



**Cross Section Measurements of Light Charged
Particles Induced Nuclear Reactions
and Their Applications**

Ph.D. Thesis

Sándor Takács dr. univ.

Lajos Kossuth University
Debrecen, 1997



**Könnyű töltött részecskék által kiváltott magreakciók
hatáskeresztmetszetének mérése és alkalmazásai**

Doktori (PhD.) értekezés tézisei

Takács Sándor dr. univ.

Kossuth Lajos Tudományegyetem
Debrecen
1997

1. Bevezetés

A nukleáris kutatások gyors fejlődése maga után vonta nukleáris technikán alapuló különböző technológiák kialakulását és elterjedését. A legtöbb módszer az aktivációs technikát használja, amely a minta besugárzásán, aktiválásán és a keletkezett aktivitás mérésén alapszik. Az ilyen módszerek alkalmazásához általában integrális magadatokra, (hatáskeresztmetszet, reakció hozam) van szükség. Az irodalomban fellelhető egyes szerzők által közölt töltött részecske hatáskeresztmetszet adatok sok esetben jelentősen eltérnek egymástól és számos ellentmondást tartalmaznak vagy hiányosak. Több reakcióra egyáltalán nincs publikált adat.

Az Atomkiban a Ciklotron Alkalmazási Osztály magadat csoportja nemzetközi együttműködésben végzett szisztematikus méréseivel, a rendelkezésre álló adatok összegyűjtésével és kritikai értékelésével a töltött részecske keltette magreakciók hatáskeresztmetszetének, gerjesztési függvényeinek fenti hiányosságait próbálta pótolni.

A dolgozat egyik motiváló tényezője az alkalmazásokhoz szükséges új hatáskeresztmetszet adatok meghatározása volt. A másik fő motiváló tényező törekvés a fellelhető adatok ellentmondásosságának feloldására és a kísérleti adatok pontosságának valamint részletességének javítására. Ennek megfelelően a dolgozat összefoglalja :

- 1., a töltött részecske keltette magreakciók hatáskeresztmetszet mérésének leggyakrabban használt szendvics céltárgy besugárzásán alapuló módszerét,
- 2., a kiválasztott folyamatok hatáskeresztmetszetének meghatározását és az eredményeket,
- 3., egy módosított eljárást a monitor reakciók használatára,
- 4., egy új módszert javasol a vékonyréteg aktivációs technika kalibrációs görbéjének meghatározására.,
- 5., kísérleti eljárást ad a direkt aktivációs analitikai mérések paramétereinek optimális megválasztására,
- 6., vizsgálja a nagy intenzitású töltött részecske nyalábok és nagynyomású gáz céltárgyak kölcsönhatását,
- 7., példákat ad a mért hatáskeresztmetszet adatok alkalmazására a következő témakörökben:
 - töltött részecske nyaláb monitorizálása
 - izotóptermelés
 - analitikai alkalmazások
 - vékony réteg aktivációs alkalmazások.

2. Kísérleti berendezések és alkalmazott módszerek

A vizsgált 46 magreakció hatáskeresztmetszetének meghatározására az aktivációs módszert használtuk szendvics céltárgyakon. A szendvics céltárgy technika lényege, hogy vékony maximum néhány száz keV vastagságú céltárgyakat, általában vékony fóliákat helyezünk egymás után és sugárzunk be, aktiválunk egyszerre. A bombázó nyaláb részecskéi a szendvics céltárgyban fékeződnek, energiájukat folyamatosan elvesztik ezért a szendvics céltárgy egyes rétegeiben különböző energiával rendelkeznek, így egy reakció hatáskeresztmetszetének energia függése egy szélesebb energia tartományban egy

besugárzással meghatározható. Az összetett céltárgy tartalmazhat a céltárgy fóliákon kívül egyéb fóliákat is. Leggyakrabban egy vagy több monitor fóliát, energia elnyelő fóliákat és a visszalökött magok megfogására szolgáló fóliákat.

A besugárzásokat nemzetközi együttműködések keretében MGC-20E (Debrecen), MGC-20 (Turku), CV-28 (Jülich) és CGR-560 (Brüsszel) típusú ciklotronok segítségével végeztük. A fém fóliákat vákuumban míg a gáz cellákat kihozott nyalábokkal bombáztuk. Az árammérés érdekében a targettartó besugárzó kamrák Faraday típusúak voltak, amelyeket elektronszupresszorral láttunk el a másodlagos elektronok hatásának csökkentésére. A gázcellák besugárzása kapcsán vizsgáltuk az intenzív nyalábok és nagynyomású gázok kölcsönhatásait. A besugárzott minták aktivitását standard nagy feloldású HpGe detektoros gammaspektrométerrel mértük. A maximális információ nyerés szempontját figyelembe véve a minták mérési sorrendjét és a detektor-minta távolságot optimalizáltuk. A minták cseréjét és pozicionálását a detektor előtt egy PC vezérelt léptetőmotoros berendezés kifejlesztésével valósítottuk meg.

A töltött részecske nyalábok és gázcéltárgyak kölcsönhatásának vizsgálatához a szokásos árammérési technikát valamint fotó, film és videó technikákat használtunk.

A dolgozatban közölt munkáknál a kísérletek megtervezésénél és kivitelezésénél, az eredmények feldolgozásánál és értelmezésénél meghatározó szerepem volt

3. Eredmények

Monitor reakciók

A dolgozat keretein belül a töltött részecske nyalábok intenzitásának és energiájának meghatározására a következő folyamatokat vizsgáltuk : $^{nat}\text{Ni}(d,x)$ [A1], $^{nat}\text{Ni}(^3\text{He},x)$ [A2], $^{nat}\text{Ni}(\alpha,x)$ [A3], $^{nat}\text{Ti}(d,x)$ [A4], $^{nat}\text{Fe}(p,n)^{56}\text{Co}$ [A5], $^{nat}\text{Cu}(d,x)$ [A6], és $^{nat}\text{Fe}(d,x)$ [A6]. A fenti folyamatokban összesen 38 egyedi reakció gerjesztési függvényét határoztuk meg. A vizsgált reakciók egy részénél a hatáskeresztmetszetet elsőként mértük meg, a reakciók másik részénél az összegyűjtött irodalmi adatok közötti ellentmondások egy részét sikerült feloldani. Összesen 20 reakciót javasoltunk a megvizsgáltak közül proton, deuteron, ^3He és alfa töltött részecske nyalábok monitorizálására.

Izotóptermelés

A ciklotronnal előállított rádióizotópok egyik fő felhasználási területe az orvosi diagnosztika és terápia. Az egyes izotópok optimális előállításához ismerni kell a fő és mellék reakciók hatáskeresztmetszet függvényét, amely alapján a hozamok kiszámolhatók, az optimális céltárgy anyag összetétel, bombázó energia illetve céltárgy vastagság meghatározható.

Ezen munka részeként a ^{123}I (SPECT) és ^{124}I (PET) izotópok előállítására használható $^{122}\text{Te}(d,n)^{123}\text{I}$, $^{123}\text{Te}(d,2n)^{123}\text{I}$ és a $^{123}\text{Te}(d,n)^{124}\text{I}$ reakciók hatáskeresztmetszetét mértük meg [A9, A10]. Méréseink alapján megállapíthattuk, hogy a $^{122}\text{Te}(d,n)^{123}\text{I}$ reakcióra korábban közölt két munka közül az egyik jelentős, 2 MeV energia csúszással rendelkezik, amely a termelés optimalizálását alapvetően befolyásolja. A dúsított ^{123}Te céltárgyon pedig elsőként közöltünk kísérleti hatáskeresztmetszet adatokat.

Az orvosi diagnosztikában agy és szív vizsgálatokra javasolt ^{61}Cu izotóp $^{\text{nat}}\text{Ni}(\text{d},\text{x})^{61}\text{Cu}$ reakción keresztül történő előállítását vizsgáltuk. Az irodalomban összesen négy egymásnak ellentmondó munkát találtunk. Méréseink során meghatároztuk a $^{\text{nat}}\text{Ni}(\text{d},\text{x})^{61}\text{Cu}$ folyamat hatáskeresztmetszetét és megadtuk az optimális termelés bombázó energia tartományát. Tisztáztuk az irodalmi adatok ellentmondásait. Vizsgálva a különböző előállítási lehetőségeket megállapítottuk, hogy a ^{61}Cu előállítása a $^{60}\text{Ni}(\text{d},\text{n})^{61}\text{Cu}$ reakcióban 15 MeV alatti energiákon kedvező. Rámutattunk, hogy csak a jóval drágább dúsított ^{61}Ni céltárgyon lejátszódó $^{61}\text{Ni}(\text{p},\text{n})^{61}\text{Cu}$ folyamat rendelkezik nagyobb hozammal. Így a $^{60}\text{Ni}(\text{d},\text{x})^{61}\text{Cu}$ folyamat jelentős alternatív termelési eljárás lehet a ^{61}Cu előállítására.

Biológiai jelzőként és hitelesítő forrásként használt ^{22}Na előállítását vizsgáltuk kis gyorsítókkal. A legbiztosabb $^{22}\text{Ne}(\text{p},\text{x})^{22}\text{Na}$ reakció hatáskeresztmetszetére összesen három mérési pont volt található amit hosszú gázcéltárgyon mértek. Méréseinkben 17 MeV proton energiáig határoztuk meg a reakció hatáskeresztmetszetét szendvics gázcéltárgyat használva [A11]. A mért hatáskeresztmetszet pontokra illesztett görbe alapján számolt hozamról megállapítottuk, hogy a ^{22}Na előállítására szolgáló különböző termelési módok közül a $^{22}\text{Ne}(\text{p},\text{x})^{22}\text{Na}$ folyamatnak van a legnagyobb hozama az adott energia tartományban és kis energiáknál is van lehetőség a ^{22}Na termelésére.

Aktivációs alkalmazások

A könnyű töltött részecske magreakciók egyik gyakorlati alkalmazása a töltött részecske aktivációs analízis. Javasoltuk a direkt, hatáskeresztmetszet adatokat felhasználó módszer alkalmazását elkerülve a standard minták preparálását, besugárzását és aktivitásuk mérését. Kísérleti módszert adtuk a besugárzási és mérési paraméterek optimális meghatározására amely paraméterek alkalmazása esetén maximális érzékenység érhető el.

A direkt módszer alkalmazásával vizsgáltuk nagy tisztaságú alumínium nyomszennyezőit [A14, A15, A16, B22]. Zónás olvasztással tisztított 6N (99.9999%) tisztaságú alumínium mintákban 11 különböző szennyezőt határoztunk meg 3.0 ppb és 4.4 ppm koncentráció tartományban. Külön foglalkoztunk a tisztított alumínium és gallium minták térfogati oxigén tartalmának meghatározásával [A15, A16, B22]. Az aktivációs módszer segítségével üveg minták térfogati és felületi hibahelyeit vizsgáltuk [A17] és megállapítottuk a hibák keletkezésének valószínű okait. Egy másik munkánkban bemutattuk az aktivációs módszer alkalmazhatóságát motorolajok kenőképeségének vizsgálatára [A18], mérve az olajok az olajsűrűk által el nem távolított fém szennyezőinek koncentrációját.

A vékonyréteg aktivációs technika felületek kopásának, korróziójának vagy eróziójának mérésére alkalmas módszer. A felületek jelzésére alkalmas radioaktív izotópok közül vizsgáltuk a ^7Be és ^{56}Co izotópok előállítására szolgáló néhány reakciót. A ^7Be ($T_{1/2} = 53.29$ nap) izotóp előállítását a $^9\text{Be}(\text{}^3\text{He},\alpha\text{n})$, $^{10}\text{B}(\text{p},\alpha)$, $^{11}\text{B}(\text{p},\alpha\text{n})$ és a $^{12}\text{C}(\text{}^3\text{He},2\alpha)$ reakciókban vizsgáltuk [A7, A8] és meghatároztuk a folyamatok hatáskeresztmetszetét és hozamát. A kapott eredmények alapján meghatároztuk a vékonyréteg aktivációs módszer érzékenységét bór tartalmú, nagy keménységű forgácsolószerszámok élkopásán keresztül a besugárzási geometria függvényében [A13]. A leggyakrabban használt szerkezeti anyag az acél aminek a fő komponense a vas, ezért vizsgáltuk a $^{\text{nat}}\text{Fe}(\text{p},\text{x})^{56}\text{Co}$ folyamat gerjesztési függvényét. Az irodalmi adatok kritikai analízise után a mérési pontok hibáival súlyozott ajánlott adat sort adtunk meg. Kidolgoztunk egy egyszerűsített eljárást a hitelesítő görbék meghatározására [A5].

4. Tézispontok

1. Új adatok

- a. A rendelkezésre álló energia tartományban 46 töltött részecske indukált magreakció hatáskeresztmetszetét mértük meg proton, deuteron, hélium-3 és alfa részecske nyalábokat használva ^{nat}Be , ^{nat}B , ^{nat}C , ^{nat}Ne , ^{nat}Ti , ^{nat}Fe , ^{nat}Ni , ^{nat}Cu , ^{122}Te és ^{123}Te céltárgyakon nyaláb monitorizálás, izotóptermelés és aktivációs alkalmazások céljára. Közülük 16 reakciónál elsőként publikálva a reakciók gerjesztési függvényét ($^{nat}\text{Be}+^3\text{He}$, $^{nat}\text{Ni}+^3\text{He}$ és $^{123}\text{Te}+d$).
- b. Az eredményeink jelentősen hozzájárultak az egyes reakciókra mért adatok ellentmondásosságának feloldásához, pontosításához. Számos esetben kiterjesztettük a gerjesztési függvények mérési tartományát és részletes kísérleti adatokat adtunk a vizsgált energia tartományban.
- c. Elemeztük a korábban közölt adatokat, kiszűrtük a szisztematikus hibával terhelt adatsorokat (energia skála eltolódása a helytelen kezdeti energia meghatározása miatt, teljes hatáskeresztmetszetként közölt adatok amelyek részben vagy egyáltalán nem tartalmazták az izomer állapot bomlásából származó járulékot, többszörösen eltérő nagyságú hatáskeresztmetszet adatok, stb.).

2. Új módszerek

- a. Eljárást javasoltunk több monitorreakció egyidejű használatára a bombázó nyaláb intenzitásának és energiájának egyidejű de egymástól független meghatározására kettő vagy több monitor reakció használatával. Méréseink alapján megállapíthatunk, hogy a Ti, Fe, Ni és Cu anyagok alkalmasak ilyen monitorizálási célokra mind a négy könnyű bombázó részecske nyaláb esetében (p , d , ^3He és α).
- b. A vékonyréteg aktivációs technika alkalmazásához kapcsolódóan egy új módszert javasoltunk a kalibrációs görbe meghatározására. Szuperkemény forgácsoló szerszámok élkopásának vizsgálatán keresztül igazoltuk a fenti módszer használhatóságát $^{nat}\text{B}(p,x)^7\text{Be}$ és $^{nat}\text{Fe}(p,x)^{56}\text{Co}$ reakciók hatáskeresztmetszet adatait használva.
- c. Vizsgáltuk intenzív töltött részecske nyalábok és nagynyomású gáz céltárgyak kölcsönhatását. Megerősítettük a korábban tapasztalt gázkiritkulás jelenségét és elsőként vizsgáltuk a töltött részecske nyalábok és gázcéltárgyak kölcsönhatásának kezdeti időszakában tapasztalható tranziens jelenséget. A jelenségre kvalitatív leírást adtunk.

3. Alkalmazások

- a. A töltött részecske hatáskeresztmetszet adatok alkalmazásai között vizsgáltuk a töltött részecske aktivációs analízis (CPAA) módszerét és javasoltuk a direkt módszer alkalmazását. Eljárást adtunk a töltött részecske aktivációs analízis maximális érzékenységének eléréséhez szükséges optimális paramétereinek meghatározására.

- b. Alkalmazva a CPAA módszert nagy tisztaságú alumínium nyomszennyezőinek koncentrációját határoztuk meg (11 elem ppb és ppm koncentráció tartományban).
- c. Alumínium és gallium minták térfogati oxigéntartalmát mértük trícium és hélium-3 nyalábokkal végzett aktiválással.
- d. Vizsgáltuk üveg minták hibahelyeit és megállapítottuk a tapasztalt koncentráció anomáliák eredetét.
- e. Demonstráltuk az aktivációs módszer alkalmazhatóságát motor olajok kenőképességének vizsgálatára meghatározva a szerkezet kopásával kapcsolatos elemek az olajban felhalmozódó, vagy az adalék anyagok csökkenő mennyiségét.

5. Az értekezés témakörében megjelent illetve elfogadott közlemények

- A1. **S. Takács**, M. Sonck, A. Azzam, A. Hermanne, F. Tárkányi
Activation cross section measurements of deuteron induced reactions of ^{nat}Ni with special reference to beam monitoring and production of ^{61}Cu for medical purpose
Radiochimica Acta **76** (1997) 15
- A2. **S. Takács**, F. Tárkányi, A. Fessler, Z.B. Alfassi, S.M. Qaim
Excitation functions of ^3He -particle induced nuclear reactions on natural Ni with special reference to the monitoring of beam energy and intensity
Applied Radiation and Isotopes **46** (1995) 249
- A3. **S. Takács**, F. Tárkányi, Z. Kovács
Excitation function of alpha-particle induced nuclear reactions on natural nickel
Nuclear Instruments and Methods **B113** (1996) 424
- A4. **S. Takács**, M. Sonck, B. Scholten, A. Hermanne, F. Tárkányi
Excitation function of deuteron induced nuclear reactions on ^{nat}Ti up to 20 MeV for monitoring deuteron beams
Applied Radiation and Isotopes **48** (1997) 657
- A5. **S. Takács**, L. Vasváry, F. Tárkányi
Remeasurement and compilation of excitation functions of proton induced reactions on iron for activation techniques
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research **B89** (1994) 88
- A6. **S. Takács**, F. Tárkányi, M. Sonck, A. Hermanne, S. Sudár
Study of deuteron induced reactions on natural iron and copper and their use for monitoring beam parameters and for thin layer activation technique
Proc. of 14th Int. Conf. on Applications of Accelerators in Research and Industry, Denton, Texas, 1996, p. 659.
- A7. F. Ditrói, **S. Takács**, F. Tárkányi, I. Mahunka
Study of the $^{nat}\text{C}(^3\text{He}, 2\alpha)^7\text{Be}$ and $^9\text{Be}(^3\text{He}, \alpha n)^7\text{Be}$ nuclear reactions and their applications for wear measurements
Nuclear Instruments and Methods **B103** (1995) 412
- A8. F. Ditrói, **S. Takács**, F. Tárkányi, A. Fenyvesi, J. Bergman, S.-J. Heselius, O. Solin
Investigation of the charged particle nuclear reactions on natural boron for the purposes of the thin layer activation (TLA)
Nuclear Instruments and Methods **B103** (1995) 389
- A9. B. Scholten, **S. Takács**, Z. Kovács, F. Tárkányi, S.M. Qaim
Excitation functions of deuteron induced reactions on ^{123}Te : relevance to the production of ^{123}I and ^{124}I at low and medium sized cyclotrons
Applied Radiation and Isotopes **48** (1997) 267

- A10. **S. Takács**, A. Azzam, M. Sonck, F. Szelecsényi, A. Hermanne, F. Tárkányi
Excitation function of $^{122}\text{Te}(d,n)^{123}\text{I}$ nuclear reaction: Production of ^{123}I at low energy cyclotron
Accepted for publication in Applied Radiation and Isotopes
- A11. **S. Takács**, F. Tárkányi, S.M. Qaim
Excitation function of $^{22}\text{Ne}(p,n)^{22}\text{Na}$ reaction: possibility of production of ^{22}Na at a small cyclotron
Applied Radiation and Isotopes **47** (1996) 303
- A12. F. Tárkányi, **S. Takács**, S.-J. Heselius, O. Solin, J. Bergman
Static and dynamic effects in gas targets used for medical isotope production.
Nuclear Instruments and Methods **A**. (in print)
- A13. L. Vasváry, F. Ditrói, **S. Takács**, Z. Szabó, J. Szűcs, J. Kunderák, I. Mahunka
Wear measurement of the cutting edge of superhard turning tools using TLA technique
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research **B85** (1994) 255
- A14. **S. Takács**, F. Ditrói, I. Mahunka
Trace element analysis by using the direct CPAA method
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research **B10** (1985) 1051
- A15. **S. Takács**, F. Ditrói, I. Mahunka
Investigation of aluminium made by powder metallurgy by using CPAA method
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research **B43** (1989) 99
- A16. F. Ditrói, **S. Takács**, I. Mahunka, P. Mikecz, Gy. Tóth
Determination of oxygen in high purity gallium by using charged particle activation analysis
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research **B68** (1992) 166
- A17. F. Ditrói, **S. Takács**, I. Mahunka, Z. Gémesi
Trace element study of glass samples by using activation methods
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research **B50** (1990) 62
- A18. F. Ditrói, I. Mahunka, **S. Takács**, S.A.H. Seif El-Nasr,
Trace element analysis of motor oil by CPAA method on external proton beam
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles **130** (1989) 263