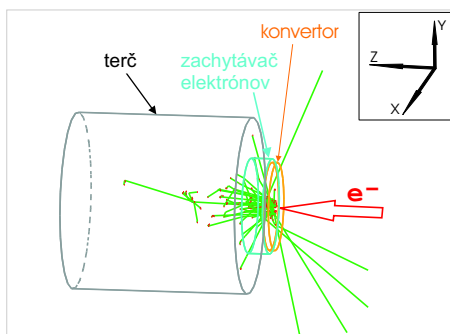
Výpočet energetických spektier brzdného žiarenia a jeho uhlového rozdelenia bol prevádzaný pomocou softvérového balíka Geant4 [13, 14]. Geant4 je tvorený súborom programátorských knižníc v jazyku C++ [15] určených na simulácie fyzikálnych procesov vo fyzike vysokých energií, v nukleárnej medicíne, rádiológii, či urýchľovačovej fyzike. Obsahuje sadu nástrojov na transport častíc v materiále, simuláciu detektorových odoziev, modelovanie geometrie experimentálneho usporiadania, ako aj sadu knižníc na simuláciu veľkého množstva fyzikálnych procesov v širokom rozsahu energií s možnosťou výberu rôznych fyzikálnych modelov. Súčasťou balíku sú tiež generátory náhodných čísel, databázy účinných prierezov, fyzikálnych jednotiek a konštánt. Využívaním rozšírených programovacích techník a objektovo – orientovaných technológií sa docieľuje vysoká transparentnosť hierarchickej štruktúry programového vybavenia umožňujúca užívateľovi ľahšie pochopiť štruktúru programu a implementáciu nových a rozširovanie už implementovaných fyzikálnych procesov. Modulárna architektúra zároveň dovoľuje užívateľovi využívať iba tie časti kódu (triedy), ktoré potrebuje. Takýmto spôsobom je možné dosiahnuť výraznú úsporu strojového času ako aj prispôbovať simuláciu k podmienkam experimentu. Simulácie brzdného žiarenia vychádzajú z výsledkov prác [16, 17, 18]. Celková nepresnosť simulácií energetických spektier a uhlového rozdelenia by v oblasti energií elektrónov  $E_e = 0 \div 50$  MeV nemala prevyšovať

10%. Simulácia bola vykonaná pre zväzok elektrónov s Gaussovským rozdelením intenzity po šírke s rozmerom na polovičnej výške  $FWHM = 6$  mm.

Na odhadnutie rozmerov terča a tepelného zaťaženia je potrebné poznať priestorovú hustotu štiepenia v danom materiáli. Na simuláciu priestorovej hustoty bola vyvinutá nová trieda do softvérového balíka Geant4. Trieda implementuje proces fotoštiepenia  $^{238}\text{U}$  v intervale energií  $5 \leq E_\gamma < 105$  MeV. Mikroskopický účinný prierez  $\sigma_{\gamma,F}(E)$  bol odvodený od experimentálne získaných hodnôt publikovaných v prácach [19, 20, 21, 22, 23, 24, 25, 26, 27]. Z dôvodu spojitosti spektra brzdného žiarenia bolo potrebné aproximovať účinný prierez spojitými funkciami. Uvedený energetický interval bol rozdelený na dve časti. V oblasti GDR v intervale energií  $5 \leq E_\gamma < 30$  MeV je aproximovaný dvomi lorentziánmi, v intervale energií  $30 \leq E_\gamma < 105$  MeV je považovaný za konštantný  $\sigma_{\gamma,F} = 17,2$  mb.

Geometrické usporiadanie simulácie je zobrazené na obrázku 1.

Boli simulované hustoty fotoštiepenia v terčoch z rôznych materiálov ako aj pre rôzne voľby konvertora. Plánované usporiadanie produkčného terča pozostáva z konvertora elektrónov (brzdného terča) a štiepneho materiálu s veľkou difúznou schopnosťou produktov štiepenia. Na ocenenie vplyvu materiálu konvertora na hustotu štiepenia boli vykonané simulácie bez konvertora, s priamym brzdením elektrónov v produkčnom terči, s volfrámovým konvertorom a konvertorom z kovového uránu prírodného zloženia. Hrúbka cylindrického konvertora bola vybraná vzhľadom k radiačnej dĺžke  $X$  v danom materiáli [28]. Pre každú konfiguráciu bolo simulovaných  $10^8$  primárnych častíc (elektrónov) s energiou  $E_e = 25$  MeV a  $E_e = 50$  MeV. Vlastnosti primárneho zväzku boli rovnaké ako pri simulácii rozbíhavosti  $\gamma$ -zväzku. Bola použitá geometria nekonečne veľkého cylindrického terča, pričom z dôvodov časovej optimalizácie kódu sa hrúbka a polomer terča ohraničili ( $H = R = 10^4$  mm). Tento objem zabezpečil prakticky úplné pohltenie štiepných  $\gamma$ -kvant ( $E_\gamma > 5$  MeV). Všetky  $\gamma$ -kvantá opúšťajúce objem terča alebo s podprahovou energiou  $E_\gamma < E_{th} \approx 5$  MeV sa považovali za stratené.



Obrázok 1: Schématické usporiadanie simulácie hustoty fotoštiepenia v produkčnom terči.

## 2.3 Kumulovaná aktivita v terči

Poznanie kumulovanej aktivity v objeme terča je dôležité s ohľadom na celkovú radiačnú situáciu, ktorá určuje spôsob manipulácie s terčom pri jeho práci, výmene a likvidácii. Na výpočet kumulovanej aktivity bol zostrojený program v jazyku C++. Počíta časový priebeh aktivity pre viac ako 600 izotopov vrátane ich izomérnych stavov. Program počíta s tromi triedami jadier:

- dcérske jadrá, vznikajúce v dôsledku emisie oneskorených neutrónov,
- jadrá v izomerných stavoch,
- jadrá v základnom stave.

Vstupnými parametrami sú nezávislé výťažky jednotlivých izotopov, čas ožarovania a celkový sledovaný čas vymierania terča. Výsledkom je časová závislosť aktivity jednotlivých izotopov a ich množstvo kumulované v produkčnom terči. Použité rozpadové konštanty ako aj pravdepodobnosti jednotlivých typov rozpadu sú z databázy [12].

## 3 Experimentálna časť

### 3.1 Výťažky fragmentov

Vypočítané hodnoty nezávislých výťažkov štiepenia  $^{238}\text{U}$  brzdným žiarením s maximálnou energiou 25 MeV boli experimentálne overené pre izotopy kryptónu a xenónu. Tieto inertné plyny boli vybrané z dôvodu jednoduchej separácie od ostatných produktov štiepenia pri použití metodiky prenosu prúdom nosného plynu s nasledovným vymrazovaním inertných plynov v kryostate pri teplote kvapalného dusíka. Zdrojom brzdného žiarenia bol zväzok elektrónov urýchlených na mikrotróne MT-25 a následne zabrzdzený vo volfrámovom konvertore hrúbky 4 mm. Zväzok elektrónov mal v reze formu elipsy s priemerom 6 mm vo vertikálnom a 7 mm v horizontálnom smere. Terčíková komora bola cylindrického tvaru s vnútorným priemerom 40 mm a hĺbkou 30 mm. Dve okná prepúšťajúce  $\gamma$ -žiarenie mali priemer 25 mm na vstupnej strane otočenej ku konvertoru a 40 mm na výstupnej. Symetricky po priemere oproti sebe boli umiestnené otvory pre vstup a výstup nosného plynu. Nosným plynom pre transport xenónu slúžil vysokočistý argón pri pretlaku 100 kPa. V neskôr prevádzaných meraniach výťažkov izotopov kryptónu sa použilo na prenos produktov hélíum pri nezmenených zvyšných podmienkach. Produkčné terče boli vyrobené z vrstvy  $\text{U}_3\text{O}_8$  s hrúbkou  $3 \text{ mg/cm}^2$  nanosenou na hliníkovú podložku s hrúbkou  $20 \mu\text{m}$ . Boli použité dva terče umiestnené v oknách komory a oddelené od vonkajšej atmosféry hliníkovými fóliami hrúbky  $100 \mu\text{m}$ .



Na odvod plynu a transport štiepných produktov sa použila teflonová rúrka s vnútorným priemerom 2 mm a dĺžkou 10 m. Na vstupe do kapiláry bol umiestnený vláknový filter. Kryostat bol vyrobený z medenej špirálovite zohnutej rúrky s celkovou dĺžkou 1,5 m, s vnútorným priemerom 3 mm a hrúbkou steny 0,5 mm. Z dôvodu zamedzenia aktivácii medi neutrónami a  $\gamma$ -žiarením vznikajúcimi pri štiepení, bol kryostat umiestnený v inej miestnosti za 2 m hrubou betónovou stenou vo vzdialenosti 10 m od terčíkovej komory. V nosnom plyne zabrzdené štiepne produkty boli transportované po kapiláre do kryostatu, do ktorého sa bez strát dostali prakticky iba inertné plyny Kr a Xe. Ostatné atómy, vznikajúce ako primárne produkty štiepenia alebo v procese  $\beta$ -rozpadu, sa absorbovali na filtri a na stenách kapiláry. Doba transportu produktov sa počítala z rýchlosti toku nosného plynu. Po dosiahnutí kryostatu v ňom atómy Kr a Xe kondenzovali a zhromažďovali sa, tak ako aj produkty ich  $\beta$ -rozpadu. Množstvo jadier sa zisťovalo z intenzity  $\gamma$ -žiarenia sprevádzajúceho  $\beta$ -rozpad a následne aj počet jadier ich predchodcov, čiže nezávislé výťažky Kr a Xe. Nakoľko sú polčasy rozpadov predchodcov vybraných izotopov xenónu a kryptónu väčšie ako doba difúzie k stenám komory, môžeme predpokladať, že predchodcovia sa absorbujú na stenách komory a neprišievajú do meraného výťažku xenónu a kryptónu unášaného prúdom plynu do kapiláry. Po ožarovaní sa kryostat oddelil od terčíkovej komory a preniesol sa k Ge(Li)-detektoru s objemom 30 cm<sup>3</sup>, kde sa merali  $\gamma$ -spektrá a zisťovali výťažky izotopov s polčasmi rozpadu od 10 minút do niekoľkých desiatok hodín. Z nameraných  $\gamma$ -spektier boli vypočítané plochy píkov produktov  $\beta$ -rozpadu izotopov Kr a Xe, z ktorých je možné počítať nezávislé výťažky pomocou rovnice:  $Y(A) = \frac{S(1+\alpha)f(t)N}{tI_\gamma\epsilon_1\epsilon_2\epsilon_3\eta}$ , kde  $S$  je plocha pod píkom po odčítaní pozadia,  $t$  je čas merania  $\gamma$ -spektra,  $\epsilon_1$  je efektivita prenosu produktov štiepenia po kapiláre,  $\epsilon_2$  je efektivita absorpcie na rúrke kryostatu,  $\epsilon_3$  – efektivita registrácie  $\gamma$ -kvánt detektorom,  $\eta$  – relatívna intenzita  $\gamma$ -čiar pri  $\beta$ -rozpade meraného izotopu,  $\alpha$  – interný koeficient konverzie  $\gamma$ -žiarenia,  $f(t)$  – koeficient rozpadu jadier Kr a Xe pri transporte kapilárou, kumulácie a rozpadu meraných izotopov,  $I_\gamma$  – intenzita  $\gamma$ -kvánt brzdného žiarenia indukujúca štiepenie <sup>238</sup>U a  $N$  je počet jadier <sup>238</sup>U v terčovej fólii. Nakoľko plochy píkov meraných izotopov boli získané počas jedného ožarovania a merania, môžeme počítať relatívne výťažky zanedbaním koeficientov  $\epsilon_1$ ,  $\epsilon_2$  a  $N$ .

### 3.2 Rozbiehavosť zväzku

Uhlová rozbiehavosť  $\gamma$ -zväzku bola experimentálne overená pomocou reakcie <sup>58</sup>Ni( $\gamma$ , n)<sup>57</sup>Ni, ktorej energetický prah je  $E_{th} = 12,2$  MeV. Na monitorovanie hustoty fotónov bol použitý najintenzívnejší prechod  $\beta$ -rozpadu <sup>57</sup>Ni s energiou prechodu  $E_{\gamma 1} = 1378$  keV a polčasom rozpadu  $T_{1/2} = 35,6$  hod. Zdrojom brzdné-

ho žiarenia slúžil zväzok elektrónov energie  $E_e = 25$  MeV a intenzity  $I_e = 14$   $\mu$ A z mikrotrónu MT-25. Vo vzdialenosti 14 cm od konvertora bol ožarovaný niklový pliešok veľkosti  $(60 \times 60)$  mm<sup>2</sup> a hrúbky 50  $\mu$ m. Po ožiarení sa pliešok rozstrihal na štvorčeky veľkosťou  $(5 \times 5)$  mm<sup>2</sup> a postupne sa merala indukovaná aktivita detektorom Ge(Li) s objemom 28 cm<sup>3</sup>. Po prepočítaní na referenčný čas, plocha píku  $E_{\gamma 1} = 1378$  keV odmeraná pre štvorček (x, y) udáva relatívnu intenzitu  $\gamma$ -zväzku v danom bode (v prípade, že v meranom uhlovom rozsahu považujeme energetické spektrum málo závislé na uhle výletu  $\gamma$ -kvánt). Namerané intenzity zodpovedajú energiám  $\gamma$ -kvánt z oblasti GDR.

## 4 Výsledky

### 4.1 Výber terča

Na základe analýzy fotojadrových procesov pre rad štiepných materiálov s prihliadnutím na ich dostupnosť, zložitost' technologických procesov pri ich spracovaní, toxicitu a cenu. Ako vhodný terč bol vybraný <sup>238</sup>U. Tento izotop uránu zabezpečuje najvyššiu neutrónovú nadbytočnosť štiepných produktov pri dostatočne veľkom účinnom priereze  $\sigma_{\gamma,F}$  a je dostupný v potrebných množstvách. Technológia prípravy terčov z <sup>238</sup>U je široko rozpracovaná.

### 4.2 Výťažky fotoštiepenia

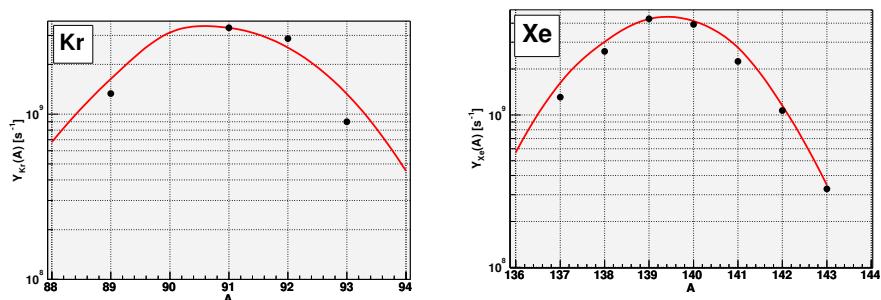
Na základe modelových výpočtov a výsledkov získaných v kontrolných experimentoch boli určené nezávislé a kumulatívne výťažky pre 560 izotopov v základnom stave a 90 izomerných stavov neutrón-nadbytočných jadier fragmentov štiepenia. Experimentálne získané relatívne nezávislé výťažky kryptónu a xenónu sú porovnané s vypočítanými hodnotami na obrázku 2.

Grafické znázornenie vypočítaných kumulatívnych výťažkov neutrón-nadbytočných jadier v základnom stave je na obrázku 3.

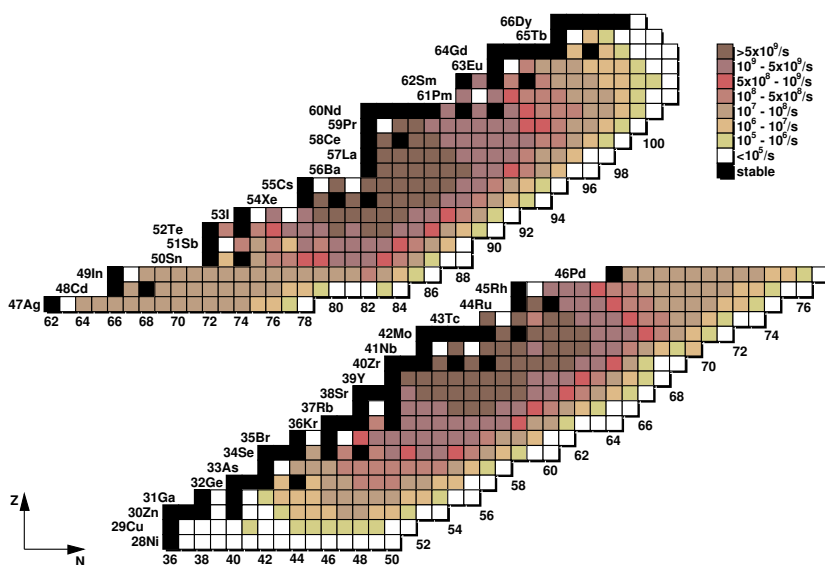
### 4.3 Rozbiehavosť zväzku

Na obrázku 4 sú porovnané namerané hodnoty intenzity  $\gamma$ -zväzku vo vzdialenosti 14 cm od konvertora s hodnotami získanými simuláciou.

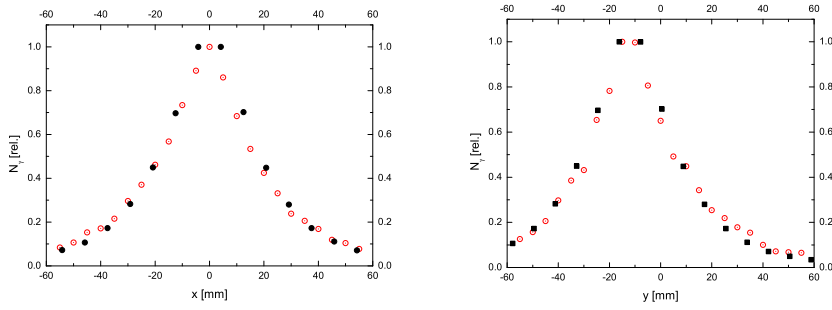
Energetická závislosť uhla  $\alpha$  pre  $\gamma$ -kvantá v intervale energií  $E_\gamma = 0 \div 25$  MeV získaná z nasimulovaných hodnôt je zobrazená na obrázku 5.



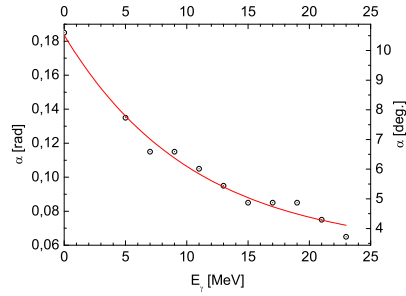
Obrázok 2: Nezávislé výťažky izotopov Kr (vpravo) a Xe (vľavo) normované na  $2.10^{11} \text{ s}^{-1}$  fotoštiepení  $^{238}\text{U}$  pri maximálnej energii brzdných  $\gamma$ -kvánt  $E_\gamma = 25 \text{ MeV}$  a strednej intenzite primárneho zväzku elektrónov  $I_e = 20 \mu\text{A}$ . Vypočítané hodnoty pomocou vyššie opísanej metodiky (čiarý) su porované s experimentálne získanými hodnotami (body).



Obrázok 3: Kumulatívne výťažky izotopov v základnom stave normované na  $2.10^{11} \text{ s}^{-1}$  fotoštiepení  $^{238}\text{U}$  pri maximálnej energii brzdných  $\gamma$ -kvánt  $E_\gamma = 25 \text{ MeV}$  a strednej intenzite primárneho zväzku elektrónov  $I_e = 20 \mu\text{A}$  vypočítané hodnoty pomocou vyššie opísanej metodiky.



Obrázok 4: Porovnanie nameraných hodnôt (○) intenzity  $\gamma$ -zväzku vo vzdialenosti 14 cm od konvertora s hodnotami získanými simuláciou (●).



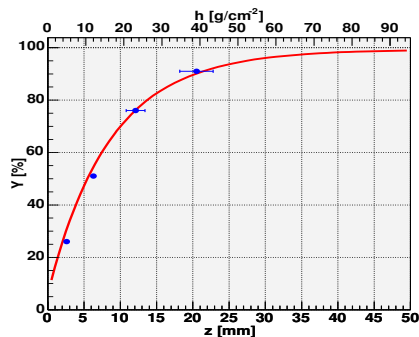
Obrázok 5: Uhol výletu —  $\alpha$  maximálnej intenzity  $\gamma$ -kvánt v závislosti od ich energie.

#### 4.4 Hustota štiepenia v terči

Porovnanie vypočítaných hodnôt integrálny výťažok štiepenia v závislosti od hrúbky (plošnej hustoty) terča z nasimulovanej priestorovej hustoty fotoštiepenia v terči z kovového prírodného uránu s volfrámovým konvertorom ( $w + U$ ) s experimentálne získanými hodnotami z práce [29] je na obrázku 6.

Na obrázku 7 je znázornená objemové  $\rho_f$  a plošné  $\rho_F$  hustoty fotoštiepenia vo vybranom produkčnom terči ako aj integrálny výťažok štiepenia v závislosti od polomeru  $Y_f(r)$  a hrúbky  $Y_f(z)$  terča.

V tabuľke 2 sú zhrnuté rozmery produkčných terčov pre rôzne konfigurácie v prípade, keď v danom objeme dochádza k 80% všetkých fotoštiepení.



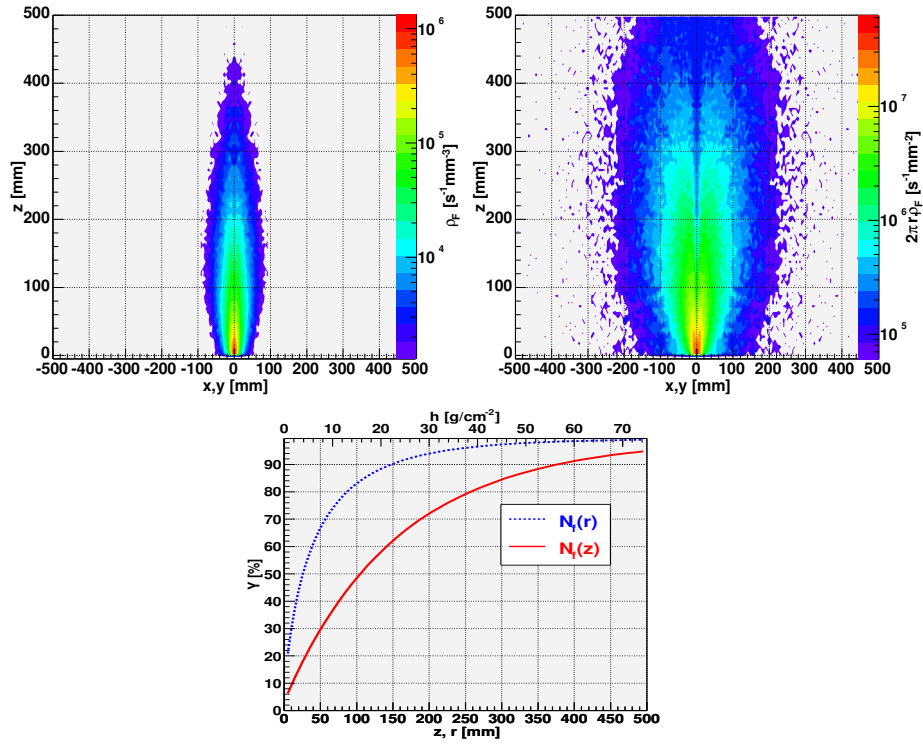
Obrázok 6: Porovnanie integrálneho výťažku štiepenia v terči  $^{238}\text{U}$  v závislosti od jeho hrúbky. Body označujú experimentálne získané hodnoty z práce [29], krivka zobrazuje hodnoty získané simuláciou.

Tabuľka 2: Geometrické rozmery (hrúbka–Z a polomer–R) cylindrického produkčného terča pre rôzne konfigurácie. V danom objeme prebieha 80% zo všetkých fotoštiepení. Koefficient  $e/f$  udáva počet elektrónov vyvolajúcich jeden akt fotoštiepenia.

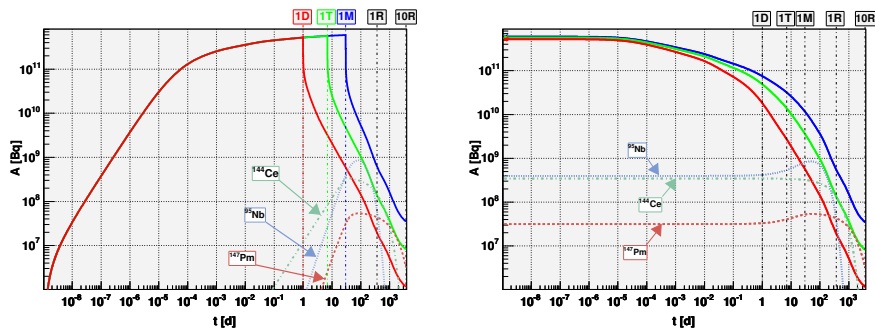
$E_e$	terč	Z [mm]	R [mm]	$e/f$	V [mm <sup>3</sup> ]
25	U	14	6,7	620	$1,97 \cdot 10^3$
	UC <sub>2</sub>	26	8,8	688	$6,57 \cdot 10^3$
	UCx	260	150	1102	$1,84 \cdot 10^7$
	w + U	14	14,2	933	$8,87 \cdot 10^3$
	w + UC <sub>2</sub>	26	14,6	961	$1,74 \cdot 10^4$
	w + UCx	256	88	1161	$6,23 \cdot 10^6$
	u + UCx	196	69	741	$2,93 \cdot 10^6$
50	U	17	6,1	229	$1,99 \cdot 10^3$
	UC <sub>2</sub>	26	10,1	246	$8,33 \cdot 10^3$
	UCx	300	86	363	$6,97 \cdot 10^6$
	w + U	15	10,3	307	$5,00 \cdot 10^3$
	w + UC <sub>2</sub>	27	12,4	319	$1,30 \cdot 10^4$
	w + UCx	280	77	398	$5,22 \cdot 10^6$

## 4.5 Kumulácia produktov štiepenia v terči

Celková kumulovaná aktivita fragmentov štiepenia pri parametroch zväzku  $E_e = 25$  Mev,  $I_e = 20 \mu\text{A}$  je graficky znázornená na obrázku 8 pre tri rôzne dlhé časy ožarovania terča.

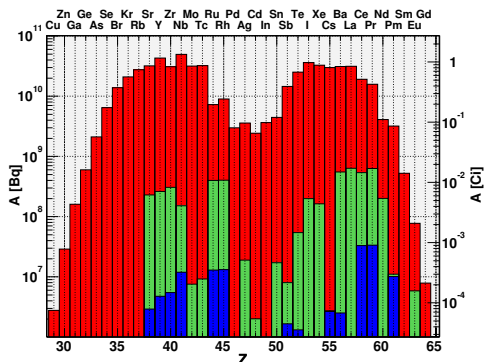


Obrázok 7: Simulácia fotoštiepenia v terči z  $\text{UC}_x$ . Hustota materiálu:  $\rho = 1,5 \text{ g}/\text{cm}^3$ , konvertor: volfrám, intenzita zväzku elektrónov:  $I_e = 20 \text{ }\mu\text{A}$ , energia elektrónov:  $E_e = 25 \text{ MeV}$ . Zľava doprava: priestorová  $\rho_f$  hustota štiepenia a plošná  $\rho_F$  hustota štiepenia, dole: integrálny výťažok v závislosti od hrúbky  $Y_f(z)$  a polomeru  $Y_f(r)$  terča.



Obrázok 8: Celková kumulovaná aktivita terča v závislosti od času a produkčného cyklu (vľavo). Pokles aktivity v terči v závislosti od predchádzajúcej dĺžky ožarovania (vpravo). Čas ožarovania: deň — červená krivka, týždeň — zelená krivka, mesiac — modrá krivka. Na obrázkoch sú znázornené aj závislosti aktivity vybraných izotopov  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{147}\text{Pm}$  a  $^{95}\text{Nb}$  pre mesačný ožarovací cyklus.

Výsledok výpočtu aktivity prvkov pre týždňový ožarovací cyklus je zobrazený na obrázku 9. Hlavný príspevok k dlhodobej aktivite terča vnášajú najmä dlhohľadujúce izotopy:  $^{144}\text{Ce}$  ( $T_{1/2} = 284,9\text{d}$ ),  $^{106}\text{Ru}$  ( $T_{1/2} = 373,6\text{d}$ ),  $^{147}\text{Pm}$  ( $T_{1/2} = 2,62\text{r}$ ),  $^{125}\text{Sb}$  ( $T_{1/2} = 2,76\text{r}$ ),  $^{90}\text{Sr}$  ( $T_{1/2} = 28,79\text{r}$ ) a  $^{137}\text{Cs}$  ( $T_{1/2} = 30,07\text{r}$ ).



Obrázok 9: Kumulovaná aktivita jednotlivých prvkov v terči po týždňovom produkčnom cykle. V čase vypnutia zväzku (červená), po mesiaci skladovania (zelená) a po roku (modrá).

## 4.6 Kumulácia aktinoidov a trícia

Okrem kumulovanej aktivity dlhožijúcich produktov štiepenia, dochádza pri trojitom fotoštiepení  $^{238}\text{U}$  tiež k produkcii  $^3\text{H}$ , čo je zaujímavé poznať predovšetkým z hľadiska radiačnej hygieny a bezpečnosti konštrukcie samotného terča. Bolo určené, že za týždňový cyklus sa nakumuluje 22 kBq. Tiež bolo potrebné určiť kumuláciu aktinoidov. Za predpokladu, že najvyššie účinné prierezy sú v reakciách  $(n, \gamma)$ ,  $(\gamma, n)$  a  $(\gamma, 2n)$ , počas ožarovania sa kumulujú predovšetkým  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{237}\text{Np}$  a  $^{236}\text{U}$ , ktorých množstvá za týždenný cyklus predstavujú sumárne 30 kBq. Táto aktivita je porovnateľná s aktivitou uránu terčového materiálu.

## 5 Závery

- Na základe analýzy projektov a mikrotrónu MT-25 bolo zistené, že pri využití elektrónového urýchľovača na generáciu primárneho zväzku pre produkciu rádioaktívnych jadier, je možné dosiahnuť rádovo  $10^{11}$  štiepení za sekundu. Táto intenzita štiepenia umožňuje získať dostatočné množstvo štiepných fragmentov na realizáciu programu DRIBs.
- Na základe analýzy fotojadrových procesov pre rad štiepných materiálov s prihliadnutím na ich dostupnosť, zložitosť technologických procesov pri ich spracovaní, toxicitu a cenu ako vhodný terč bol vybraný  $^{238}\text{U}$ . Tento izotop uránu zabezpečuje najvyššiu neutrónovú nadbytočnosť štiepných produktov.
- Na základe modelových predstáv z práce a výsledkov získaných v kontrolných experimentoch boli určené nezávislé a kumulatívne výťažky pre 560 izotopov v základnom stave a 90 izomérnych stavov jadier fragmentov štiepenia. Výsledky vykonaných experimentov na určenie výťažkov izotopov xenónu a kryptónu sú v dobrej zhode s vypočítanými hodnotami.
- Boli vykonané simulácie fotoštiepenia v U,  $\text{UC}_x$  a  $\text{UC}_2$  terčoch. Bol získaný uhlový rozptyl zväzku brzdného žiarenia na volfrámovom brzdnom terči, kde vypočítané hodnoty rozptylu sú v dobrej zhode s výsledkami experimentov. Boli simulované objemové hustoty štiepenia pre uvedené usporiadania brzdný terč — štiepny materiál. Ako optimálne usporiadanie sa javí  $\text{UC}_2$  s hustotou  $\rho = 10 \div 12 \text{ g/cm}^3$  bez brzdného terča, ktorý z hľadiska štiepných fragmentov predstavuje najmenší objem. Takéto usporiadanie zároveň umožňuje samonáhrev od zväzku elektrónov. Výpočty plošnej hustoty štiepenia ukázali na potrebu zabezpečiť vývod štiepných fragmentov vo viacerých miestach terča, predovšetkým z čelnej strany, z boku a z osi terča zozadu kapilárou. Ideálna forma terča je vytiahnutý elipsoid kopírujúci obálku simulovanej plošnej



hustoty štiepenia. Pre zlepšenie difúzie je možné použiť zložitejšiu geometriu terča vo forme paralelne umiestnených diskov.

- Na základe systematiky z databázy ENDF/B VI bol vyvinutý program na výpočet kumulovanej aktivity v terči. Ako príklad výpočtu je v práci uvedený výsledok pre týždňový cyklus ožarovania. Bolo určené, že za niekoľko sekúnd ožarovania sa dosahuje *nasýtený* stav aktivity  $A_t \approx 10^{12}$  Bq. Je tiež ukázaný vplyv dĺžky ožarovania na rozpad produktov pre tri rôzne časy ožarovania. Je vidieť, že pri dlhodobom ožarovaní veľký príspevok k celkovej aktivite terča vnášajú dlhožijúce jadrá a to najmä:  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{147}\text{Pm}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  a  $^{137}\text{Cs}$ . Aktivita kumulovaného trícia a aktinoidov je pri takomto výkone primárneho zväzku porovnateľná s prirodzenou aktivitou terčového materiálu a dosahuje približne 50 kBq. Tieto výsledky sú dôležité pre skladovanie, likvidáciu, spracovanie a manipuláciu s terčom.

## Zoznam literatúry

- [1] Ridikas D., Mittag W., Heavy Ion Phys. **10** (1999) 51.
- [2] Oganessian Yu. Ts., Zagrebaev V. I., *Programme Advisory Committee*, (1999).
- [3] Wahl A. C. *et al.*, Phys. Rev. **126** (1962) 1112.
- [4] Wahl A. C., Phys. Rev. **C32** (1985) 184.
- [5] Chattopadhyay A. *et al.*, J. Inorg. Nucl. Chem. **35** (1973) 2621.
- [6] Swindle D. *et al.*, Nuc. Sci. Eng. **52** (1973) 466.
- [7] Thierens H. *et al.*, Phys. Rev. **C14** (1976) 1058.
- [8] Gangrsky Yu. P. *et al.*, *Registracija i spektrometrija oskolkov delenija*, (Energoatomizdat, 1992)
- [9] De Frenne D. *et al.*, Phys. Rev. **C26** (1982) 1356.
- [10] Jacobs E. *et al.*, Phys. Rev. **C14** (1976) 1874.
- [11] De Clercq A. *et al.*, Phys. Rev. **C13** (1976) 1536.
- [12] ENDF/B-VI.7 .
- [13] CERN/DRDC/94-29, DRDC/P58, *GEANT4: an Object-Oriented Toolkit for simulation in HEP*, (1994).

- [14] <http://geant4.web.cern.ch/geant4/>
- [15] Stroustrup B., *The C++ Programming Language*, (Addison–Wesley, 1997).
- [16] Seltzer S. M., Berger M. J., Nucl. Instr. and Meth. **B12** (1985) 95.
- [17] Tsay Y.-S., Rev. Mod. Phys. **46** (1974) 815.
- [18] Tsay Y.-S., Rev. Mod. Phys. **49** (1977) 421.
- [19] Caldwell J. T., Dowdy E. J., Phys. Rev. **C21** (1980) 1215.
- [20] Koretskaya I. S. *et al.*, Yad. Fiz. **30** (1979) 910.
- [21] Zhuchko V. E. *et al.*, Yad. Fiz. **28** (1978) 1185.
- [22] Arruda J. D. T. *et al.*, Phys. Rev. **C14** (1976) 1499.
- [23] Veysiere A. *et al.*, Nucl. Phys. **A199** (1973) 45.
- [24] Varlamov V. V. *et al.*, CDFE/FIS2 87, <http://depni.sinp.msu.ru/cdfe/services/index.html>
- [25] Reis H. *et al.*, Phys. Rev. **c29** (1984) 2346.
- [26] Lepretre A. *et al.*, Nucl. Phys. **A472** (1987) 533.
- [27] Ostapenko Yu. B. *et al.*, Yad. Konst. **3** (1978) 3.
- [28] Berger M. J., Seltzer S. M., Phys. Rev. **C2** (1970) 621.
- [29] Oganessian Yu. Ts. *et al.*, Preprint JINR E7-2000-83, (2000).

## Publikované práce autora

- Gangrsky Yu. P., Dmitriev S. N., Zhemenuk V. I., Kliman J., Mishinsky G. V., Norov Kh. S., Oganessian Yu. Ts., Penionzhkevich Yu. E., **Szöllős O.**, *Independent yields of Xe Isotopes at Photofission of  $^{232}\text{Th}$  and  $^{238}\text{U}$* , Particles and Nuclei, Letters **6[103]** (2000) 5.
- Gangrsky Yu. P., Domanov P., Zhemenuk V. I., Myshinsky G. V., Penionzhkevich Yu. E., **Szöllős O.**, *Transport of Fission Fragments by a Gas Flow with Aerosols*, Instruments and Experimental Techniques, **45** (2002) 301.

- Gangrsky Yu. P., Zhemenuk V. I., Maslova N. Yu., Mishinsky G. V., Penionzhkevich Yu. E., **Szöllős O.**, *Independent yields of Kr and Xe Isotopes in the the Photofission of Heavy nuclei*, Physics of Atomic Nuclei **66** (2003) 1211.
- Gangrsky Yu. P., Zhemenuk V. I., Mishinsky G. V., Penionzhkevich Yu. E., **Szöllős O.**, *Independent yields of Xe fission fragments in the photofission of heavy nuclei*, International Conference "Features of nuclear excitation states and mechanisms of nuclear reactions." 51<sup>st</sup> meeting on nuclear spectroscopy and nuclear structure, Sarov 2001.
- **Szöllős O.**, Kliman J., Oganessian Yu. Ts., Itkis M. G., Dmitriev S. N., Mishinsky G. V., Zhemenuk V. I., *DRIBS II: A Source of Radioactive Nuclei*. V. International Conference on Dynamical Aspects of Nuclear Fission, Častá-Papiernička 2001, World Scientific 2002.
- **Szöllős O.**, Kliman J., *Photofission density in 238U target*, poster, VII. Int. School-Seminar on Heavy Ion Physics. 27.May-1.Jun.2002, Dubna, Russia.
- Gangrsky Yu. P., Zhemenuk V. I., Zemlyanoy S. G., Maslova N. Yu., Mishinsky G. V., Norov Kh. S., Penionzhkevich Yu. E., **Szöllős O.**, *Independent yields of Kr Isotopes at Photofission of 232Th and 238U*, 51st Workshop on Nuclear Spectroscopy and Structure of Atomic Nucleus, 18.-22.Jun.2002, Moscow, Russia.
- **Szöllős O.**, Kliman J., *The Use of the Photofission of 238U for a Neutron-rich Radioactive Ion Beams Generation*, poster, Third Int. Conf. on Fission and Properties of Neutron-rich Nuclei, 3.-9.Nov.2002, Sanibel Island, Florida, USA, World Scientific 2003.
- Airapetyan M.G., Airyan E.A., Gulbekiyan G.G., **Szöllős O.**, Fedorov A.V., *Mathematical Modeling of Radioactive Nucleus Diffusion Time Through the Pipe of Circular Cross Section from the Generating Target to the Ion Source*, JINR Preprint P11-99-102, Dubna, 1999.
- Airapetyan M.G., Airyan E.A., Gulbekiyan G.G., **Szöllős O.**, Fedorov A.V., *Modeling of the Time of Ion Output from the Target in Radioactive Beams Production*, JINR Preprint P11-2000-33, Dubna, 2000.
- Gangrsky Yu. P., Domanov P., Zhemenuk V. I., Myshinsky G. V., Penionzhkevich Yu. E., **Szöllős O.**, *Transport of Fission Fragments by a Gas Flow with Aerosols*, JINR Preprint P13-2001-66, Dubna, 2001.

- Gangrsky Yu. P., Zhemelik V. I., Zemlyanoy S. G., Maslova N. Yu., Mishinsky G. V., Norov Kh. S., Penionzhkevich Yu. E., **Szöllös O.**, *Independent yields of Kr Isotopes at Photofission of  $^{232}\text{Th}$  and  $^{238}\text{U}$* , JINR Preprint P15-2002-188, Dubna, 2002.
- Gangrsky Yu. P., Mishinsky G. V., Maslova N. Yu., Penionzhkevich Yu. E., **Szöllös O.**, Zhemelik V. I., *Independent yields of Kr and Xe Isotopes for the Photofission of Heavy nuclei*, JINR Preprint E15-2002-147, Dubna, 2002.