

FAKULTETEN FÖR
NATURVETENSKAPER OCH TEKNIK

MAGISTERAVHANDLING

I FYSIK

30.11.2022

**BESTÄMNING AV NEUTRONSPRIDNINGEN
OCH FLÖDET KRING EN PET-CYKLOTRON
GENOM AKTIVERING AV ^{23}Na**

Skribent:

Lina Åberg, 41907

Handledare:

Jan-Olof Lill



Illustrationerna i arbetet är skribentens egna om inget annat anges.

INNEHÅLLSFÖRTECKNING

1. Inledning	5
2. PET (Positronemissionstomografi)	8
3. Neutroners växelverkan	10
3.1. Mätning av neutroner	10
3.2. Långsamma neutroner	11
3.3. Snabba neutroner	11
3.4. Reaktionstvärnsnitt	12
4. Metod	13
4.1. TR-19 körningar och egenskaper	13
4.2. Användning av aktiverade objekt för bestämning av neutronflöden och – energier	16
4.2.1. Natriumklorid som aktiveringsobjekt	18
4.2.2. Metaller som aktiveringsobjekt	21
4.3. Placering av aktiveringsobjekt	23
4.4. Gammaspektroskopi	26
4.4.1. Användning	26
4.4.2. Detektoreffektivitet, upplösning och energikalibrering	29
4.4.3. Från spektrum till aktivitet	33
4.4.4. Från aktivitet till neutronflöde	36

4.5. Självabsorption, spridning och neutronflöden	37
4.5.1. Test av korrektionsfaktorns inverkan på olika geometrier	38
4.5.2. Aktiveringsobjekt av natriumklorid	45
4.6. Natriumklorid- och guldprov med och utan ett kadmiumlager	47
5. Analys av resultat	49
5.1. Felanalys och osäkerheter	49
5.2. Aktiviteter och neutronflöden	52
6. Diskussion	57
7. Avslutning	60
8. Referenser	61

Abstrakt

Vid PET-undersökningar används radioaktiva nuklider för att göra medicinska avbildningar på en patient. Nukliderna tillverkas med hjälp av en medicinsk cyklotron där en relativt stor mängd neutroner uppkommer som en biprodukt vid kärnreaktionerna varpå de aktiverar omgivningen. Ur ett strålskyddsperspektiv är det viktigt att undersöka mängden producerade neutroner, dess energifördelning och distribution runt cyklotronen. Eftersom neutroner inte har någon laddning så växelverkar de inte heller med materia och elektroner på samma sätt som laddade partiklar gör, vilket gör dem komplicerade att detektera. Detekteringen av dem baserar sig därför främst på indirekta metoder. Praktiskt taget alla neutrontektorer innehåller ett målmaterial där neutronerna först växelverkar med materialets kärnor och sedan en mer traditionell detektor som kan mäta den sekundära strålningen. Problemet med den vanligaste utrustningen för neutrontektering är att den sällan finns tillgänglig vid medicinska cyklotronanläggningar.

I den här avhandlingen behandlas neutronflödet och dess spridning omkring den medicinska cyklotronen TR-19 vid Nationella PET-centret i Åbo för att främja strålsäkerheten för personal och underlätta demonterings- och uppbyggnadsarbeten. En förmånlig och användarvänlig metod för att bestämma det termiska neutronflödet med hjälp av natriumklorid som aktiveringsobjekt presenteras och konstateras vara praktisk och fördelaktig. Natriumkloridmetoden evalueras med hjälp av aktiveringsobjekt av natriumklorid och guld med och utan ett lager av kadmium, fungerande som absorbator av termiska neutroner. Ett neutronflöde för icke-termiska och snabba neutroner föreslås även utgående från guldets inducerade aktivitet. Den termiska neutronfördelningen i cyklotronutrymmet och dess kvantitet illustreras varpå det största neutronflödet konstateras vara framför den använda målstationen.

Neutronflödet i några högre energiintervall undersöks också med hjälp av metaller och deras kärnreaktioner med tröskelenergies. Några exakta neutronflöden erhöles inte men problematiken med bestämningen diskuteras och de inducerade aktiviteterna analyseras. Korrektionsfaktorer för självabsorption och spridning av neutroner i aktiveringsobjekten undersöks och påvisas användbara. Den optimala storleken på aktiveringsobjekt av natriumklorid diskuteras och för- och nackdelar med både metaller, guld och natriumklorid som aktiveringsobjekt avhandlas.

1. Inledning

Vid PET-undersökningar används kortlivade, positronstrålande radioaktiva nuklider för att göra medicinska avbildningar på en patient (1). Nukliderna tillverkas med hjälp av en medicinsk cyklotron där en relativt stor mängd neutroner uppkommer som en biprodukt vid kärnreaktioner varpå de aktiverar omgivningen (2,3). Cyklotronen som studeras i denna avhandling, TR-19, har två målstationer varav den ena omges av ett neutronskydd. Neutronskyddet skall stoppa en väsentlig del av den stora mängd neutroner som bildas som direkt biprodukt vid denna målstation. Den andra målstationen, där neutroner endast bildas i en sidoreaktion, omges inte av något neutronskydd och således förhindras eller hämmas de inte heller från att aktivera rummet.

Ur ett strålskyddsperspektiv är det viktigt att undersöka mängden producerade neutroner, särskilt termiska, deras energifördelning och distribution runt cyklotronen. Detta eftersom neutroner aktiverar sin omgivning då de växelverkar med omkringliggande materia och gör atomerna radioaktiva. Undersökningen underlättar arbetet vid avveckling av cyklotronen och planering av bland annat neutronskydd runt nya och gamla nuklidproducerare. Till följd av nuklidernas korta halveringstid tillverkas nukliderna i nära anslutning till användningsplatsen. Informationen om neutronfördelningen är också viktig med tanke strålsäkerhet för personalen som jobbar i anknytning till cyklotronen (2,3,4).

Eftersom neutroner inte har någon laddning så växelverkar de inte heller med materia och elektroner på samma sätt som laddade partiklar gör. Jämfört med laddade partiklar kan de färdas långa sträckor innan någon reaktion med materia sker. Därtill gör avsaknaden av laddning dem komplicerade att detektera eftersom de knappt påverkas av elektriska eller magnetiska fält. Därför baserar sig detekteringen av dem på indirekta metoder där neutronerna först behöver växelverka genom en kärnreaktion eller spridning med ett målmaterials kärnor varpå mätbar sekundärstrålning emitteras. Strålningen kan vara laddade partiklar som alfapartiklar, rekylkärnor och protoner eller gammastrålning (5,6).

Praktiskt taget alla neutrontektorer innehåller ett målmaterial där neutronerna växelverkar med materialets kärnor och en mer traditionell detektor som kan mäta den sekundära strålningen. De flesta detektorer kan inte heller mäta neutronernas energi utan endast

kvantiteten av dem på grund av den indirekta detekteringen och de emitterade neutroners breda energispektra (2). Det har utvecklats olika detektorer för långsamma och snabba neutroner eftersom reaktionstvärsnittet för neutronväxelverkan är väldigt energiberoende. En typ av neutrontektorer är gasfyllda proportionalräknare där nuklider med högt reaktionstvärsnitt för neutroner adderas till gasen för neutronerna att växelverka med. Flitigt använda gaser är till exempel ^3He och BF_3 för långsamma neutroner och kärnreaktioner och ^4He och CH_4 för snabba neutroner och rekylreaktioner. Andra typer är scintillations-detektorer som oftast mäter snabba neutroner och halvledar-detektorer. I dessa inkorporeras nuklider som neutronerna med hög sannolikhet kommer att växelverka med (5,6).

På senare år har flera studier av neutronflödet runt medicinska cyklotroner genomförts. Bland annat har modelleringar av neutronflödesspektrumet vid produktion av ^{18}F gjorts med Monte Carlo simulationer och nukleon transportkoderna MCNPX (3) och FLUKA (8,9). I en annan studie jämfördes en MCNPX modell med reaktionstvärsnitt tagna från biblioteket TENDL-2012 och ett neutronspektrum uppmätt med Time-of-Flight masspektroskopi (4). Det finns även flera experimentella metoder som kan användas för att mäta neutronflödets energispektrum. En av dessa är bonnersfär-detektorer (11,12). En annan metod baserar sig på användning av en CR-39 track etch-detektor och optisk mikroskopi (5). Snabba neutroner kolliderar där med väteatomer i detektorn varpå vätejoner bildas och lämnar spår efter sig i detektor materialet. En relation mellan spårens längd och neutronernas energi kan bestämmas med hjälp av SRIM som är en mjukvara för simulering av jon- och neutrontransport i materia (6).

Problemet med dessa metoder är att utrustningen sällan finns tillgängligt vid medicinska cyklotronanläggningar. I denna avhandling undersöks en metod där neutroner aktiverar natriumklorid och metaller som med olika tröskelenergier. Fördelen med denna metod är att aktiveringsobjekten är mer lättillgängliga vid sjukhus och andra anläggningar. De aktiverade objektens aktivitet kan sedan mätas med hjälp av till exempel en HPGe-detektor och omräknas till ett neutronflöde. Neutronaktivering av guld med och utan ett kadmiumlager är en mest använda metoden, ”*gold foil activation method*”, för att undersöka neutronflödet och dess distribution runt medicinska cyklotroner (2,4). Även andra metaller med varierande tröskelenergier, tillsammans med guld, som indium, järn, nickel och mangan har studerats (15,16,17,18,19,20,21). Aktiveringen av metallerna har jämförts med och omvandlas till

neutronflöden och dess energispektrum med hjälp av modelleringar, simuleringar och formler av olika slag. Metallerna har även i de flesta fall täckts med kadmium för att filtrera bort termiska neutroner så att endast aktivering med snabba neutroner är möjlig. På liknande sätt har bultar och skruvar bestående av koppar, zink, kobolt, mangan och järn från väggarna i cyklotronutrymmen analyserats och jämförts med guldfoliemetoden (22,23). Metoden att använda bordssalt eller mer specifikt ^{23}Na som aktiveringsobjekt för att bestämma det termiska neutronflödet i rummet runt en ^{18}F producerande medicinsk cyklotron har också tidigare undersökts. Även i denna studie jämfördes resultaten med guldfoliemetoden och korrekationer för självabsorption gjordes. Resultaten visade att neutronaktiveringen av natriumklorid med påföljande aktivitetsmätningar var en lämplig metod för att bestämma det termiska neutronflödet och att informationen senare kan användas för optimering av neutronskydd. Det konstaterades även att arbetet skulle främja strålsäkerheten och underlätta framtida demontering av utrymmet (7).

I den här avhandlingen behandlas neutronflödet och dess spridning omkring den medicinska cyklotronen TR-19 vid Nationella PET-centret i Åbo för att främja strålsäkerheten och underlätta demonterings- och uppbyggnadsarbeten. En förmånlig och användarvänlig metod för att bestämma det termiska neutronflödet med hjälp av natriumklorid som aktiveringsobjekt presenteras och utvärderas. För att bestämma objektens aktivitet användes en HPGe-detektor. De termiska neutronernas flöde kartläggs eftersom de har den största sannolikheten att aktivera sin omgivning och av neutronerna är deras kvantitet störst. Utanför kärnan är neutroner instabila och sönderfaller till en proton, en elektron och en elektronneutrino. Medellivslängden är ungefär 886 s och därför tas denna reaktion inte i beaktande i avhandlingen (8). Neutronerna hinner växelverka med kringliggande atomer innan ett sönderfall sker. Korrektionsfaktorer för självabsorption och spridning undersöks och den optimala geometrin för ett aktiveringsobjekt diskuteras bland annat utgående från det minsta detekterbara neutronflödet. I de två första kapitlen presenteras den medicinska avbildningsmetoden PET och neutroners växelverkan för att bygga en grund och förståelse för de kommande kapitlens innehåll. Natriumkloridmetodens riktighet testas med hjälp av aktiveringsobjekt av natriumklorid och guld med och utan ett lager av kadmium, fungerande som absorbator av termiska neutroner. I denna del av avhandlingen föreslås även ett neutronflöde för icke-termiska och snabba neutroner utgående från guldets inducerade aktivitet. Neutronflödet i några högre energiintervall undersöktes också med hjälp av metaller med olika tröskelenergier. Några exakta neutronflöden erhöles dock inte utan

problematiken med detta diskuteras och de inducerade aktiviteterna analyseras. Läsaren får även förslag på vidare forskning inom området, en diskussion ur ett strålskyddsperspektiv utgående från resultaten samt för- och nackdelar med metoden. Resultaten jämförs även med tidigare forskning och en felanalys utförs.

Allt detta undersöks med hjälp av fem olika experiment under rutinproduktion av radionuklider vid TR-19. Under tre av experimenten, med olika körparametrar och produktionssyften, undersöks det termiska neutronflödet och dess spridning med hjälp av natriumkloridmetoden. De två sista experimenten utförs för att testa korrektionsfaktorerna och undersöka de snabba neutronernas flöden med metaller som aktiveringsobjekt. Både för- och nackdelar med metaller och natriumklorid som aktiveringsobjekt diskuteras presenteras i kapitel 4. Där kan man även läsa om rutinproduktionernas och experimentens egenskaper och användningen av gammaspektroskopi för att mäta objektens aktivitet. I avhandlingen jämförs även användningen av natriumklorid och guld som aktiveringsobjekt vid mätningen av termiska neutroner.

2. PET (Positronemissionstomografi)

PET (Positronemissionstomografi) är en medicinsk avbildningsmetod där patienten injiceras med ett positronemitterande ämne som kallas för en radioaktiv markör. Denna metod kan användas för att undersöka funktionen och strukturen på bland annat tumörer, vävnader och organ i människokroppen. PET ger också viktig information om kroppens ämnesomsättning och om hur diverse signalsubstanser rör sig i hjärtat, hjärnan och kroppen. I vissa fall kan metoden ge läkare information om förändringar i kroppen före någon fysisk anatomisk förändring kan identifieras. Området som undersöks kan efter PET undersökningen ses som en 2D eller 3D bild (1).

De vanligaste radioaktiva nukliderna som används vid PET-undersökningar är ^{18}F , ^{11}C , ^{13}N och ^{15}O varav ^{18}F är den flitigast använda. Vid tillverkning av till exempel ^{18}F används ^{18}O -anrikat vatten som utgångsmaterial. Den radioaktiva nukliden tillverkas med hjälp av protoner från en cyklotron där neutroner är en biprodukt vid kärnreaktionen $^{18}\text{O}(\text{p}, \text{n})^{18}\text{F}$. Nukliden länkas efter kärnreaktionen samman med en kemisk substans som naturligt används av kroppen

(9). Beroende på vad i kroppen som undersöks så används olika typer av markörer och kemiska substanser. Vid analys av hjärnan används till exempel FDG, en typ av socker, som den kemiska substansen. För att undersöka blodflödet i bland annat tumörer, hjärtat och hjärnan används ^{15}O (1). För att undvika långvarig radioaktivitet och exponering av positroner i kroppen har man endast valt nuklider med kort halveringstid. Bland de ovannämnda nukliderna har ^{18}F den längsta halveringstiden på 110 minuter och ^{15}O den kortaste på 2 minuter (25,26).

Vid positronemissionstomografi förs patienten som undersöks in i en PET-kamera som omsluter hela kroppen likt en tub. Före PET-undersökningen injiceras patienten med den radioaktiva markören varpå specifika områden i kroppen drar till sig den substansen mer än andra. Ett sådant område kan vara en tumör eller ett visst protein (1). Den radioaktiva markören sönderfaller sedan i kroppen via β^+ sönderfall enligt:



[1]

där A är masstalet, Z är atomnumret och N är antalet neutroner i kärnan. X och Y är grundämnets beteckning, e^+ är en positron och ν är en neutrino utan laddning (10).

Vid β^+ sönderfall ombildas en proton till en neutron på samma gång som en positron och en neutrino frigörs. Om sönderfallet sker i kroppen så kommer positronen snabbt att stöta på en elektron och annihileras. Reaktionen frigör två fotoner som rör sig i motsatt riktning, vardera med energin 0.511 MeV. Den tillförda aktiviteten leder till att fotoner härstammande från ett stort antal annihileringar nu färdas i alla riktningar och detekteras av PET kameran som omsluter patienten. En dator kan analysera resultaten och bestämma varifrån och hur mycket fotoner som kommer från olika områden i kroppen. Utgående från detta kan en 2D eller 3D bild framställas över området (1,25,26). Den radioaktiva nuklidens korta halveringstid resulterar i att man regelbundet behöver tillverka nya markörer inför varje undersökning. Detta gör också att cyklotronen som används för tillverkningen behöver vara nära platsen där PET-undersökningen görs (2,3,4).

3. Neutroners växelverkan

För att analysera neutronflöden, neutronspridning och neutroners växelverkan med atomer så är det viktigt att först förstå sig på problematiken i neutronmätning, den använda nomenklaturen och hur neutroner växelverkar med atomer i olika energiintervall. I detta kapitel diskuteras dessa frågor och läsaren får en snabb genomgång av det mest centrala beträffande neutroners växelverkan.

3.1. Mätning av neutroner

Det här arbetet behandlar mätning av neutroner kring en medicinsk cyklotron. Neutroner med olika energi växelverkar med omkringliggande atomer på olika sätt och kan grovt sett delas in i två kategorier: långsamma neutroner ($E_n < 0,5 \text{ eV}$) och snabba neutroner ($E_n > 0,5 \text{ eV}$) (11). Neutroner har ingen laddning och växelverkar därför knappt med materia genom någon attraktions- eller repulsionskraft. Detta gör att neutroner kan färdas längre sträckor genom materia utan att växelverka med något jämfört med laddade partiklar. Den här egenskapen gör att neutroner är mycket svåra att upptäcka med detektorer eftersom de flesta detektorer baserar sig på växelverkan med till exempel atomer, elektroner eller joner (5,6). Detekteringen behöver därför ske indirekt genom att neutronen först växelverkar med en kärna som emitterar någon sorts sekundärstrålning som kan uppmätas på traditionellt sätt (2). Neutroner växelverkar endast med atomkärnor och växelverkan kan ske på två olika sätt. Den första växelverkan är neutronspridning på grund av en atomkärna, vilket leder till att neutronens energi och riktning förändras men att rörelsen fortsätter ”framåt”. Om tillräckligt mycket av neutronens energi överförs till atomkärnan, kan den i sin tur också jonisera omgivningen och ge upphov till en mätbar signal. Atomkärnorna måste vara mycket lätta för att tillräckligt med energi ska överföras och det är endast väte och helium som skulle kunna lämpa sig för detektorer. Det andra sättet är att neutronen absorberas av en atomkärna, vilket i sin tur leder till detekterbar sekundär strålning som protoner, gammastrålning och alfapartiklar (5,6). Information om neutronernas energi är svåråtkomlig, eftersom det finns begränsningar då det kommer till de befintliga neutroninducerade reaktionerna. Det finns ett begränsat antal reaktioner där enbart en del av dem har tröskelenergier. Utgående från dem kan det endast fastställas om neutronen som inducerade reaktionen var långsam eller snabb (5,6).

3.2. Långsamma neutroner

Långsamma neutroner har en kinetisk energi som är lägre än 0,5 eV. De två mest sannolika växelverkningsarna för långsamma neutroner är elastisk spridning med en atomkärna eller en neutroninducerad kärnreaktion. Eftersom långsamma neutroner är lågenergetiska så kommer den elastiska spridningen inte att överföra någon anmärkningsvärd mängd energi till kärnan som den växelverkar med. Istället omvandlar den elastiska spridningen långsamma neutroner till termiska neutroner med energin 0,025 eV om temperaturen är + 20 °C. Termiska neutroner har samma energi som de kringliggande atomernas termiska kinetiska energi. Detta betyder att de flesta långsamma och snabba neutroner blir termiska efter växelverkan med materia. Kärnreaktionen neutroninfångning är den mest sannolika för termiska neutroner (11).

De långsamma neutronerna producerar via neutroninducerade kärnreaktioner sekundär strålning. Den vanligaste sekundära strålningen är gammastrålning till följd av en (n,γ)-reaktion. I en (n,γ)-reaktion absorberar modernuklidens kärna en neutron, vilket leder till en dotternuklid i ett exciterat tillstånd. Då dotternukliden återgår till sitt grundtillstånd så emitteras sekundär gammastrålning som kan mätas. På så sätt kan man samla information om neutronerna och kärnreaktionerna. Eftersom neutronerna är mycket lågenergetiska, måste reaktionerna ha ett positivt Q-värde. Q-värdet är skillnaden i massa för utgångsprodukterna i en reaktion och reaktionsprodukterna. Det måste alltså frigöras energi vid reaktionen för att den ska vara möjlig (11).

3.3. Snabba neutroner

Snabba neutroner har en energi över 0,5 eV. Då energin för en neutron ökar, minskar sannolikheten för de flesta neutroninducerade kärnreaktionerna. Mer sannolik blir stället spridning med rekylkärnor som sekundär strålning. Vid spridningen överförs en stor del av neutronens energi till rekylkärnan som neutronen kolliderar med. Efter flera spridningar har neutronerna bromsats in avsevärt och tappat en del av sin energi. Mest energi överförs vid kollision med en lätt atomkärna, och vid kollision med en vätekärna kan till och med all kinetisk energi försvinna. Det kan också emitteras gammastrålning under förutsättningen att neutronens energi är tillräckligt hög. Neutronen växelverkar då genom inelastisk spridning med en kärna som exciteras. Då kärnan återgår till sitt grundtillstånd emitteras det gammastrålning.

Växelverkningen leder också till att neutronen tappar en stor mängd av sin energi, mer energi än vid motsvarande elastiska spridning. Sekundärstrålning i form av gammastrålning spelar en viktig roll, både för långsamma och snabba neutroner, då man undersöker neutroner och försöker konstruera lämpliga skydd mot dem (11).

3.4. Reaktionstvärsnitt

Olika växelverkningar dominerar vid olika energier både för neutroner och för gammastrålning. Sannolikheten för att de olika reaktionerna ska ske varierar alltså med neutronens energi (11). Vid beräkningar och planering av experiment som involverar växelverkan mellan neutroner och atomer är det därför viktigt att ta reaktionstvärsnittet för en reaktion i beaktande. Reaktionen kan till exempel vara absorption, spridning eller gammaproduktion. Det totala reaktionstvärsnittet för ett material är summan av tvärsnitten för de enskilda reaktionerna (11). Reaktionstvärsnittet för diverse reaktioner vid olika energier hittas i tabellverk (12).

Reaktionstvärsnittet beror på neutronens energi, materialets egenskaper och vilken/ vilka växelverkningar som undersöks. Symbolen för det mikroskopiska reaktionstvärsnittet är σ och enheten är barn (10^{-28}m^2).

Vid beaktande av antalet atomkärnor per volymenhet, N , kan det makroskopiska reaktionstvärsnittet Σ beräknas som

$$\Sigma = N\sigma$$

[2]

Den fria medelväglängden, λ , det vill säga hur långt neutronen kan färdas innan växelverkan sker, kan beskrivas som $1/\Sigma$ (11).

4. Metod

I denna metod del av avhandlingen presenteras de fem olika experimenten som utförs i forskningen, deras egenskaper och skillnader. De olika aktiveringsobjekten som används för bestämningen av neutronflöden introduceras och fördelar samt nackdelar jämförs. Även objektens placering kring den medicinska cyklotronen illustreras och metoden för att bestämma neutronspridningen i rummet diskuteras.

I kapitlet hittas även metodens beräkningsdel från gammaspektroskopins gammaspektrum till aktiveringsobjektens aktivitet och ett slutgiltigt neutronflöde. Kalibreringar, beräkningsformler samt resultat presenteras och optimering av aktiveringsobjektens geometri samt egenskaper diskuteras. Fenomenen självabsorption och spridning behandlas även och beräkningar för att kompensera för dessa fenomen undersöks och utvärderas.

4.1. TR-19 körningar och egenskaper

TR-19 är en medicinsk cyklotron, se figur 1, vid Nationella PET-centret i Åbo som togs i bruk år 2015 och används för att producera radionuklider som används vid PET undersökningar, se kapitel 2. TR-19 är belägen i en cyklotronbunker med väggar av 1,7 m tjock betong för att minimera strålning utanför bunkern. Detta för att joniserande strålning som neutroner och gammastrålning inte skall skada personal som arbetar runt eller vid cyklotronen (7). De radioaktiva utgångsmaterialen som tillverkas vid TR-19 är $[^{18}\text{F}]\text{H}_2\text{O}$, $[^{11}\text{C}]\text{CH}_4$ och $[^{11}\text{C}]\text{CO}_2$. Samtliga radionuklider produceras genom protoninducerade kärnreaktioner där de inkommande protonerna har en energi på 17 MeV och laddningsströmmen är $\approx 40 \mu\text{A}$.



Fig. 1. Den medicinska cyklotronen TR-19. Den blåa utbuktningen på vänster sida är neutronskyddet kring målstation 1.

Cyklotronen TR-19 har två målstationer där de radioaktiva utgångsmaterialen produceras, en med ett neutronskydd och en utan. Vid målstation 1, med neutronskydd, tillverkas $[^{18}\text{F}]\text{H}_2\text{O}$ och $[^{11}\text{C}]\text{CH}_4$. Neutronskyddet omsluter hela målstationen och består av två ton stål och borerat vatten. Vid målstation 2, utan neutronskydd, tillverkas $[^{11}\text{C}]\text{CO}_2$. Reaktionen som används för att tillverka $[^{18}\text{F}]\text{H}_2\text{O}$ är $^{18}\text{O}(\text{p}, \text{n})^{18}\text{F}$ där mycket neutroner uppkommer som en biprodukt vid reaktionen. Vid framställning av $[^{11}\text{C}]\text{CH}_4$ och $[^{11}\text{C}]\text{CO}_2$ utnyttjas reaktionen $^{14}\text{N}(\text{p}, \alpha)^{11}\text{C}$. Denna reaktion har alfapartiklar som biprodukt och inte neutroner. Neutroner uppkommer däremot som en biprodukt i sidoreaktionen, $^{14}\text{N}(\text{p}, \text{n})^{14}\text{O}$, och aktiverar på så sätt omgivningen. Båda reaktionernas reaktionstvärssnitt kan ses i figur 2 (13).

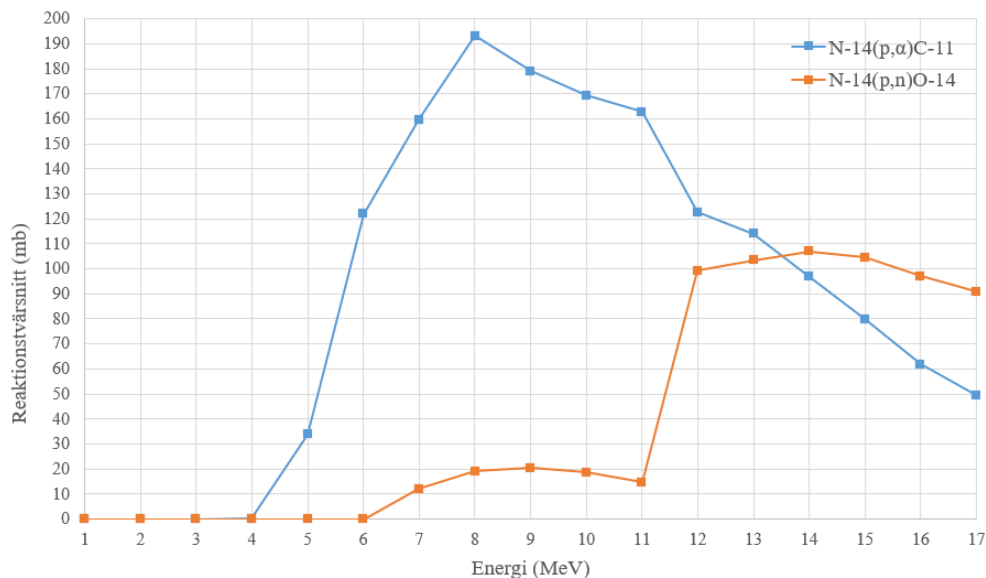


Fig. 2. Graf över reaktionstvårsnitten för reaktionerna $^{14}\text{N}(p,\alpha)^{11}\text{C}$ och $^{14}\text{N}(p,n)^{14}\text{O}$ som funktion av protonenergin. Värdena är tagna från (13).

Protonerna som kolliderar med ^{14}N befinner sig i energiintervallet 0-17 MeV. Vilken energi de innehar beror på hur mycket de har växelverkat med sin omgivning innan kollisionen. Protonerna kommer i huvudsak att växelverka med elektronerna i målmaterialet. Eftersom protonerna är högenergetiska och är ungefär 1800 gånger tyngre än elektronerna så kommer de att hinna växelverka flertalet gånger innan en protoninducerad kärnreaktion inträffar. Energin som överförs vid varje kollision är liten men trots detta så kommer protonen inte längre att befinna sig i den översta delen av energiintervallet då kärnreaktionen äger rum (14). I Fig. 2. kan ses att sannolikheten för en alfapartikel som biprodukt är betydligt större än för en neutron vid energier under 12 MeV. Trots detta är sannolikheten för en neutron som biprodukt inte obefintlig och vid höga energier är den större än för (p, α) reaktionen. Detta gör att det trots allt kommer att emitteras en ansenlig mängd neutroner vid den protoninducerade reaktionen med ^{14}N .

4.2. Användning av aktiverade objekt för bestämning av neutronflöden och -energier

För att bestämma det termiska neutronflödet och dess fördelning runt cyklotron TR-19 samt neutronernas energifördelning placerades aktiveringsobjekt ut under fem olika tillfällen eller körningar. Körparametrarna för de fem experimenten kan ses i tabell 1. Med aktiveringsobjekt avses objekt som genom bestrålning görs radioaktiva. Den emitterade gammastrålningen kan sedan mätas och omvandlas till ett neutronflöde. Gammastrålningen mättes med hjälp av en kvävekyld Ortec HPGe-detektor.

Alla aktiveringstillfällen skedde under rutinproduktion av PET radionuklider. Under de tre första körningarna, TR-19-01, TR-19-02 och TR-19-03 undersöktes det termiska neutronflödets kvantitet och dess fördelning runt cyklotronen med hjälp av koksalt som aktiveringsobjekt. Under körning TR-19-01 analyserades neutronflödet från rutinproduktion av $[^{18}\text{F}]\text{H}_2\text{O}$, under TR-19-02 från produktion av $[^{11}\text{C}]\text{CO}_2$ och under TR-19-03 neutronflödet från framställning av $[^{11}\text{C}]\text{CH}_4$.

De termiska neutronerna är speciellt viktiga att undersöka eftersom de har den högsta sannolikheten att aktivera sin omgivning och är den största källan till neutroninducerade kärnreaktioner som emitterar gammastrålning (3,6). Ju högre energi neutronerna har desto lägre blir sannolikheten för att kärnreaktioner som i vårt fall är neutronabsorption skall äga rum (11). Det termiska neutronflödet är också centralt eftersom majoriteten av de inkommande både snabba och långsamma neutronerna är eller blir termiska då de växelverkar med kringliggande medium och aktiveringsobjektet före de absorberas. Långsamma neutroner blir termiska främst genom elastisk spridning och snabba neutroner främst genom inelastisk spridning då de bromsas upp (11).

Under den fjärde körningen, TR-19-04, placerades det ut koksalt i burkar med olika geometrier. Avsikten var att undersöka vilken inverkan självabsorption och spridning har på aktiveringsobjekten och för att kontrollera beräknade korrektionsfaktors duglighet. Körning nummer fem, TR-19-05, utfördes för att bestämma neutronernas energifördelning och därför användes metaller denna gång som aktiveringsobjekt. Metallerna som bestrålades med neutroner har olika tröskelenergier vilket kunde utnyttjas för att undersöka i vilket

energiintervall neutronerna befann sig under aktiveringsögonblicket. Bestrålningstiden och strålströmmen varierade mellan alla körningar.

Syftet med TR-19-05 var att undersöka hur mycket av de neutroner som når aktiveringsobjekten som har en energi inom specifika energiintervall. Neutronerna, som är en biprodukt vid produktionen av radionuklider, emitteras från kärnan med olika mängd kinetisk energi (15). Efter emitteringen växelverkar de med atomer i cyklotronen själv, luften, neutronskyddet samt sist och slutligen med bunkerns väggar och aktiveringsobjektet (2,3). Växelverkan med atomer i omgivningen bromsar och sprider neutronerna vilket leder till färdsträckan innan de träffar sin slutdestination varierar. Allt detta påverkar vilken kinetisk energi neutronerna innehar då absorptionen i aktiveringsobjektet sker. Genom att känna till neutronernas energifördelning fås information om vilka kärnreaktioner som är de mest sannolika för atomer i kringliggande material och därigenom vilka radionuklider som kan bildas. Vetskapen om den inducerade aktiviteten är viktig vid demontering av cyklotronen och cyklotronutrymmet samt vid bedömning av den joniserande strålning som personalen exponeras för (2,3).

Tabell 1. Körparametrar för de fem experimenten.

	Målstation 1				Målstation 2
	Neutronskydd				Inget neutronskydd
Körningens namn	TR-19-01	TR-19-03	TR-19-04	TR-19-05	TR-19-02
Rutinproduktion	$[^{18}\text{F}]\text{H}_2\text{O}$	$[^{11}\text{C}]\text{CH}_4$	$[^{18}\text{F}]\text{H}_2\text{O}$	$[^{18}\text{F}]\text{H}_2\text{O}$	$[^{11}\text{C}]\text{CO}_2$
Reaktion	$^{18}\text{O}(\text{p}, \text{n})^{18}\text{F}$	$^{14}\text{N}(\text{p}, \text{n})^{14}\text{O}$	$^{18}\text{O}(\text{p}, \text{n})^{18}\text{F}$	$^{18}\text{O}(\text{p}, \text{n})^{18}\text{F}$	$^{14}\text{N}(\text{p}, \text{n})^{14}\text{O}$
Mängd neutroner	Stort	Litet	Stort	Stort	Litet
Bestrålningstid (min)	23	30	11	36	15
Bestrålningssladdning (μAmin)	912	1163	443	1085	557
Aktiveringsobjekt	NaCl	NaCl	NaCl	Metaller	NaCl

4.2.1. Natriumklorid som aktiveringsobjekt

Koksalt användes för att indirekt bestämma kvantiteten och fördelningen av neutroner med termisk energi i TR-19 cyklotronbunkern (7). Saltet utnyttjades som aktiveringsobjekt i alla fem körningar men huvudsakligen i TR-19-01, TR-19-02, TR-19-03 och TR-19-04. Salt består av både natrium och klor, NaCl, men det bara neutronabsorptionen i natrium som användes vid analysen. Reaktionen som utnyttjades var $^{23}\text{Na}(n,\gamma)^{24}\text{Na}$. Den stabila isotopen ^{23}Na absorberar då en inkommande neutron, omvandlas till ^{24}Na och emitterar sedan gammafotoner vid sitt sönderfall. Sönderfallet sker via β^- - sönderfall där en neutron i ^{24}Na kärnan omvandlas till en proton på samma gång som en elektron och en antineutrino emitteras (11). ^{24}Na sönderfaller då till sin dotternuklid, en exciterad ^{24}Mg atom. Då magnesiumet går till sitt grundtillstånd emitteras de nuklidspecifika gammafotonerna för ^{24}Na (32,33).

Natrium valdes som aktiveringsobjekt på grund av dess höga reaktionstvärsnitt för termiska neutroner, dess relativt låga reaktionstvärsnitt för snabba neutroner, se figur 3, och dess lämpliga halveringstid (3,28). En kort halveringstid skulle innebära att aktiviteten och strålningen skulle hinna avta för mycket innan detekteringen av den. Detta skulle medföra detekteringsproblem och resultaten skulle bli opålitliga. En för lång halveringstid skulle betyda att provet är aktivt länge och återanvändning av prov skulle vara komplicerat. Provet skulle även kunna emittera strålning från andra körningar än den som utförts senast och vara till besvär vid aktivitetsmätningar. En lång halveringstid skulle också riskera att personalen exponeras för joniserande strålning (3,28). Se tabell 2 för mer information om natriums egenskaper.

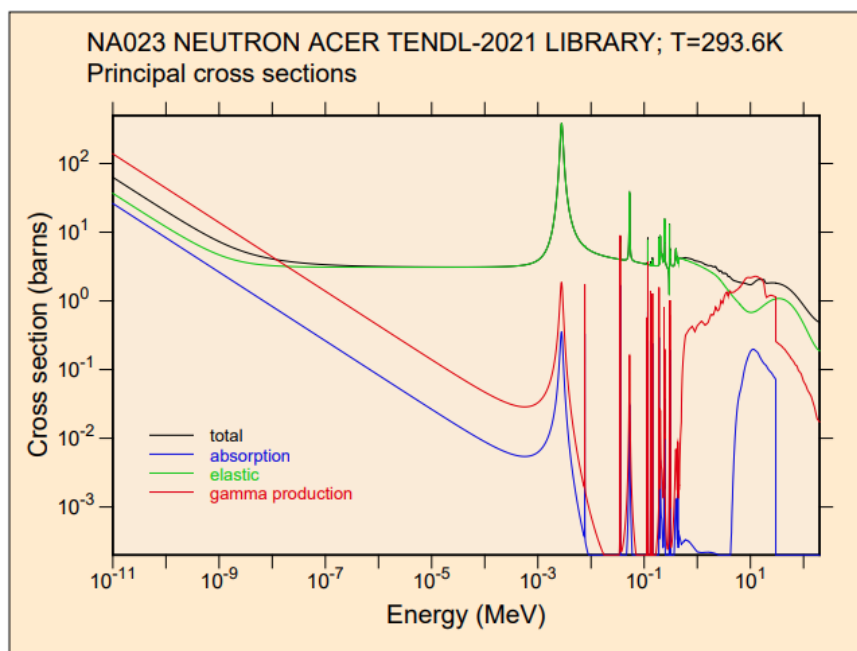


Fig. 3. Den blåa grafen beskriver absorptionstvärnsnittet för reaktionen $^{23}\text{Na}(n,\gamma)^{24}\text{Na}$ i barn som funktion av neutronenergin i MeV. Figuren är hämtad från (12). Observera att skalan är logaritmisk.

Majoriteten av neutronerna som absorberas av ^{23}Na och som aktiverar omgivningen är termiska (13) trots att neutronerna som emitteras som biprodukt från strålmålet kan ha en hög energi. Det är alltså avgörande att ^{23}Na har ett högt reaktionstvärnsnitt vid termiska energier för (n, γ) reaktionen. Ett lågt reaktionstvärnsnitt skulle innebära att en för liten mängd aktivitet produceras för att resultaten skulle kunna anses trovärdiga vid mätningar av den. Snabba neutroner kan också aktivera ^{23}Na genom samma (n, γ) reaktion som de termiska neutronerna och emittera gammastrålning (16). Reaktionstvärnsnittet för snabba neutroner är mycket lägre än för termiska neutroner, med undantag för vissa resonansenergier, se figur 3 (13). Resonansenergierna för ^{23}Na är få jämfört med andra material och torde inte ha en så stor inverkan på resultaten (3,29). De snabba neutronernas aktivering av saltet medför dock en viss osäkerhet i resultaten på grund av antagandet att det främst är termiska neutroner som aktiverar proverna. En del av aktiviteten i provet kan alltså härstamma från aktivering av snabba neutroner och inte endast termiska. De snabba neutronernas bidrag studerades genom att med hjälp av en kadmiumplatta framför ett NaCl prov förhindra termiska neutroner att nå provet i körning TR-19-05. Då kunde endast de snabba neutronerna aktivera saltet och deras inverkan på resultatet i de fyra första experimenten bestämmas.

Salt är billigt och enkelt att få tag på vilket gör det behändigt att tillverka nya prov. Användningen av salt som prov är också praktiskt på grund av möjligheten att enkelt variera provets geometri. Provet kan lätt anpassas till en form som är behändig att göra beräkningar på och som inte har oönskade geometriska variationer. Vanligt bordssalt är dessutom så pass rent så att inga ovälkomna toppar från föroreningar uppkommer i gammaspektret (7). Endast toppar från ^{24}Na , ^{40}Cl och bakgrund hittades.

Alla saltprover som användes, förutom under körning TR-19-04, bestod av salt i små plastburkar med salthöjden 2,9 cm och saltradien 1,08 cm. Plastburkarnas väggar var av tjockleken 0,15 cm. Varje prov innehöll ungefär samma mängd salt, ca. 16 g. Under körning TR-19-04 varierades saltprovernans geometrier. Se figur 4.

Tabell 2. Natriums egenskaper vid användningen av ämnet som aktiveringsobjekt, hämtade från (16).

Ämne	Reaktion	Halveringstid	E_{Gamma} (keV)	Intensitet (%)
^{23}Na	$^{23}\text{Na}(n, \gamma)^{24}\text{Na}$	14.96 h	1368.6	100.0

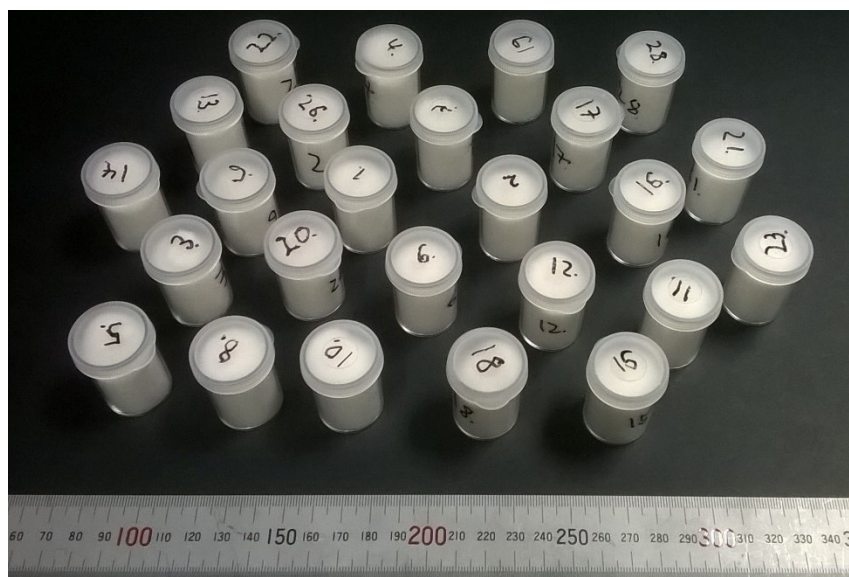


Fig. 4. Proverna av NaCl som användes under körning TR-19-03.

4.2.2. Metaller som aktiveringsobjekt

Metallerna användes, till skillnad från saltet i de första körningarna, för att undersöka neutronernas energifördelning under körning TR-19-05. Syftet var att fastställa hur mycket av de inkommande, emitterade neutronerna som är snabba, icke-termiska och termiska. Neutronernas energier delades upp i olika energiintervall utgående från de använda metallernas tröskelenergier. Metallerna som användes för detta var järn, guld och indium, se figur 5. Kadmium användes även här som absorbator av termiska neutroner framför prov av salt och guld för att mäta kvantiteten av icke-termiska neutroner.

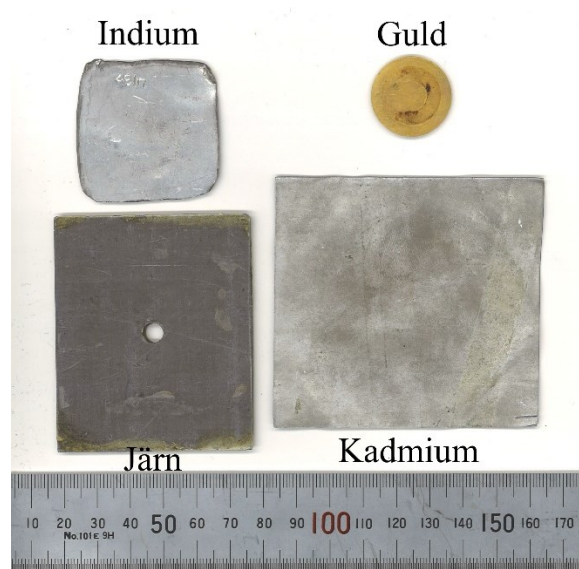


Fig. 5. Metallerna indium, järn, guld och kadmium som användes under experiment TR-19-05.

Natriumklorid- och guldprov med och utan ett kadmium lager aktiverades under experiment TR-19-05 för att undersöka natriumkloridmetodens riktighet och kvantiteten av snabba neutroner. Detta eftersom det under tidigare körningar har antagits att majoriteten av aktiviteten härstammar från absorptionen av termiska neutroner och att inverkan av de snabba neutronerna kan negligeras. Syftet är alltså bland annat att rättfärdiga antaganden som gjorts under de fyra första körningarna. Kadmium (Cd) är en mycket effektiv absorbator av termiska neutroner på grund av den stabila isotopen, ^{113}Cd , höga reaktionstvärnsnitt för termiska neutroner men låga tvärnsnitt för neutroner med högre energier, se figur 6 (28,34). Energin där tvärnsnittet drastiskt sjunker har generellt accepterats vara vid 0,5 eV. Av naturligt förekommande kadmium består 12,3 % av ^{113}Cd (17).

Kadmiumfolier med tjockleken 0,35 mm placerades framför en guldplatta och ett saltprov så att all inducerad aktivitet i guldplattan skulle härstamma från icke-termiska neutroner. Guld och salt utan kadmium bestrålades också varpå man, genom att subtrahera respektive beräknade neutronflöden, kunde sluta sig till hur mycket av neutronerna som är termiska och icke-termiska. Guldfolier med och utan kadmium är en väl beprövad metod för detektering av neutroner och kallas för the ”gold foil activation method” (2,4). Detta på grund av guldets höga reaktionstvärnsnitt för termiska neutroner, dess passande halveringstid och dess lämpliga reaktionstvärnsnitt för icke-termiska neutroner (2,3).

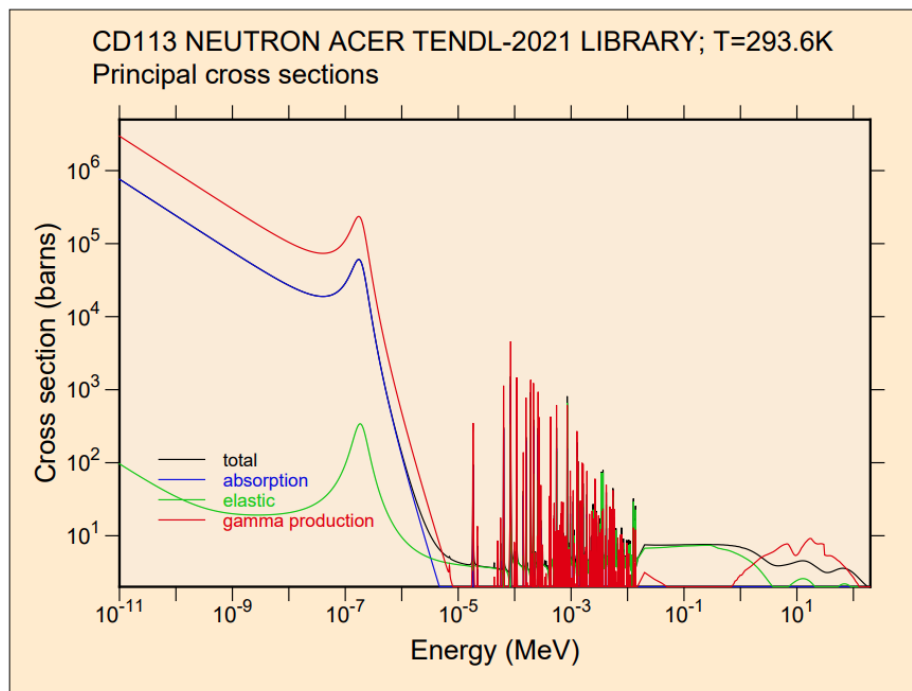


Fig. 6. Den blåa grafen beskriver reaktionstvärnsnittet för neutronabsorption för ^{113}Cd med avseende på neutronenergi. Figuren är hämtad från (12). Observera att skalan är logaritmisk.

Indium, järn och guld valdes som aktiveringsmetaller på grund av deras tröskelenergier vid specifika kärnreaktioner (15,35). Metallernas tröskelenergier är någorlunda jämnt fördelade över det studerade energiintervallet, se tabell 3. Tröskelenergin för ett ämne och en reaktion definieras som det minsta värde på den kinetiska energin hos en neutron som krävs för att kärnreaktionen skall äga rum. Det går alltså att sluta sig till att alla neutroner som genomgick denna reaktion hade en energi högre än tröskelenergin. Genom att, med hjälp av metallerna, bestämma neutronflödet i flera olika energiintervall kan också neutronflödet i ytterligare energiintervall beräknas genom addition och subtraktion. Metallerna har inte heller en allt för

lång halveringstid vilket är bra med tanke på strålsäkerhet. Se metallernas egenskaper i tabell 3.

Aktiveringsobjekten av järn var två skruvar där huvudets höjd var 1,59 cm, gängans höjd var 2,47 cm, huvudets diameter var 2,38 cm och gängans diameter var 1,59 cm. Skruvarna hade även hål i huvudet med höjden 1,59 cm och diametern 1,43 cm. Ett annat aktiveringsobjekt av järn var en platta med höjden 7,11 cm, bredden 5,92 cm, och medeltjockleken 0,24 cm. Indium plattan var av dimensionerna, höjden 4,24 cm, bredden 4,28 cm och tjockleken 0,12 cm. Guldplattorna hade diametern 2,41 cm och tjockleken 0,11 cm. De två olika kadmiumbitarna hade tjockleken 0,035 cm och var så pass stora så att de täckte hela saltprovet och guldprovet.

Tabell 3. De aktiverade metallernas egenskaper, tagna från (15,28,33,35).

Grundämne	Reaktion	Halveringstid	$E_{\text{Tröskel}}$ (MeV)	E_{Gamma} (keV)	Intensitet (%)
Fe	$^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$	2.58 h	3.0	846.7	98.9
Au	$^{197}\text{Au}(n,2n)^{196}\text{Au}$	6.18 d	8.1	355.7	87.0
Au	$^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$	2.70 d		411.8	96.0
In	$^{115}\text{In}(n,n')^{115\text{m}}\text{In}$	4.49 h	0.3	336.2	45.8
In	$^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116\text{m}}\text{In}$	54.3 min		1293.6	84.4

4.3. Placering av aktiveringsobjekt

Samtliga aktiveringsobjekt placerades ut längs med väggarna i cyklotronbunkern runt TR-19, se figur 7. Under körningarna TR-19-01, TR-19-02 och TR-19-03 placerades burkarna med salt ut på bestämda platser i rummet som inte varierade mellan körningarna för att enkelt kunna jämföra neutronflödesresultaten. Ibland undersöktes specifika platser, till exempel under en målstation, varpå somliga aktiveringsobjekts platser varierades. Saltproverna placerades ca. 117 cm ovanför golvet och med jämna mellanrum längs med bunkerns väggar. Burkarna tejpades fast och avstånden mättes med måttband. Under körning TR-19-01 och TR-19-02 användes samma aktiveringsobjekt som var numrerade 1-20. Under körning TR-19-03 användes nya burkar med koksalt numrerade 21-39. Se figur 8 och 9.

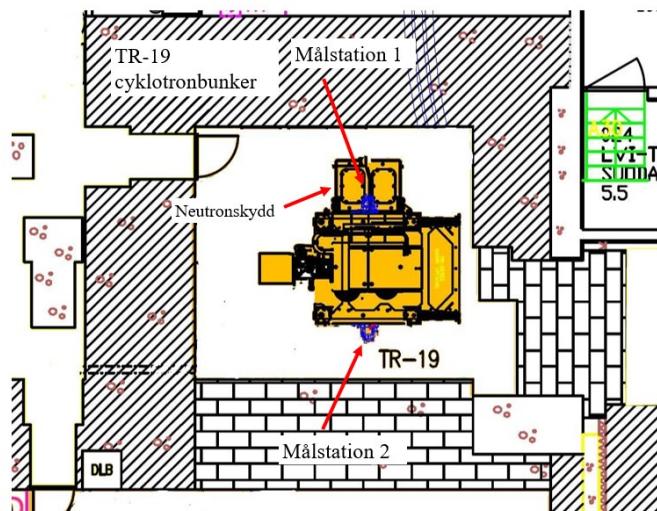


Fig. 7. Ritning över cyklotronbunkern där partikelacceleratorn TR-19 är belägen.

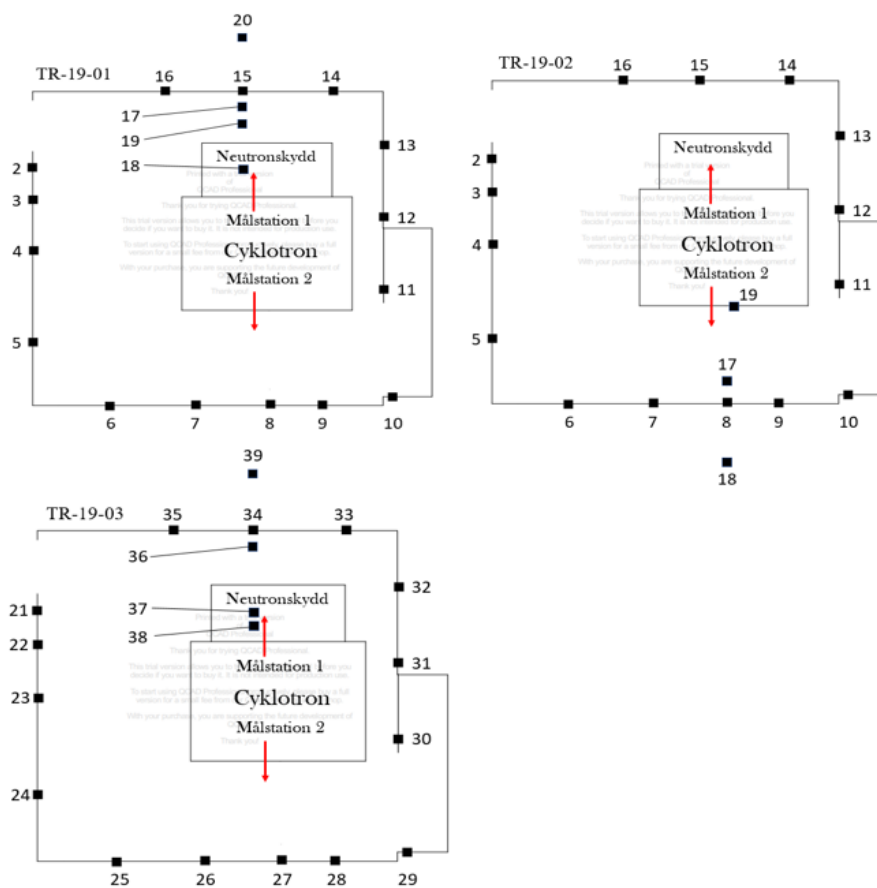


Fig. 8. Ritningar över TR-19 cyklotronbunkern, cyklotronen och målstationerna. En kvadrat och ett nummer representerar ett NaCl prov, dess placering i utrymmet och namn under körningarna TR-19-01, TR-19-02 och TR-19-03.

Under experiment TR-19-01 är prov NaCl 18 placerad under neutronskyddet och prov NaCl 20, 15, 17 och 19 placerade under varandra längs med väggen. Under experiment TR-19-02 är objekt NaCl 19 placerad ovanpå cyklotronen och objekt NaCl 18, 8 och 17 placerade under varandra längs med väggen. Under körning TR-19-03 är prov NaCl 37 placerad under neutronskyddet och NaCl 38 på neutronskyddet. Prov NaCl 39, 34 och 36 är placerade under varandra läng med väggen.



Fig. 9. Prov NaCl 7, NaCl 8 och NaCl 9 placering längs cyklotronbunkerns väggar under körning TR-19-01.

Vid analys av neutronernas energifördelning inom olika energiintervall, körning TR-19-05, och under körning TR-19-04 där objekt med olika geometrier bestrålades var placeringen annorlunda. Under båda körningarna placerades metallerna och saltproverna ut nära varandra, på rad framför målstation 1, se figur 10. Under båda körningarna producerades det $[^{18}\text{F}]\text{H}_2\text{O}$. Denna placering valdes eftersom analysen av metallproverna krävde att de bestrålades med ungefär lika mycket neutroner. Om det totala neutronflödet vid proven är lika går det att subtrahera och addera de olika energiintervallens beräknade neutronflöden och bestämma neutronflödet i ännu fler energiintervall. Placeringen framför målstation 1 valdes eftersom det

producerades mycket neutroner vid reaktionen $^{18}\text{O}(p,n)^{18}\text{F}$ vilket leder till en hög aktivitet i aktiveringsobjekten. Detta gör i sin tur så att mätningen av den inducerade gammastrålningen blir statistiskt mer signifikant.

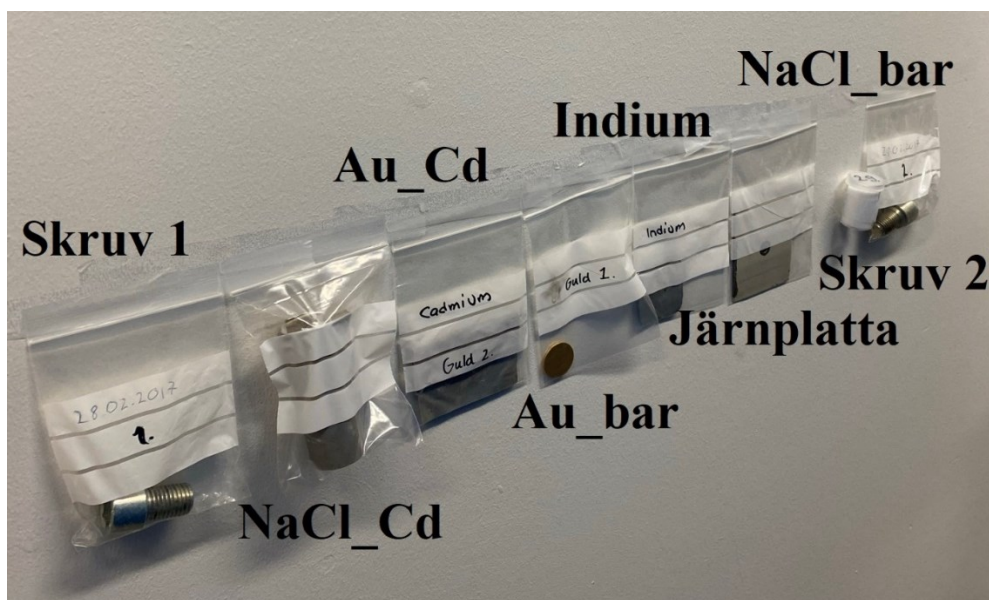


Fig. 10. Placeringen av aktiveringsobjekt under TR-19-05 framför målstation 1. Saltproverna med olika geometrier placerades under körning TR-19-04 på liknande vis.

4.4. Gammaspektroskopi

4.4.1. Användning

Aktiveringsobjektens aktivitet mättes med hjälp av gammaspektroskopi efter att de bestrålats och aktiverats av neutroner. Objektens kända aktivitet möjliggjorde därefter en uppskattning av neutronflödet. Detektorn som användes för att mäta gammastrålningen var en High-Purity Germanium Coaxial-detektor (HPGe-detektor). Aktiveringsobjekten placerades med mittpunkten 10 cm från detektors yta och 10,4 cm från detektorkristallen. Objektets mittpunkt positionerades även på samma höjd som detektorkristallens mittpunkt, se figur 11. Objekt med liknande aktivitet analyserades under lika lång tid, 1200 s. HPGe-detektorn omvandlar de inkommande fotonerna till pulser som detektorsystemet kan omvandla till ett energi- och intensitetsspektrum över det analyserade provets emitterade gamma- och röntgenstrålning, se

figur 12 och 13 (11). I spektrumet kan varje topp kopplas till en viss energi och toppens area motsvarar antalet detekterade gammafotoner av den specifika energin. HPGe-detektorer kan detektera högenergetiskstrålning eftersom de har en stor känslig volym. Fotonerna hinner alltså växelverka med detektorkristallens atomer tillräckligt många gånger för att överföra all sin energi innan de lämnar kristallen (11).

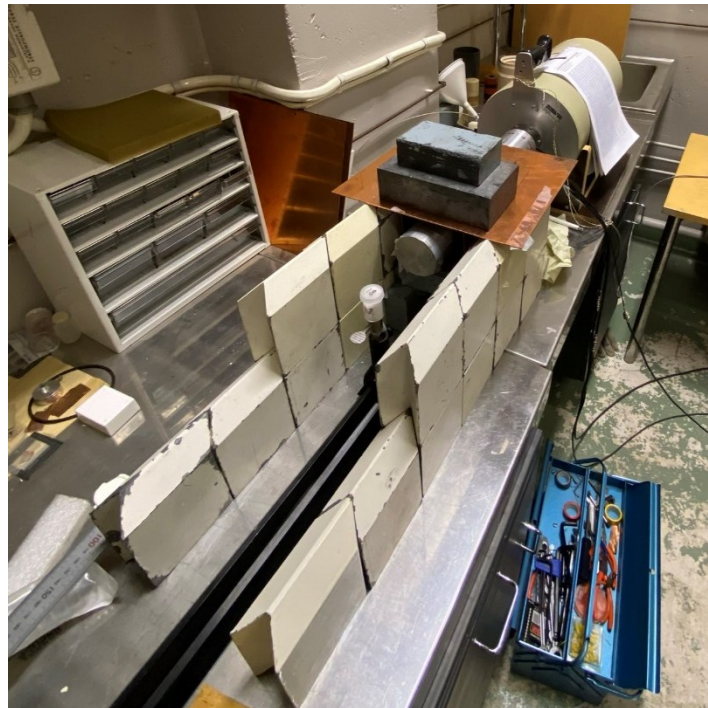


Fig. 11. HPGe-detektorn som användes vid gammaspektroskopin i alla körningar.

Då spektrumet skulle analyseras, behövde topparna identifieras först. För att göra detta måste i de flesta fall en energikalibrering utföras. De korrekta energierna kunde sedan användas för att identifiera topparna utgående från tabellerade värden (16). Om gallring mellan nuklider som emitterar gammastrålning med samma energi behöver göras, jämförs intensitet och halveringstid för att hitta den mest sannolika nukliden. Intensiteter och halveringstider går att finna i databaser över radioaktiva sönderfall (16). Den viktigaste delen i gallringen är den egna reflektionen över vilka nuklider som är rimliga att finna i provet. Energitoppar från bakgrundsstrålning finns ofta med i gamma- och röntgenspektrum och är viktiga att ta i beaktande vid analys av prov, se figur 12 och 13.

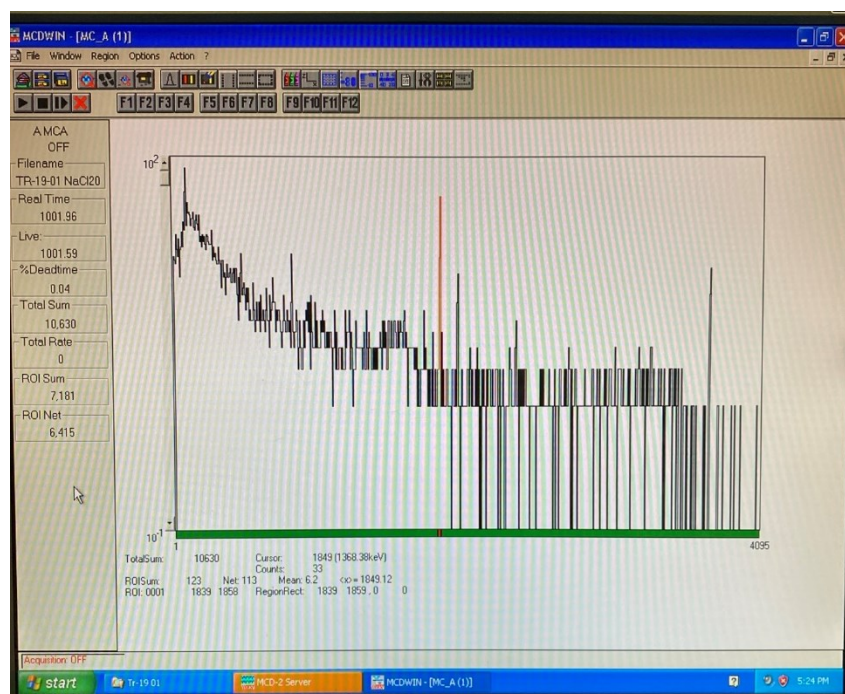


Fig. 12. Gamma- och röntgenspektrumet från prov NaCl 20 som aktiverades under körning TR-19-01. Den topp som markerats med rött är gammatoppen från ^{24}Na som användes i proverna av koksalt.

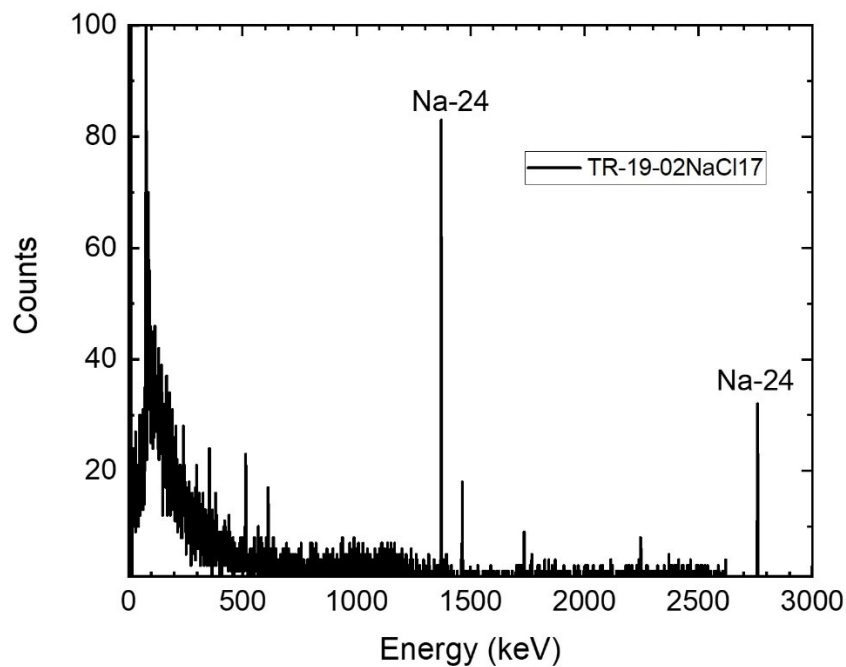


Fig. 13. Gamma- och röntgenspektrumet samt två markerade ^{24}Na -toppar för prov NaCl 17 som aktiverades under körning TR-19-02.

De insamlade gammaspektrumen sparades och analyserades med programvaran Fitzpeaks (18). Fitzpeaks identifierade och beräknade arean under de största topparna i spektrumet. Programmet sammanfattade också viktig information om gammatopparna, som till exempel energi och area som sedan användes i beräkningarna av aktiviteten. I de fall där den undersökta gammatoppen inte var tillräckligt stor för programmet att automatiskt hitta lades den till manuellt.

4.4.2. Detektoreffektivitet, upplösning och energikalibrering

En energikalibrering gjordes för att försäkra sig om från vilka nuklider gammatopparna i spektrumet härstammade. Energierna som uppmättes under gammaspektroskopin var förskjutna och stämde alltså inte överens med deras verkliga värden. Energikalibreringen användes framför allt då metallernas gammatoppar skulle identifieras, eftersom topparna var fler än för saltet och förekomsten av orenheter i proverna var troligare. Som kalibreringskällor användes en topp från ^{137}Cs och två toppar från ^{60}Co . En linjär regression, $a+bx$, gjordes med programmet Geogebra och en funktion för att beräkna de korrekta energierna utgående från topparnas kanaler utformades. Med hjälp av den bildade funktionen från linjär regressionen kunde de verkliga energierna för gammatopparna beräknas.

Resultatet blev:

$$E = 0,732479x + 6,807450$$

[3]

Där x är kanalen tillhörande toppen och E är dess korrekta energi. Topparnas kanaler kan till exempel erhållas från programmet Fitzpeaks rapport över det analyserade provet. För att kontrollera den linjära regressionens riktighet användes kanaler och toppar från referensnukliden ^{152}Eu . Kanalens värde lades in i ekvation [3] varpå den korrekta energin beräknades. Energin jämfördes med tabellerade energier för ^{152}Eu och kalibreringen ansågs tillräckligt bra för att använda i fortsättningen.

Detektorns effektivitet är viktig att ta i beaktande eftersom all strålning som emitteras från aktiveringsobjektet inte registreras av detektorn. Effektiviteten beskriver hur stor andel av den emitterade strålningen som faktiskt detekterades och behöver bestämmas för att kompensera

för den förlorade strålningen i vidare beräkningar (11). Detektoreffektiviteten varierar över hela det uppmätta energiintervallet varpå en kurva med avseende på energi måste framställas. Utgående från effektivitetskurvan kan sedan effektiviteten vid alla de analyserade gammatopparna avläsas vid respektive energi.

Den absoluta detektoreffektiviteten, antalet emitterade fotoner jämfört med antalet uppmätta fotoner (11), för HPGe detektorn bestämdes med hjälp av kalibreringspreparaten ^{137}Cs och ^{152}Eu med kända aktiviteter och toppar. Preparaten placerades 10 cm från detektorn med mittpunkt mot mittpunkt varefter de största gammatopparna identifierades och detektoreffektiviteten för topparna beräknades med formel [6]. En andrags exponentialfunktion av formen $\epsilon(E) = a \cdot e^{b \cdot E} + c \cdot e^{d \cdot E}$ anpassades därefter till de beräknade mätpunkterna, se figur 14. Där ϵ är detektoreffektiviteten och enheten för energin E är eV. Programmet som användes för kurvanpassningen var Matlab och redskapet Curve Fitting Toolbox 3.5.9 (19). R-square = 0,9991 vilket visade på en bra anpassning.

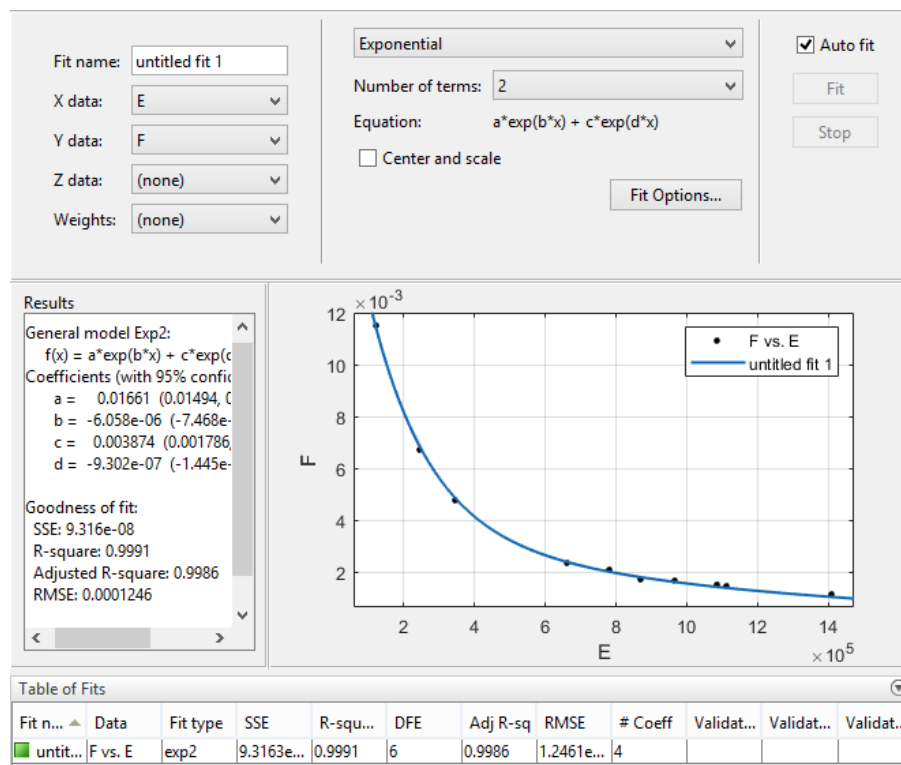


Fig. 14. Kurvanpassningen som gjordes på Matlab för att bestämma effektivitetskurvan.

Effektivitetskurvans koefficienter blev efter kurvanpassningen:

$$a = 0,01661; b = - 6,058 \cdot 10^{-6} \text{ eV}^{-1}; c = 0,003874; d = - 9,302 \cdot 10^{-7} \text{ eV}^{-1}$$

Denna effektivitetskurva användes vid bestämningen av aktiviteten i körningarna TR-19-01, TR-19-02, TR-19-04 och TR-19-05 då avståndet mellan det aktiva provet och detektorn var 10 cm. Vid körning TR-19-03 var avståndet mellan det aktiva provet och detektorn 11 cm. En ny effektivitetskalibrering och kurvanpassning gjordes med referensnukliden ^{152}Eu och avståndet till detektorn 11 cm. Resultatet blev:

$$\epsilon(E) = 0,02199 \cdot e^{-1,323 \cdot 10^{-5} \cdot E} + 0,006289 \cdot e^{-1,497 \cdot 10^{-6} \cdot E}$$

[4]

De beräknade detektoreffektiviteterna för alla aktiverade nuklider kan ses i tabell 4.

Tabell. 4. Saltets och metallernas studerade reaktion, gammaenergi, beräknad detektoreffektivitet och avstånd till detektorn.

Reaktion	Toppenergi (keV)	Detektoreffektivitet, ϵ	Avstånd till detektor (cm)
$^{23}\text{Na}(n, \gamma)^{24}\text{Na}$	1368,6	0,001089	10
$^{23}\text{Na}(n, \gamma)^{24}\text{Na}$	1368,6	0,0008106	11
$^{56}\text{Fe}(n, p)^{56}\text{Mn}$	846,7	0,001861	10
$^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$	336,2	0,005004	10
$^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116\text{m}}\text{In}$	1293,6	0,001170	10
$^{197}\text{Au}(n, 2n)^{196}\text{Au}$	355,7	0,004708	10
$^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$	411,8	0,004012	10

Detektorns upplösning beskriver energitopparnas bredd. Ju bättre upplösningen är desto smalare och skarpare är topparna. En bra energiupplösning gör det enklare att urskilja enskilda toppar i spektrumet och detta gör också att man kan försäkra sig om att två eller fler närliggande gammatoppar inte har smält ihop till en större topp. Även väldigt små gammatoppar kan gömma sig bakom en större och bidra till dess intensitet och area. Ju högre upplösningen är i procent desto ofördelaktigare den varpå risken för felaktig identifiering och aktivitet är större (11).

En topps bredd beror på elektron-hål par bildningen som sker i detektorkristallen då fotonerna växelverkar med dess atomer. En gammafoton kan ge upphov till många elektron-hål par om den genomgår flertalet reaktioner, ju mer energi fotonen har desto fler par bildas och detekteras. Fler elektroner resulterar i en högre ström, större puls, vars storlek sedan översätts till fotonens energimängd (6,38). Men, en del av fotonens energi kan också gå åt till icke-joniserande reaktioner som inte skapar några elektron-hål par i detektorn. Detta gör att antalet bildade par kan variera lite mellan gammafotoner med samma energi och som följd ger det här små variationer i energin detektorn uppfattar att fotonen hade vilket gör gammatoppen bredare. Dessa icke-joniserande reaktioner är till exempel, icke-joniserande excitation, termisk rörelse och molekylära vibrationer (6,38).

Detektorsystemets upplösning, R , kan beräknas enligt,

$$R = \frac{FWHM}{E}$$

[5]

Där $FWHM$ (full width at half maximum) är halvvärdesbredden som beskriver energibredden vid hälften av toppens höjd och E är toppens uppmätta energi (11). Energiupplösningen vid ^{60}Co energitopp 1,33 MeV beräknades och resultatet blev 0,14 %. $FWHM$ var 1,89 keV och togs från provets FitzPeaks rapport (18). Resultatet jämfördes med systemets optimala energiupplösning vid samma gammatopp givet i detektorns kvalitetssäkrings datacertifikat. Certifikatet garanterade en halvvärdesbredd mindre än 2,15 keV och för systemet hade en halvvärdesbredd på 1,74 keV uppmäts. Detta betyder att den i avhandlingen presenterade upplösningen är tillfredsställande för ändamålet och inom ramarna för certifikatets utlovade upplösning.

4.4.3. Från spektrum till aktivitet

Efter att provens emitterade gammastrålning uppmäts med HPGe-detektorn och ett gammaspektrum erhållits beräknades provens aktivitet. Aktiviteten är relaterad till hur många neutroner som absorberats i dem och fastställdes för att vidare användas i beräkningar av neutronflödets kvantitet och neutronernas energifördelning.

Aktiviteten för en viss nuklid vid tidpunkten för gammaspektroskopin beräknades med hjälp av formeln nedan (20),

$$A = \frac{A_{topp}}{\varepsilon \cdot I \cdot T_{live}} \quad [6]$$

där A är nuklidens aktivitet, A_{topp} är gammatoppens area, ε är den absoluta effektiviteten för den undersökta nukliden, I är gammatoppens intensitet och T_{live} är insamlingstiden.

På grund av de valda nuklidernas korta halveringstid så kommer aktiviteten att sjunka innan gammaspektroskopin utförs. Det är neutronflödet och objektens aktivitet direkt efter neutronbestålningen som är tätt sammankopplade, ju större neutronflöde desto radioaktivare kommer objekten att vara. För att räkna ut provets aktivitet vid bestrålningens slut (EOB) användes formeln (21),

$$A_0 = \frac{A}{e^{-\frac{\ln(2) \cdot t_{avkl.}}{T_{1/2}}}} \quad [7]$$

där A_0 är den ursprungliga aktiviteten och $t_{avkl.}$ är provets avklingningstid. Avklingningstiden är tiden mellan neutronbestålningens slut och mätningen av provets aktivitet. $T_{1/2}$ är nuklidens halveringstid.

För att kunna jämföra den ursprungliga aktiviteten mellan aktiveringsobjekt normaliseras den med avseende på massa och integrerad laddning, se tabell 5 och tabell 6. Aktivitetskoncentrationen beräknas genom att dividera objektets ursprungliga aktivitet med dess massa och körningens bestrålningsström.

Tabell. 5. Natriumkloridprovernas beräknade aktivitetskoncentrationer omedelbart efter bestrålningens slut (EOB) för körningarna TR-19-01, TR-19-02 och TR-19-03. Provernas position (namn) i cyklotronbunkern, vilken rutinproduktion som utfördes under körningens gång och huruvida det fanns ett neutronskydd eller inte.

Aktivitetskoncentration vid EOB (Bq/g · C)			Aktivitetskoncentration vid EOB (Bq/g · C)	
$[^{18}\text{F}]\text{H}_2\text{O}$		$[^{11}\text{C}]\text{CO}_2$	$[^{11}\text{C}]\text{CH}_4$	
Neutronskydd		Inget neutronskydd	Neutronskydd	
NaCl position	TR-19-01	TR-19-02	NaCl position	TR-19-03
2	170,8	118,8	21	33,7
3	179,1	161,4	22	33,0
4	169,8	172,6	23	31,8
5	130,2	307,7	24	22,6
6	108,9	202,6	25	22,0
7	78,8	321,0	26	22,6
8	87,5	450,1	27	18,0
9	67,5	302,8	28	18,3
10	64,4	243,9	29	22,9
11	123,4	289,1	30	29,3
12	180,5	144,7	31	38,5
13	246,9	106,1	32	40,5
14	211,9	76,8	33	44,2
15	209,9	66,0	34	34,6
16	176,8	107,5	35	28,3
17	189,0	521,4	36	48,4
18	194,4	280,8	37	47,6
19	230,6	291,5	38	60,1
20	188,0		39	45,8

Under körning TR-19-01 föll prov NaCl 10 från sin position i höjd med målstationen ner på golvet och tas därför inte med i beräkningar i fortsättningen. Den genomsnittliga aktivitetskoncentrationen för ^{24}Na exponerade för huvudsakligen termiska neutroner från reaktionen $[^{18}\text{F}]\text{H}_2\text{O}$ var 163,5 Bq/g · C, från $[^{11}\text{C}]\text{CO}_2$ var 231,4 Bq/g · C och från $[^{11}\text{C}]\text{CH}_4$ var 33,8 Bq/g · C. Den högsta aktivitetskoncentrationen, 521,4 Bq/g · C, hittades i prov NaCl 17 från rutinproduktion av $[^{11}\text{C}]\text{CO}_2$ och den lägsta koncentrationen, 18,0 Bq/g · C, i prov NaCl 27 från rutinproduktion av $[^{11}\text{C}]\text{CH}_4$. Standardavvikelsen för körning TR-19-01 är 52,5 Bq/g · C, för körning TR-19-02 är 126,5 Bq/g · C och för körning TR-19-03 är 11,7 Bq/g · C.

Tabell. 6. Aktivitetskoncentrationerna för aktiveringsobjekten som användes under körning TR-19-05 och rutinproduktionen av $[^{18}\text{F}]\text{H}_2\text{O}$ med neutronskydd. Metallobjectens namn och använd kärnreaktion samt osäkerhet i aktivitet och aktivitetskoncentration.

TR-19-05		$[^{18}\text{F}]\text{H}_2\text{O}$	Neutronskydd	
Prov	Reaktion	Aktivitetskoncentration vid EOB (Bq/g · C)	Osäkerhet (Bq)	Osäkerhet (Bq/g · C)
Skruv 1	$^{56}\text{Fe}(\text{n}, \text{p})^{56}\text{Mn}$	225,5	± 37,8	± 8,0
Skruv 2	$^{56}\text{Fe}(\text{n}, \text{p})^{56}\text{Mn}$	247,2	± 38,0	± 8,0
Järnplatta	$^{56}\text{Fe}(\text{n}, \text{p})^{56}\text{Mn}$	155,0	± 32,1	± 6,9
Au _{bar}	$^{197}\text{Au}(\text{n}, 2\text{n})^{196}\text{Au}$	24,5	± 1,7	± 3,0
Au _{bar}	$^{197}\text{Au}(\text{n}, \gamma)^{198}\text{Au}$	2456,8	± 17,9	± 31,1
Au _{Cd}	$^{197}\text{Au}(\text{n}, \gamma)^{198}\text{Au}$	999,6	± 11,5	± 19,8
NaCl _{Cd}	$^{23}\text{Na}(\text{n}, \gamma)^{24}\text{Na}$	74,8	± 8,4	± 7,7
NaCl _{bar}	$^{23}\text{Na}(\text{n}, \gamma)^{24}\text{Na}$	195,8	± 13,5	± 12,3
Indium	$^{115}\text{In}(\text{n}, \gamma)^{116\text{m}}\text{In}$	3770,8	± 62,7	± 68,6
Indium	$^{115}\text{In}(\text{n}, \text{n}')^{115\text{m}}\text{In}$	213,9	± 18,2	± 19,9

Tabell 6 visar att aktivitetskoncentrationerna är betydligt lägre för proverna med kadmium, Au_{Cd} och $NaCl_{Cd}$, jämfört med motsvarande prov utan kadmium, Au_{bar} och $NaCl_{bar}$. Kadmium förhållandena, Cd_{NaCl} och Cd_{Au} , är för bordssaltet 2,7 och för guldets 2,5. Liknande kadmium förhållanden för guldets hittas även i annan forskning där metoden använts (2,3). Vid jämförelse av aktivitetskoncentrationen för olika reaktioner i samma metall visar det sig också att aktiviteten är lägre för reaktionerna med tröskelenergier och högre för (n, γ) reaktionerna utan tröskelenergier

4.4.4. Från aktivitet till neutronflöde

Med information om den ursprungliga aktiviteten kunde ett genomsnittligt neutronflöde i aktiveringsobjekten uppskattas. Detta gjordes genom formeln (21),

$$\Phi = \frac{A_0}{N \cdot \sigma \cdot \left(1 - e^{-\frac{\ln(2) \cdot t_{bestr.}}{T_{1/2}}}\right)}$$

[8]

där N är antalet atomer i det bestrålade provet, σ är reaktionstvärsnittet för neutronabsorptionen och $t_{bestr.}$ är bestrålningstiden. Bestrålningstiden är tiden som provet blev bestrålat med neutroner.

Antalet atomer i provet kan beräknas enligt (10),

$$N = \frac{N_A \cdot m}{M}$$

[9]

där N_A är Avogadros konstant, m är provets totala massa och M är molmassan.

De termiska mikroskopiska reaktionstvärsnitten för reaktionen (n, γ) togs från databasen TENDL (12). För ^{23}Na är $\sigma = 0,528$ b och för ^{197}Au är $\sigma = 97,765$ b.

4.5. Självabsorption, spridning och neutronflöden

I kapitel 5.4.4 beräknades ett medelneutronflöde Φ över hela aktiveringsobjektets volym. Det är inte detta genomsnittliga neutronflöde som undersöks i denna avhandling. Det som studeras är neutronflödet på den yttersta ytan av saltet och metallerna, alltså hur många neutroner som når aktiveringsobjektet per ytenhet. Eftersom burkarna med koksalt och metallerna har varierande volymer och geometrier så kommer effekter som självabsorption och spridning att ha en inverkan på det uppmätta neutronflödet (22).

Självabsorption har en inverkan på resultaten eftersom neutronflödet inte är lika stort i hela objektet. Neutronflödet varierar över hela volymen och är större på framsidan av objektet än på baksidan (23). Neutronerna kommer främst att växelverka med atomer i den främre delen av provet eftersom flest neutroner passerar där. Ju längre bak i provets volym man analyserar desto färre neutronabsorptioner kommer det också att ske. Självabsorptionen påverkas alltså av provets volym, geometri och material (22).

Neutronernas spridning påverkar också det indirekt uppmätta neutronflödet. Då neutronerna kolliderar med aktiveringsobjektets atomer så sprids de både utåt och inåt i provet. I de fall där neutronerna sprids inåt så ökar sannolikheten för neutronabsorption i provet. Om neutronerna däremot sprids utåt, ut ur provet, minskar sannolikheten för reaktionen avsevärt (23). Ju fler atomer provet innehåller desto större är sannolikheten för att spridning skall ske. Detta betyder att även effekten av spridning påverkas av ett provs volym och geometri. Våldigt tunna aktiveringsobjekt skulle kunna reducera självabsorptionens och spridningens inverkan men det skulle istället leda till stor statistisk osäkerhet på grund av låg aktivitet. Sannolikhetsfördelningar skulle inte heller vara lika pålitliga som för större prov på grund av det låga antalet händelser. För att beräkna det ursprungliga neutronflödet där både spridningens och självabsorptionens inverkan tas i beaktande används formeln (22),

$$\Phi_0 = \Phi \cdot f^{-1}$$

[10]

där Φ_0 är det korrigerade neutronflödet, Φ är det tidigare beräknade medelneutronflödet och f är en beräknad korrektionsfaktor specifik för aktiveringsobjektet i fråga.

Korrektionsfaktorn beskriver förhållandet mellan medelneutronflödet i objektet och flödet på ytan av objektet där både självabsorption och spridning är taget i beaktande. För ett perfekt absorberande material gäller $f = 1$ men i praktiken är koefficienten alltid mindre än det. I de flesta fall ökar spridning sannolikheten för absorption eftersom majoriteten av neutronerna sprids inåt i provet vilket ökar f . I de fall där aktiveringsobjektet är en svag absorbator men stark spridare så sker motsatt effekt eftersom neutronerna då troligare sprids ut ur provet vilket i sin tur gör så att f minskar (22).

4.5.1. Test av korrektionsfaktorns inverkan på olika geometrier

Syftet med experiment TR-19-04 var att testa den beräknade korrektionsfaktorns riktighet och om den gick att använda i beräkningar eller inte. Proven som användes under körningen var koksalt av olika mängd i plastbehållare av olika geometrier, se figur 15 och figur 16. Proverna placerades på rad framför målstation 1 för att neutronflödet genom alla prov skulle vara så lika som möjligt. En väl beräknad faktor skulle åstadkomma samma korrigerade neutronflöde i alla prov, oberoende av geometri. Små variationer i neutronflödet skulle förstås ändå finnas mellan proven på grund av till exempel behållarnas olika placering framför målstationen. I beräkningar av korrektionsfaktorerna antas neutronerna monoenergetiska och neutronflödet isotropt (22).

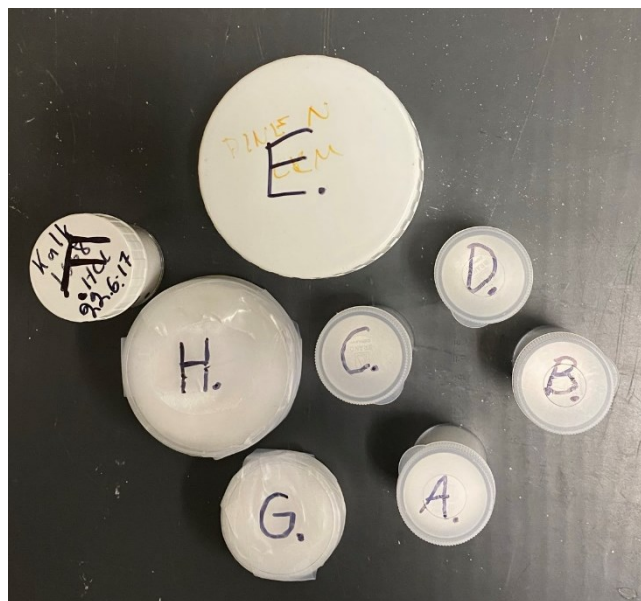


Fig. 15. Aktiveringsobjekt med olika geometriska former, NaCl A – NaCl H, som användes under körning TR-19-04.

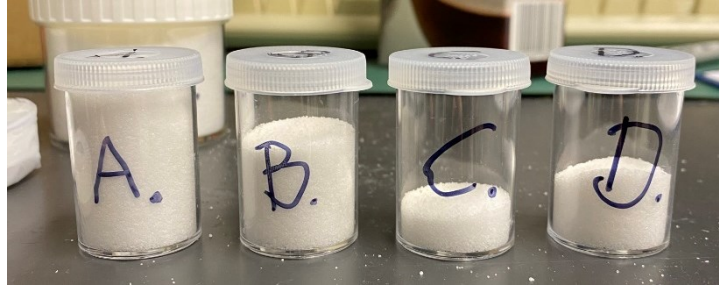


Fig. 16. Salthöjden på proverna NaCl A – NaCl D som användes under körning TR-19-04

Alla behållare som användes under körning TR-19-04 hade geometrin av en ändlig cylinder. För att beräkna den totala korrektionsfaktorn innehållande båda effekterna var det första steget att beräkna korrektionsfaktorn för endast självabsorptionen. Detta gjordes genom att kombinera formeln för en platta med tjocklek t och för en oändlig cylinder. Formeln för korrektionsfaktorn för självabsorption, $f_{absr.}$, i en ändlig cylinder ser ut som följande (39,40),

$$f_{absr.} = \frac{r \cdot f_t + l \cdot f_{\infty}}{r + l} \quad [11]$$

där r är cylinderns radie, l är cylinderns längd och f_t samt f_{∞} är korrektionsfaktorerna för självabsorption för en platta av tjocklek t respektive en oändlig cylinder.

f_t beräknas enligt (22),

$$f_t = \frac{1}{x} \left(\frac{1}{2} - E_3(x) \right) \quad [12]$$

där $E_3(x)$ är den generella exponentiella integralen med $n=3$ (24),

$$E_n(x) = \int_1^{\infty} \frac{e^{-x \cdot t}}{t^n} dt, \quad E_3(x) = \int_1^{\infty} \frac{e^{-x \cdot t}}{t^3} dt \quad [13]$$

Och (39,40),

$$x = \left(\frac{r \cdot l}{r + l} \right) \cdot \Sigma_{tot} \quad [14]$$

Σ_{tot} är det totala makroskopiska reaktionstvärnsnittet för materialet i fråga och beräknas som (23),

$$\Sigma_{tot} = \Sigma_s + \Sigma_a$$

[15]

Σ_s är det makroskopiska reaktionstvärnsnittet för neutronspridning, för ^{23}Na och termiska energier är $\Sigma_s = 0,43708 \text{ cm}^{-1}$. Σ_a är det makroskopiska reaktionstvärnsnittet för neutronabsorption, för ^{23}Na och termiska energier är $\Sigma_a = 0,77583 \text{ cm}^{-1}$. Tvärnsnitten är tagna från simuleringar gjorda med programmet GEANT4 (25). Programmet innehåller en verktygslåda gjord för att simulera hur partiklar rör sig och påverkas då de passerar genom olika media.

f_∞ beräknas enligt (39,40),

$$f_\infty = \frac{2x}{3} (2(x(K_1(x) \cdot I_1(x) + K_0(x) \cdot I_0(x)) - 1) + (\frac{K_1(x) \cdot I_1(x)}{x}) - K_0(x) \cdot I_1(x) + K_1(x) \cdot I_0(x))$$

[16]

$K_n(x)$ är den modifierade besselfunktionen av första slaget och $I_n(x)$ är den modifierade besselfunktionen av andra slaget, heltalet n bestämmer besselfunktionens ordning (26).

Men hjälp av $f_{absr.}$ kan sedan den totala korrektionsfaktorn f där spridningen också tas i beaktande kalkyleras med hjälp av formeln (39,40),

$$f = \frac{f_{absr.}}{1 - (\frac{\Sigma_s}{\Sigma_a})(1 - f_{absr.})}$$

[17]

Provernas aktivitet, medelneutronflöde beräknades som beskrivet i kapitel 4.4. Dessa, korrektionsfaktorn och det korrigerade neutronflödet och kan ses i tabell 7.

Tabell. 7. Saltproverna som användes under körning TR-19-04, deras radie, höjd, medelneutronflöde, totala korrektionsfaktor och korrigerade neutronflöde.

Prov	Radie (cm)	Höjd (cm)	Medelneutronflöde, Φ ($\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)	Total korrektionsfaktor, f	Korrigerat neutronflöde, Φ_0 ($\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)
NaCl A	1,08	2,99	$8,9 \cdot 10^4$	0,617	$1,4 \cdot 10^5$
NaCl B	1,08	1,99	$1,1 \cdot 10^5$	0,647	$1,7 \cdot 10^5$
NaCl C	1,08	0,73	$1,3 \cdot 10^5$	0,744	$1,7 \cdot 10^5$
NaCl D	1,08	1,25	$1,1 \cdot 10^5$	0,689	$1,6 \cdot 10^5$
NaCl E	2,74	3,68	$7,6 \cdot 10^4$	0,427	$1,8 \cdot 10^5$
NaCl F	1,40	2,5	$1,1 \cdot 10^5$	0,583	$1,8 \cdot 10^5$
NaCl G	1,70	0,53	$1,3 \cdot 10^5$	0,753	$1,7 \cdot 10^5$
NaCl H	2,59	0,91	$1,3 \cdot 10^5$	0,648	$2,0 \cdot 10^5$

För en väl beräknad korrektionsfaktor skulle det korrigerade neutronflödet för alla aktiveringsobjekt bli lika stora. Tabell 7 visar att korrektionsfaktorn fungerade bra eftersom standardavvikelsen för neutronflödet minskade efter att den användes i beräkningarna. Standardavvikelsen för medelneutronflödet var $1,94 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ och för det korrigerade neutronflödet var $1,62 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$. Medeltalet av det korrigerade neutronflödet var $1,7 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$.

Korrektionsfaktorn påverkas både av radien och höjden på burkarna som används. För att ta reda på vilken den optimala geometrin på en burk är gjordes grafer över hur korrektionsfaktorn förändras beroende på både höjden och radien av burken, se figur 17 och figur 18.

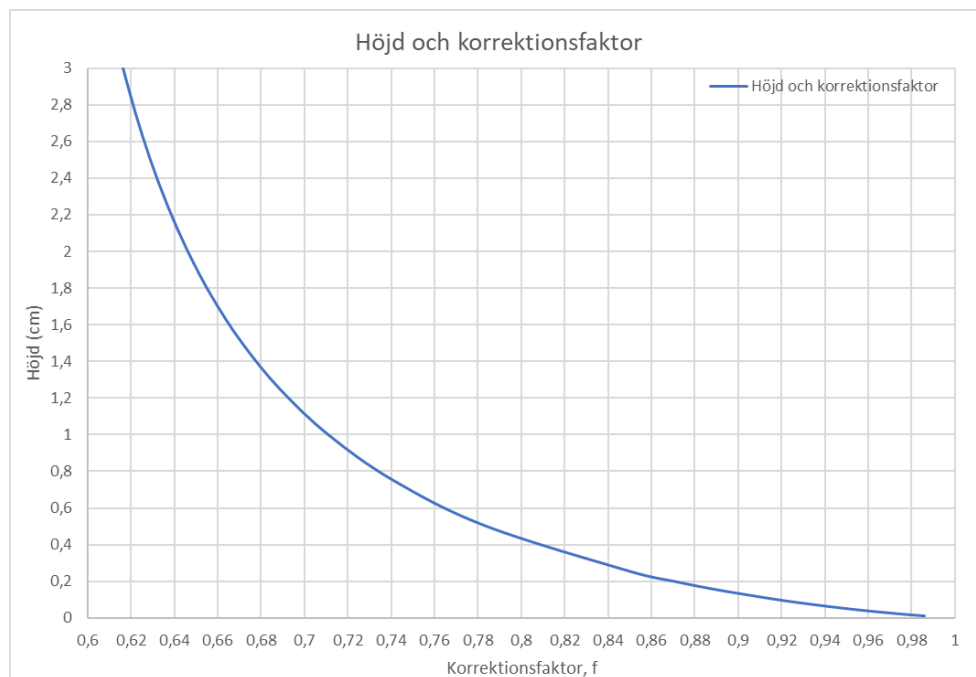


Fig. 17. Hur korrektionsfaktorn för en burk med NaCl och radien 1,08 cm påverkas av burkens höjd.

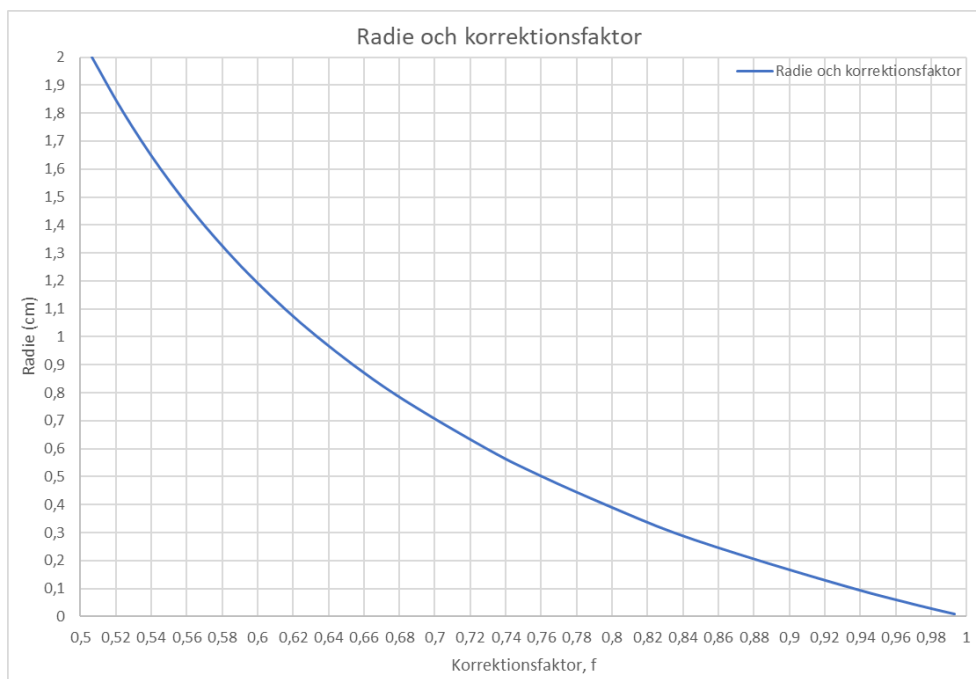


Fig. 18. Hur korrektionsfaktorn för en burk med NaCl och höjden 2,9 cm påverkas av burkens radie.

Ju lägre höjd och mindre radie på burken desto mindre påverkas den av självabsorption och spridning vilket kan observeras genom att korrektionsfaktorn närmar sig 1. I båda fallen påverkas faktorn mer vid små radier och höjder. Detta antyder att det optimala skulle vara att använda sig av mycket små behållare men det skulle medföra utmaningar. På grund av aktiveringsobjektets ringa volym skulle aktiviteten vara väldigt liten och kanske även under detektionsgränsen. En minimal aktivitet leder också till att sannolikheter och effektiviteter som används i beräkningar kan bli felaktiga. Storleken på behållarna kan även vara fysiskt svårhanterliga och att mäta korrekta höjder och radier skulle vara utmanande.

Det finns många olika definitioner på detektionsgränser för gammaspektrometrar och de förväxlas ofta med varandra. Den minsta detekterbara aktiviteten (MDA) kan definieras som den minsta aktiviteten som kan bestämmas med ett specifikt system under rådande förhållanden (21). På basen av körning TR-19-04 bestämdes vilken av aktiveringsobjektens geometrier som gav den lägsta minsta detekterbara aktiviteten och med vidare beräkningar det minsta detekterbara neutronflödet (MDNF). Vid körningar med lågt neutronflöde är det nyttigt att ha denna gräns i åtanke för att optimera mätningarna. Det minsta detekterbara neutronflödet påverkas av både kalibreringsfaktorer som detektorns effektivitet och korrektionsfaktorerna men också av mätgeometrin vid aktivitetsbestämningen. Bakgrundens intensitet vid den undersöka gammatoppen har även en inverkan på MDA. Bakgrunden varierar över hela gammaspektrumet vilket betyder att MDA också gör det. Om aktiviteten som analyseras är mindre än MDA så kommer dess topparea att smälta samman med bakgrundsstrålningen och är på så vis inte längre vara urskiljbar. Det finns flertalet sätt att beräkna denna minsta aktivitet, A_{MDA} , men allmän praxis är att den beräknas som (44,45),

$$A_{MDA} = k \cdot 3\sqrt{B}$$

[18]

Där B är bakgrundens area under den specifika gammatoppen. I detta fall fås B från analysverktyget Fitzpeaks. $3\sqrt{B}$ är såvida en area tre gånger så stor som standardavvikelsen för toppen och k en kalibreringskonstant för att beräkna aktiviteten utgående från arean.

Med hjälp av arean kunde den minsta detekterbara aktiviteten och det minsta detekterbara neutronflödet bestämmas med formlerna i kap. 5.4. och samma tillvägagångssätt som tidigare, se tabell 8. Även i dessa beräkningar antogs att majoriteten av neutronerna var termiska och reaktionstvårsnitt användes enligt detta.

Tabell. 8. Aktiveringsobjektets namn, bakgrundens intensitet, minsta detekterbara- aktivitet, -aktivitetskoncentration och -neutronflöde.

Prov	B	A_{MDA} (Bq)	A_{MDA} (Bq/g · C)	Φ_{MDNF} (cm ⁻² s ⁻¹)
NaCl A	5	5,78	12,28	1,14 · 10 ⁴
NaCl B	3	4,39	13,56	1,21 · 10 ⁴
NaCl C	2	3,44	29,12	2,26 · 10 ⁴
NaCl D	3	4,31	21,83	1,83 · 10 ⁴
NaCl E	9	8,41	2,56	0,35 · 10 ⁴
NaCl F	4	5,37	11,49	1,14 · 10 ⁴
NaCl G	4	5,27	23,54	1,80 · 10 ⁴
NaCl H	4	5,48	7,17	0,64 · 10 ⁴

I tabell 8 ses att NaCl E var den geometri som möjliggjorde bestämning av det lägsta neutronflödet och NaCl C den högsta detektionsgränsen. NaCl E var aktiveringsobjektet med störst volym och NaCl C det med minst. Geometrierna förklarar resultatet eftersom större objekt medför större toppar i förhållande till bakgrunden, vilket gör det möjligt att bestämma lägre aktivitetskoncentrationer. En mindre MDA koncentration och större volym gör att MDNF minskar. Detta på grund av att fler neutroner har möjlighet att aktivera ett större objekt än ett litet. Den med detektorn uppmätta aktiviteten är då stor trots att neutronflödet, som anges per ytenhet, kan vara litet.

4.5.2. Aktiveringsobjekt av natriumklorid

Korrektionsfaktorer beräknades endast för aktiveringsobjekt där reaktionen (n,γ) studerades. Här antogs att majoriteten av neutronerna som aktiverade proverna var termiska. Resten av de studerade reaktionerna var valda på grund av tröskelenergier som var betydligt högre än de termiska energierna. Vid aktivering med hjälp av snabba neutroner kan neutronflödet över hela aktiveringsobjektets volym antas vara konstant på grund av deras långa räckvidd och relativt låga reaktionstvärnsnitt jämfört med termiska neutroner (12). Den långa räckvidden hämmar inverkan av självabsorption och reaktionstvärnsnittet för spridning minskar med stigande energi (6,28).

Korrektionsfaktorn för proverna med natriumklorid som användes i körningarna TR-19-01, TR-19-02 och TR-19-03 beräknades som beskrivet i föregående kapitel med hjälp av formler för en ändlig cylinder. Korrektionsfaktorn var i alla dessa tre fall $f = 0,619$. Det korrigerade neutronflödet för aktiveringsobjekten i dessa körningar kan ses i tabell 9. Den termiska neutronfördelningen i cyklotronbunkern TR-19 under dessa experiment kan ses i figur 19.

Tabell. 9. Det självabsorptions- och spridningskorrigerade neutronflödet för körningarna TR-19-01, TR-19-02 och TR-19-03.

Korrigerat neutronflöde, Φ_0 ($\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)			Korrigerat neutronflöde, Φ_0 ($\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)	
NaCl position	$[^{18}\text{F}]\text{H}_2\text{O}$	$[^{11}\text{C}]\text{CO}_2$	NaCl position	$[^{11}\text{C}]\text{CH}_4$
	Neutronskydd	Inget neutronskydd		Neutronskydd
	TR-19-01	TR-19-02		TR-19-03
2	$15,8 \cdot 10^4$	$10,2 \cdot 10^4$	21	$3,1 \cdot 10^4$
3	$16,5 \cdot 10^4$	$13,9 \cdot 10^4$	22	$3,0 \cdot 10^4$
4	$15,7 \cdot 10^4$	$14,9 \cdot 10^4$	23	$2,9 \cdot 10^4$
5	$12,0 \cdot 10^4$	$26,5 \cdot 10^4$	24	$2,1 \cdot 10^4$
6	$10,0 \cdot 10^4$	$17,4 \cdot 10^4$	25	$2,0 \cdot 10^4$
7	$7,27 \cdot 10^4$	$27,6 \cdot 10^4$	26	$2,0 \cdot 10^4$
8	$8,07 \cdot 10^4$	$38,8 \cdot 10^4$	27	$1,6 \cdot 10^4$
9	$6,22 \cdot 10^4$	$26,1 \cdot 10^4$	28	$1,7 \cdot 10^4$
10	$5,94 \cdot 10^4$	$21,0 \cdot 10^4$	29	$2,1 \cdot 10^4$
11	$11,4 \cdot 10^4$	$24,9 \cdot 10^4$	30	$2,7 \cdot 10^4$
12	$16,7 \cdot 10^4$	$12,5 \cdot 10^4$	31	$3,5 \cdot 10^4$
13	$22,8 \cdot 10^4$	$9,14 \cdot 10^4$	32	$3,7 \cdot 10^4$
14	$19,5 \cdot 10^4$	$6,61 \cdot 10^4$	33	$4,0 \cdot 10^4$
15	$19,4 \cdot 10^4$	$5,68 \cdot 10^4$	34	$3,1 \cdot 10^4$
16	$16,3 \cdot 10^4$	$9,25 \cdot 10^4$	35	$2,6 \cdot 10^4$
17	$17,4 \cdot 10^4$	$44,9 \cdot 10^4$	36	$4,4 \cdot 10^4$
18	$17,9 \cdot 10^4$	$24,2 \cdot 10^4$	37	$4,3 \cdot 10^4$
19	$21,3 \cdot 10^4$	$25,1 \cdot 10^4$	38	$5,4 \cdot 10^4$
20	$17,3 \cdot 10^4$		39	$4,2 \cdot 10^4$

Medeltalet för det korrigerade neutronflödet under körning TR-19-01 blev $1,5 \cdot 10^5 \pm 4,8 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, under körning TR-19-02 blev $2,0 \cdot 10^5 \pm 1,1 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ och under körning TR-19-03 blev $3,1 \cdot 10^4 \pm 1,1 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$. Observera att de givna $\pm$ värdena är experimentens standardavvikelse men att aktiveringsobjekten är utspridda över hela rummet och har därför bestrålats med olika mängd neutroner. Detta är alltså inte neutronflödets osäkerhet. Det högsta termiska neutronflödet, $4,5 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, uppmättes i aktiveringsobjekt NaCl 17 vid rutinproduktion av $[^{11}\text{C}]\text{CO}_2$ utan neutronskydd (TR-19-02). Det lägsta termiska neutronflödet, $1,6 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, uppmättes i objekt NaCl 27 och rutinproduktion av $[^{11}\text{C}]\text{CH}_4$ med neutronskydd (TR-19-03).

4.6. Natriumklorid- och guldprov med och utan ett kadmiumlager

För att beräkna korrektionsfaktorn approximerades aktiveringsobjekten av guld till ändliga cylindrar med radien 1,205 cm och höjden 0,11 cm. Den totala korrektionsfaktorn för gullet blev således $f = 0,524$. De makroskopiska termiska reaktionstvårsnitten för guld är $\Sigma_s = 0,428 \text{ cm}^{-1}$ och $\Sigma_a = 5,83 \text{ cm}^{-1}$ (22).

Under experiment TR-19-05 aktiverades natriumklorid- och guldprov genom reaktionen (n, γ) både med och utan ett lager av kadmium. Denna metod kallas även ”*gold foil activation method*” (2,4). (n, γ) -reaktioner har inte någon tröskelenergi varpå lagret av kadmium verkade som absorberator av neutroner med en energi lägre än 0,5 eV (17). De kadmiumomslutna salt- och guldproverna aktiverades således endast av icke-termiska och snabba neutroner. De obeklädda proverna aktiverades däremot av alla neutroner oberoende av energi (Au_{bar} och NaCl_{bar}).

Genom att undersöka skillnaden i aktivitet mellan de bara och kadmiumbeklädda salt- och guldproverna kunde en aktivitet med ursprung från aktivering av endast termiska neutroner, A_{termisk} , bestämmas, se tabell 10.

$$A_{\text{termisk}} = A_{\text{bar}} - A_{\text{Cd}}$$

[19]

Där A_{bar} är aktiviteten hos ett bart prov och A_{Cd} aktiviteten hos ett prov täckt av kadmium.

Tabell. 10. Till vänster, provernas namn och de bara och kadmiumb eklädda natriumklorid- och guldprovernas aktiviteter vid neutronbestrålningens slut. Till höger, aktivitetsskillnaden mellan de bara och kadmiumoms lutna proverna samt deras benämning.

Prov	Aktivitet vid EOB (Bq)	Benämning	Aktivitetsskillnad (Bq)
Au _{bar}	1415,3	Au _{termisk}	834,0
Au _{Cd}	581,3	NaCl _{termisk}	132,7
NaCl _{bar}	214,0		
NaCl _{Cd}	81,2		

Aktivitetsskillnaderna, Au_{termisk} och NaCl_{termisk}, samt tidigare beskrivna tillvägagångssätt möjliggjorde beräkandet av ett korrigerat, termiskt neutronflöde. Det termiska, mikroskopiska reaktionstv ärsnittet för ²³Na och ¹⁹⁷Au användes och togs från databasen TENDL (12) antaget att termisk jämvikt, en Maxwell-Boltzmannfördelning kring 0,025 eV gällde.

Utgående från aktiviteten för Au_{Cd} kunde även ett neutronflöde för neutroner med en energi över 0,5 eV bestämmas, se tabell 11. För detta användes ett icke-termiskt reaktionstv ärsnitt taget från ENDF databasen (27). I databasen återfinns tv ärsnittet i ENDF/B-VIII.0 biblioteket och ENDF filen för reaktionen ¹⁹⁷Au(n, γ) ¹⁹⁸Au. Detta tv ärsnitt är väldigt stort på grund av guldets många och starka tv ärsnittsresonanser i det icke-termiska energiintervallet. Ett korrigerat neutronflöde för Au_{bar} kunde inte beräknas på grund av de stora tv ärsnittsresonanserna och otillräcklig information om neutronernas energifördelning för att beräkna ett genomsnittligt reaktionstv ärsnitt för hela energiintervallet.

Prov NaCl15 från experiment TR-19-01 kan ses i tabell 11. Detta eftersom aktiveringsobjektet var placerat framför målstation 1 under produktion av ¹⁸F likt aktiveringsobjekten under experiment TR-19-05. Det termiska neutronflödet uppskattat med hjälp av NaCl15 är alltså lämpligt att jämföra med de övriga resultaten i tabell 11.

Tabell. 11. De beräknade termiska- och snabba neutronernas korrigerade neutronflöden, deras energiintervall, benämning och mikroskopiska reaktionstvårsnitt.

Benämning	σ (b)	Korrigerat neutronflöde, Φ_0 ($\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)	Energiintervall
Au _{Cd}	1544,44	$4,11 \cdot 10^3$	> 0,5 eV
Au _{termisk}	97,765	$9,35 \cdot 10^4$	< 0,5 eV
NaCl _{termisk}	0,528	$8,20 \cdot 10^4$	< 0,5 eV
NaCl15	0,528	$1,94 \cdot 10^5$	Hela energiintervallet

5. Analys av resultat

Efter den experimentella och beräknande delen av forskningen gjordes osäkerhetsberäkningar för alla fem experiment och en felanalys av neutronflödena presenterade i kapitel 4 utfördes. Resultaten av de framtagna neutronflödena, aktiviteterna och neutronspridningen diskuteras och analyseras. Det resoneras även kring problematiken att bestämma neutronflödet utgående från metaller med tröskelenergies.

5.1. Felanalys och osäkerheter

Den statistiska osäkerheten för både aktiveringsobjektens aktiviteter och deras tillhörande korrigerade neutronflöde uppskattades genom att beräkna roten av de analyserade gammatopparnas areor. Osäkerheten i procent för ett aktiveringsobjekt är således samma för både A_0 och Φ_0 . En mindre topparea och aktivitet medför en större statistisk osäkerhet vilket gjorde att experiment TR-19-03 hade de största osäkerheterna, se tabell 12. Osäkerheterna var inte signifikant stora vilket betyder att resultaten från gammaspektroskopin var pålitliga. De verkliga osäkerheterna är trots allt större än den rapporterade eftersom det tillkommer osäkerheter i bland annat effektivitetskalibreringen, topparean, avklingningstiden, bestrålningstiden, massan och insamlingstiden. De borde dock inte vara väldigt mycket större än de rapporterade värdena.

Tabell 12. Experimentens namn och medeltalet av deras aktiveringsobjekts osäkerheter samt det högsta- och lägsta värdet i procent. Medeltalet av de ursprungliga aktiviteternas och korrigerade neutronflödenas osäkerheter.

Körning	TR-19-01	TR-19-02	TR-19-03
Medeltal (%)	10,2	10,3	18,6
Högsta (%)	14,9	18,3	24,3
Lägsta (%)	7,7	6,3	14,7
Medeltal A_0 (Bq)	$\pm 12,0$	$\pm 9,9$	$\pm 7,1$
Medeltal ϕ_0 ($\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)	$\pm 1,4 \cdot 10^4$	$\pm 1,8 \cdot 10^4$	$\pm 5,4 \cdot 10^3$

Den absoluta osäkerheten är svår beräknelig och mycket större än den statistiska. Detta beror främst på databrist om neutronernas energifördelning vid aktiveringen och således en osäkerhet i det använda reaktionstvärsnittet. Alla neutroner som aktiverar NaCl prov har förutsatts ha av termisk energi, exakt 0,025 eV, under experiment TR-19-01, TR-19-02, TR-19-03. I praktiken är detta inte fallet, se tabell 11, en del av neutronerna som aktiverar objekten är icke-termiska och snabba. De termiska neutronernas energi kan även variera kring 0,025 eV. Eftersom reaktionstvärsnittet förändras med neutronernas energi så är det svårt att bestämma ett korrekt tvärsnitt och det använda värdet medför en signifikant osäkerhet i resultaten.

De statistiska osäkerheterna för experiment TR-19-04 kan ses i tabell 13 och beräknades på samma sätt som osäkerheterna i tabell 12. De fluktuerande värdena i det korrigerade neutronflödet, ϕ_0 , trots att de teoretiskt sätt borde ha samma värde kan bero på flertalet saker. De troligaste orsakerna är inexakta mätningar av aktiveringsobjektens höjd, radie och massa. Även aktiveringsobjektens placering på rad framför målstationen kan ha haft en inverkan eftersom de kan ha bestrålats med aningen olika mängd neutroner. Ytterligare fel och osäkerheter kan uppkomma vid uträkningar av mättider, detektoreffektiviteter och andra beräkningsvärden nämnda i föregående stycke. Även under denna körning gjordes antagandet att neutronerna var av termisk energi vilket medförde samma absoluta osäkerhetsproblem som i de tre första körningarna. Det ses även att proverna med störst volym, NaCl E och NaCl H är de med minst osäkerhet, se tabell 13.

Tabell 13. Provets namn, korrigerade neutronflöde ϕ_0 , osäkerhet i ursprungliga aktiviteten A_0 och ϕ_0 i procent, osäkerhet i A_0 och osäkerhet i ϕ_0 under körning TR-19-04. I den sista kolumnen hittas ett korrigerat neutronflödesintervall beräknat utgående från osäkerheten i flödet.

Prov	ϕ_0 ($\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)	Osäkerhet A_0, ϕ_0 (%)	$\pm A_0$ (Bq)	$\pm \phi_0$ ($\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)	ϕ_0 intervall ($\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)
NaCl A	$1,4 \cdot 10^5$	10,8	7,9	$1,6 \cdot 10^4$	$1,3\text{--}1,6 \cdot 10^5$
NaCl B	$1,7 \cdot 10^5$	11,5	7,3	$2,0 \cdot 10^4$	$1,5\text{--}1,9 \cdot 10^5$
NaCl C	$1,7 \cdot 10^5$	17,7	4,6	$3,0 \cdot 10^4$	$1,4\text{--}2,0 \cdot 10^5$
NaCl D	$1,6 \cdot 10^5$	14,7	5,6	$2,4 \cdot 10^4$	$1,4\text{--}1,9 \cdot 10^5$
NaCl E	$1,8 \cdot 10^5$	4,6	20,1	$8,3 \cdot 10^3$	$1,7\text{--}1,9 \cdot 10^5$
NaCl F	$1,8 \cdot 10^5$	10,2	8,8	$1,9 \cdot 10^4$	$1,7\text{--}2,0 \cdot 10^5$
NaCl G	$1,7 \cdot 10^5$	13,2	6,6	$2,3 \cdot 10^4$	$1,5\text{--}1,9 \cdot 10^5$
NaCl H	$2,0 \cdot 10^5$	7,3	12,5	$1,5 \cdot 10^4$	$1,9\text{--}2,1 \cdot 10^5$

I den sista kolumnen i tabell 13 ses, för varje prov, ett korrigerat neutronflödesintervall beräknat med hjälp av neutronflödets osäkerhet. Kolumnen visar att alla provers intervall, förutom NaCl H, överlappar varandra. Detta betyder att resultaten för experiment TR-19-04 var som förväntat och att korrektionsfaktorerna fungerade tillfredställande. Detta konstaterades även utgående från standardavvikelsen i kapitel 4.5.1.

I tabell 14 ses de statistiska osäkerheterna för NaCl- och guldproverna, med och utan kadmium, som analyserades under experiment TR-19-05. Tabellen är uppbyggd på samma sätt som tabell 13. Även ytterligare fel och osäkerheter i mätdata är liknande som för de tidigare experimenten. Utöver detta tillför reaktionstvärnsnittet i guld för snabba neutroner en stor osäkerhet i denna analys. Kadmiums absorptionsförmåga av termiska neutroner medför också en osäkerhet eftersom sannolikheten att exakt alla termiska neutroner absorberas inte är hundra procent. Trots att kadmiums resonansenergier för neutronabsorption är låga för energier över termiska så kan kadmium även absorbera neutroner av dessa energier.

Tabell 14. Provets namn, korrigerade neutronflöde ϕ_0 , osäkerhet i ursprungliga aktiviteten A_0 och ϕ_0 i procent, osäkerhet i A_0 och osäkerhet i ϕ_0 under körning TR-19-05. I den sista kolumnen hittas ett korrigerat neutronflödesintervall beräknat utgående från osäkerheten i flödet.

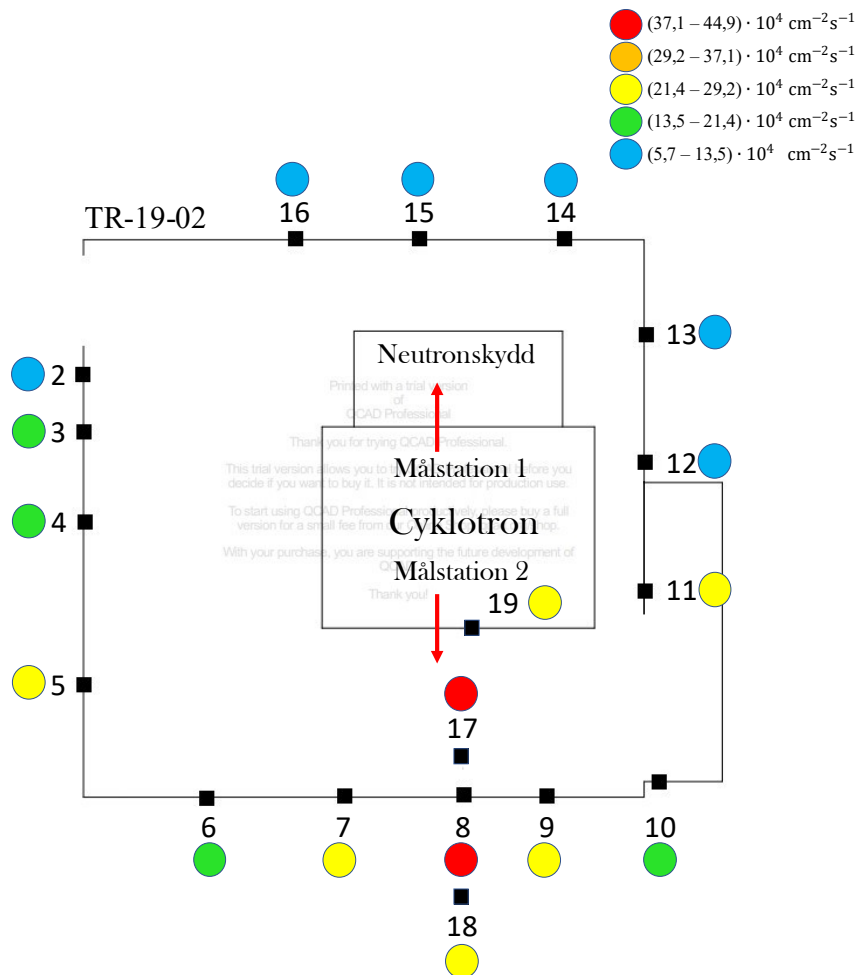
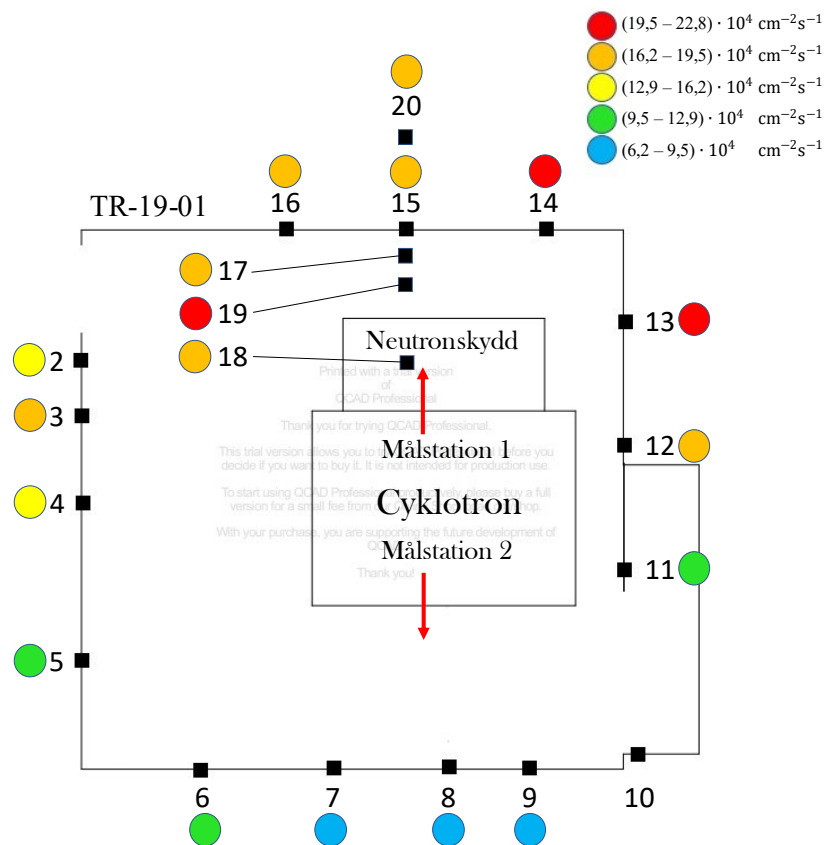
Prov	ϕ_0 ($\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)	Osäkerhet A_0, ϕ_0 (%)	$\pm A_0$ (Bq)	$\pm \phi_0$ ($\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)	ϕ_0 intervall ($\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)
Au _{Cd}	$4,1 \cdot 10^3$	2	11,5	$8,1 \cdot 10^1$	$4,0\text{--}4,2 \cdot 10^3$
Au _{termisk}	$9,3 \cdot 10^4$	2,5	21,3	$2,4 \cdot 10^3$	$9,1\text{--}9,6 \cdot 10^4$
NaCl _{termisk}	$8,2 \cdot 10^4$	12	15,9	$9,8 \cdot 10^3$	$7,2\text{--}9,2 \cdot 10^4$
NaCl15	$1,9 \cdot 10^5$	8,8	14,1	$1,7 \cdot 10^4$	$1,8\text{--}2,1 \cdot 10^5$

5.2. Aktiviteter och neutronflöden

De termiska neutronflödena bestämda under experimenten TR-19-01, TR-19-02 och TR-19-03 presenterades i slutet av kapitel 4. Det är svårt att jämföra neutronflödesresultatet med tidigare forskning eftersom väldigt många faktorer påverkar flödet runt en cyklotron. Exempel på detta är cyklotronens modell och alla dess körparametrar men också neutronskyddet, cyklotronbunkerns egenskaper och aktiveringsobjektens placering. Trots detta kan andra forskares resultat ge en vink om storleksordningen som neutronflödena borde ha. En forskargrupp evaluerade det termiska neutronflödet runt en Cypris HM-18 under ^{18}F och ^{11}C produktion med hjälp av ”*gold foil activation method*” (28). Cyklotronen accelererade protoner upp till 18 MeV och hade en strålström på 21 μA . Vid produktion av ^{18}F var medelneutronflödet $4,1 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ och vid ^{11}C $1,2 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$. En annan forskargrupp undersökte också det termiska neutronflödet runt en Cypris HM-18 cyklotron, med samma körparametrar som de precis nämnda, men endast under produktion av ^{18}F (7). De använde sig av aktiveringsobjekt av natriumklorid och ”*gold foil activation method*”. Medeltalet av det termiska neutronflödet beräknat med hjälp av NaCl blev $7,4 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ och med hjälp av guld blev $8,5 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$. Under detta experiment var sex av nio aktiveringsobjekt placerade framför den använda målstationen vilket gav ett högre medelneutronflöde än om de systematiskt varit placerade med jämna mellanrum runt hela cyklotronbunkern.

Neutronflödesresultaten i tabell 9 visar att körning TR-19-02, utan neutronskydd, uppvisade de högsta neutronflödena. Detta trots att neutroner endast emitterades som en biprodukt i sidoreaktionen $^{14}\text{N}(\text{p}, \text{n})^{14}\text{O}$ och inte i huvudreaktionen $^{14}\text{N}(\text{p}, \alpha)^{11}\text{C}$. Det näst största neutronflödet hade TR-19-01, med neutronskydd, med neutroner som direkt biprodukt i reaktionen $^{18}\text{O}(\text{p}, \text{n})^{18}\text{F}$. Neutronflödet uppmätt under TR-19-03 var, som förväntat, mycket mindre än under de två första experimenten eftersom neutronerna emitterades från en sidoreaktion och den använda målstationen var omsluten av ett neutronskydd. Vissa aktiveringsobjekt hade olika placering under de tre körningarna och medeltalen under tabell 9 tar inte detta i beaktande. Ett medeltal för de objekt som hade samma position under alla körningar beräknades och blev: för TR-19-01, $1,4 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, för TR-19-02, $1,8 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ och för TR-19-03, $2,7 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$. De termiska neutronflödena erhållna i både (28) och (7) stämmer bra överens med de i denna avhandling erhållna neutronflödena och är av samma storleksordning, se tabell 9 och tabell 11. Detta tyder på att metoden med salt som aktiveringsobjekt är ändamålsenlig och att resultaten är någorlunda pålitliga.

Neutronspridningen bestämdes genom att placera ut aktiveringsobjekt med jämna mellanrum på cyklotronbunkerns väggar. Neutronflödet i cyklotronbunkern var under de tre första experimenten, som förväntat, störst närmast den använda målstationen och minskade då avståndet från den blev större, se figur 19. Under TR-19-01 och TR-19-03 noterades även att neutronflödet var större till höger om målstation 1 än till vänster. Detta kan bero på spridning med cyklotronens materia eller att målstationen är riktad mer till höger än förväntat. I den sista illustrationen i figur 19, av experiment TR-19-03 är aktiveringsobjekten NaCl 37 och NaCl 38 borttagna för att ge läsaren en mer nyanserad bild av neutronspridningen. Detta för att neutronflödet var mycket högre i dessa prov än i de övriga på grund av placeringen inuti neutronskyddet. Det visade sig även att neutronflödet framför målstationen var större för aktiveringsobjekt placerade närmare golvet än rakt framför protonstrålen eller ovanför vilket kan bero på spridning.



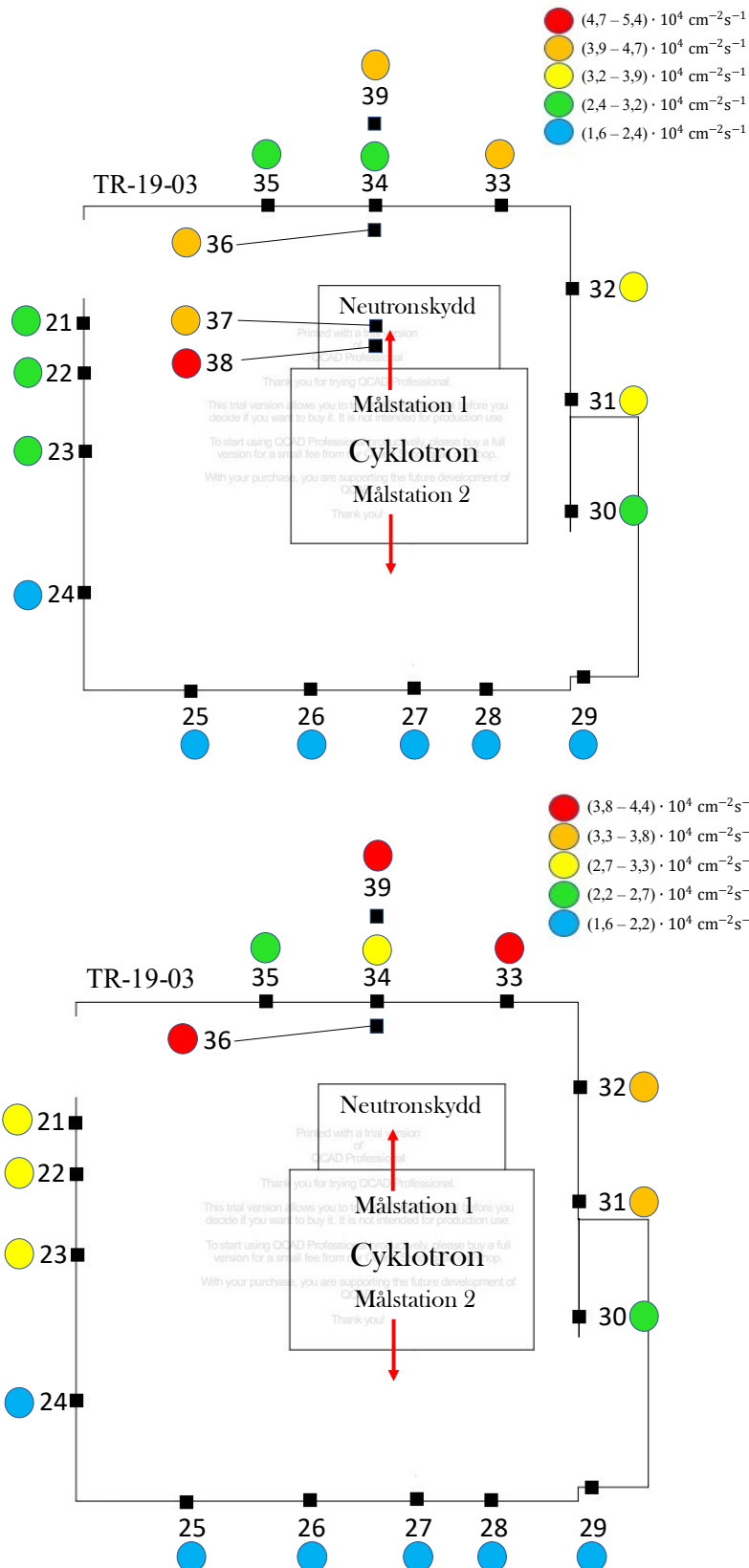


Fig. 19. Den termiska neutronfördelningen i cyklotronbunkern TR-19 under körning TR-19-01, TR-19-02 och TR-19-03. De färglagda cirklarna representerar olika neutronflödesintervall med röd motsvarande det högsta neutronflödet och blå det lägsta.

Aktiveringen av salt och guld, med och utan ett kadmium lager gjordes under experiment TR-19-05. I tabell 14 ses att Au_{termisk} och $NaCl_{\text{termisk}}$ neutronflödesintervall med inräknade osäkerheter överlappar varandra och ger ett fint resultat. Detta tyder på att NaCl med fördel kan användas för att ersätta guld i den så kallade ”*gold foil activation method*”. Det låga neutronflödet i Au_{Cd} jämfört med Au_{termisk} (23 gånger mindre) visar på att majoriteten av de från cyklotronen emitterade neutronerna är termiska vilket stöder det antagande som tidigare gjorts. Även Au_{termisk} , $NaCl_{\text{termisk}}$ och NaCl15 har snarlika neutronflöden vilket tyder på att antagandet om termiska neutroner stämmer och att natriumkloridprov är lämpliga aktiveringsobjekt vid bestämning av det termiska neutronflödet. Att bestråla guld med och utan kadmium är en betrodd metod som ofta används i forskning av denna typ. NaCl15 uppvisar dock ett lite högre neutronflöde än Au_{termisk} och $NaCl_{\text{termisk}}$. Detta kan bero på att en del snabba neutroner aktiverade NaCl15 som inte aktiverade de två andra proverna eftersom de endast aktiverades av neutroner med en energi under 0,5 eV. Liknande resultat hittas i tidigare gjord forskning (7).

Under TR-19-05 beräknades inget korrigerat neutronflöde för metallerna järn, indium och guld och deras reaktioner med tröskelenergier eftersom reaktionstvärsnitten var okända. Tvärsnittsproblematiken berodde på otillräcklig information om neutronernas energifördelning då kärnreaktionerna ägde rum. Eftersom det var precis detta som undersöktes med hjälp av metallerna så uppstod det ett svårslösligt cirkelproblem. I de övriga experimenten approximerades neutronernas energi till ett värde varpå ett reaktionstvärsnitt erhöles. I metallernas fall, där ett medeltvärsnitt för ett helt energiintervall hade varit nödvändigt, var ett resultat svåråtkomligt. Eftersom varje cyklotron, dess egenskaper, material och utrymme är olika så fanns det inte heller någon tidigare forskning samt beräkningar som kunde lösa detta problem.

En lösning till problemet försökte hittas, bland annat genom att approximera neutronernas energifördelning till en 1/E-fördelning men detta gav inte några tillfredställande resultat. Dels är beräkningarna av ett genomsnittligt reaktionstvärsnitt känsliga för energiintervallets början och slut. Neutronernas övre energigräns är svår att bestämma eftersom neutronerna emitteras med varierande mängd energi och sedan växelverkar olika mycket med materia innan de absorberas av aktiveringsobjektet. Fastställandet av en övre energigräns skulle alltså främst basera sig på gissningar vilket inte skulle ge pålitliga resultat. Reaktionstvärsnitten i de höga

energiintervallen varierar också väldigt mycket och snabbt precis efter tröskelenergin samt då energin blir tillräckligt hög, vilket gör det ännu viktigare med en korrekt neutronenergifördelning vid beräkningar av medelreaktionstvårsnitt.

Det som kunde beräknas utgående från metallerna och tröskelenergireaktionerna var aktiviteten, se tabell 6. Baserat på dem kunde det ändå konstateras att det fanns snabba neutroner i alla energiintervall, även i det högsta intervallet som var guld med tröskelenergin 8,1 MeV. Eftersom TR-19-05 utfördes under produktion av ^{18}F gick det inte att säga något om flödet av snabba neutroner under produktion av ^{11}C .

6. Diskussion

Under experiment TR-19-01, TR-19-02 och TR-19-03 där det termiska neutronflödet och dess spridning i cyklotronbunkern bestämdes med hjälp av salt som aktiveringsobjekt blev resultaten som förväntade. Det termiska neutronflödets storleksordning stämde bra överens med tidigare gjord forskning inom området. Storleksordningen visar på att det produceras en ansevärd mängd neutroner under rutinproduktion av radionuklider som aktiverar omgivningen och cyklotronen själv. Neutronspridningsresultaten visade även på att neutronflödet är störst precis framför den använda målstationen, nära golvet samt nära målstationen. Allt detta bör tas i beaktande vid demontering av cyklotronutrymmet och cyklotronen. Det är även viktigt att reflektera över vilka material som används till bland annat golv och väggar då nya utrymmen konstrueras eller då nya föremål används i utrymmet under cyklotronkörning. Material gjort av nuklider med kort halveringstid och lågaktiv betong skapat för att minska det radioaktiva avfallet är exempel på detta (7). Materialvalet är även viktigt med tanke på strålskyddssäkerheten i och runt utrymmet.

Det stora neutronflödet under körning TR-19-02 pekar på att tillverkningen av ett neutronskydd runt målstation 2 kunde vara lämpligt. Det ungefär lika stora neutronflödet under TR-19-01 visar på att det existerade neutronskyddet runt målstation 1 är fungerande och stoppar en stor mängd neutroner. Genom att jämföra neutronflödesresultaten mellan TR-19-02 och TR-19-03 kan vi konstatera samma sak. Medeltalen av neutronflödet i hela rummet antyder att

neutronskyddet skulle stoppa 85 % av alla neutroner. Vid jämförande av medeltalet av tre aktiveringsobjekt placerade rakt framför den använda målstationen blev resultatet 89 %.

Experiment TR-19-04 visade sig vara lyckat eftersom NaCl proverna med olika geometri fick väldigt snarlika neutronflöden och en mindre standardavvikelse efter användningen av de beräknade korrektionsfaktorerna. Den presenterade metoden kan alltså med fördel användas för att kompensera för självabsorption och spridning i tjocka aktiveringsobjekt som aktiveras av främst termiska neutroner. Effekten av självabsorption och spridning minskar då provets volym minskar vilket gör ett litet prov optimalt ur denna synvinkel. Ett litet prov leder till en mindre aktivitet och en större statistik osäkerhet vilket även det måste tas i beaktande då storleken på proven bestäms. Ett större aktiveringsobjekt medför att lägre neutronflöden kan mätas. Vid val av storleken på aktiveringsobjekt uppstår det alltså en knepig balansgång mellan dessa fördelar och nackdelar.

Antagandet om att den största delen av neutronerna som når aktiveringsobjekten är av termisk energi bekräftades under körning TR-19-05 där guld- och NaCl prov med och utan ett lager av kadmium bestrålades. Detta är viktigt att veta eftersom den i avhandlingen använda metoden annars hade varit bristfällig och gett opålitliga resultat. Även saltprovs användbarhet för att mäta det termiska neutronflödet bestyrktes med denna metod eftersom de gav samma resultat som den betrodde metoden där guld aktiveras. Neutronflödet för de övriga metallerna med tröskelenergier som bestrålades under TR-19-05 kunde inte bestämmas på grund av otillräcklig information om neutronernas energifördelning i de högre energiintervallen. Energifördelningen behövdes för att beräkna pålitliga reaktionstvärsnitt. Utgående från metallernas aktiviteter kunde dock förekomsten av neutroner i samtliga energiintervall över tröskelenergierna konstateras men inte kvantiteten. Eftersom det visade sig finnas även snabba neutroner borde också detta tas i beaktande vid demontering och tillverkning av cyklotronutrymmen. De snabba neutronerna har även större sannolikhet att färdas långa vägar genom väggar och ta sig ut ur cyklotronbunkern innan de saktas ner och aktiverar en atom i omgivningen. Ett stort neutronflöde av snabba neutroner skulle på så vis kunna innebära en hälsofara för personal som jobbar i närheten av cyklotronen.

I vidare forskning på området kunde undersökandet av metaller som aktiveringsobjekt och dess tvärsnitt i höga energiintervall fortsätta. Neutronernas energi kunde till exempel undersökas med hjälp av simuleringar varpå genomsnittliga reaktionstvärsnitt i energiintervallen skulle

kunna bestämmas. I framtida forskning kunde även neutronflödet bestämmas med någon typ av neutrondetektor för att sedan jämföras med resultaten presenterade i avhandlingen. Osäkerheten i kadmiums absorptionsförmåga kunde även undersökas och utvärderas för att förbättra mätmetodens precision. Flödet av snabba neutroner under produktion av ^{11}C kunde också undersökas i vidare forskning. Fler aktiveringsobjekt, med och utan kadmium lager, kunde även placeras ut i utrymmet för att undersöka fördelningen i rummet närmare.

Fördelarna med att använda NaCl som aktiveringsobjekt är många. Det är enkelt att få tag på och är billigt, särskilt jämfört med guld som oftast används som aktiveringsobjekt i dessa sammanhang. Det är också smidigt att ändra på aktiveringsobjektet till önskad form och volym. ^{24}Na har även en passlig halveringstid som varken är för lång eller för kort och NaCl har få gammatoppar med en hög intensitet. Natriums termiska reaktionstvärsnitt är högt och för neutroner med högre energi är det lågt. Tvärsnittet är dock lägre än för guld men så pass högt att det inte tillför några problem i den använda metoden. Vid mycket låga neutronflöden kunde guld med fördel användas som aktiveringsobjekt eftersom den statistiska osäkerheten då skulle bli lägre. $^{23}\text{Na}(n, \gamma)^{24}\text{Na}$ har även få resonansenergier jämfört med neutroninfångning i guld, vilket förhindrar absorption av snabba neutroner. Beräkningarna som användes i denna metod är enkla och kan utföras med standard beräkningsprogram som till exempel Excel. Det är även enkelt att förbereda många prov och mättiden med HPGe-detektorn är någorlunda kort. Korrektionsfaktorerna möjliggör även att provens geometri varierar om så behövs. En sista fördel med metoden är att aktiveringsobjekten inte påverkas av inducerad gammastrålning i rummet vilket neutrondetektorer kan göra.

Nackdelar med metoden är att det uppstår onödig aktivitet i aktiveringsobjekten efter att mätningen med HPGe-detektorn är klar. Detta skulle undvikas med användningen av en neutrondetektor. Metoden är även mer arbets- och tidskrävande än om en neutrondetektor hade använts. Andra nackdelar är att snabba och icke-termiska neutroner kan aktivera aktiveringsobjekten vilket gör resultaten mindre korrekta. Resultaten har alltså en viss osäkerhet och det verkliga neutronflödet kan vara mindre än det rapporterade. Eftersom även en liten mängd andra neutroner än de med energi 0,025 eV aktiverar objekten är reaktionstvärsnitten en aning felaktiga. En annan nackdel med metoden är de många steg den innehåller. Många steg innebär också en större osäkerhet i det slutgiltiga resultatet på grund av

flera små eller större osäkerheter som hopas. Om mättiden av aktiviteten vid gammaspektroskopi skulle varit längre skulle också dess statistiska osäkerhet blivit lägre.

7. Avslutning

Den i magisteravhandlingen presenterade natriumkloridmetoden för att undersöka det termiska neutronflödet och dess spridning kring en PET-cyklotron testades och konstaterades vara praktisk och genomförbar. Det var fördelaktigt att bestämma neutronflödet med hjälp av natriumklorid som aktiveringsobjekt och en HPGe-detektor för att mäta gammastrålningen. Resultaten blev rimliga och osäkerheten godtagbar. Strålsäkerheten i en cyklotronanläggning diskuterades allmänt och specifikt för TR-19 utgående från den i avhandlingen presenterade informationen. Den optimala storleken på aktiveringsobjekt av natriumklorid argumenterades för och för- och nackdelar med både metaller, guld och NaCl som aktiveringsobjekt diskuterades.

För att bestämma neutronflödet för snabba neutroner behövs ytterligare forskning utföras. Men den diskuterade kunskapen och problematiken inom detta område är på rätt väg mot en fungerande metod. I avhandlingen kunde endast den av snabba neutroner inducerade aktiviteten redovisas i olika energiintervall och på så vis dess existens fastslås.

Genom att använda sig av denna metod kan personal vid medicinska anläggningar på ett enkelt sätt främja strålsäkerheten och underlätta demonterings- och uppbyggnadsarbeten. Neutronernas spridning runt emitteringspunkten kan billigt och enkelt bestämmas genom att placera ut en tillräcklig mängd aktiveringsobjekt. Vad neutronflödets kvantitet mer djupgående innebär i strålskyddssammanhang är en fråga som personer mer insatta i ämnet får besvara.

8. Referenser

1. Hopkinsmedicine.org. Positron Emission Tomography (PET). [Internet].; 2022 [citerad 2021-09-01]. Hämtad från: <https://www.hopkinsmedicine.org/health/treatment-tests-and-therapies/positron-emission-tomography-pet>.
2. Crane TW, Baker MP. Neutron detectors; 1991.
3. Waters LS, McKinney GW, Durkee JW, Fensin ML, Hendricks JS, James MR, et al. The MCNPX Monte Carlo Radiation Transport Code. AIP Conference Proceedings. 2007; 896: 81-90.
4. Hagiwara , Sanami , Masumoto , Iwamoto , Matsuda , Sakamoto , et al. Spectrum Measurement of Neutrons and Gamma-Rays from Thick H182O Target Bombarded with 18 MeV Protons. Korean Phys. Soc. 2011 Augusti; 59: 2035 - 2038.
5. Tripathy SP, Paul S, Sahoo GS, Suman V, Sunil C, Joshi DS, et al. Measurement of fast neutron spectra from the interaction of 20 MeV protons with thick Be and C targets using CR-39 detector. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 2014 Januari; 318: 237-240.
6. Ziegler JF, Ziegler MD, Biersack JP. SRIM – The stopping and range of ions in matter (2010). Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 2010 Juni; 268(11-12): 1818-1823.
7. Fujibuchi , Yamaguchi , Kasahara , Iimori , Masuda , Kimura Ki, et al. Measurement of thermal neutron fluence distribution with use of Na-23 radioactivation around a medical compact cyclotron. Radiol Phys Technol. 2009; 2: 159–165.
8. Griffiths D. Introduction to Elementary Particles. 2nd ed.: WILEY-VCH; 2008.
9. Treglia G, Giovanella L. Evidence-based Positron Emission Tomography: Cham: Springer International Publishing; 2020.
10. Hiltula T, Huuska O, Konttinen P, Mannila L, Setälä M, Sipilä O, et al. Maols tabeller. 1st ed. Helsingfors: Förlagsaktiebolaget Otava; 2019.
11. Knoll G. Radiation Detection and Measurements. 3rd ed.: John Wiley & Sons, Incorporated; 2000.
12. library T2nd. Tendl.web.psi.ch. [Internet].; 2022 [citerad 2022-06-01]. Hämtad från: https://tendl.web.psi.ch/tendl_2017/tendl2017.html.
13. library T2nd. Tendl.web.psi.ch. [Internet].; 2017 [citerad 2022-06-01]. Hämtad från: https://tendl.web.psi.ch/tendl_2017/tendl2017.html.
14. Leonte R, Niculae D, Craciun L. Medical radioisotopes production at TR-19 cyclotron from IFIN-HH. U.P.B. Sci. Bull., Series A. 2017; 79(1).
15. Heil , Dababneh S, Juseviciute , Kappeler , Plag , Reifarth , et al. Quasistellar spectrum for neutron activation measurements at $kT = 5$ keV. PHYSICAL REVIEW C. 2005; 71.
16. Chu SYF, Ekström LP, Firestone RB. The Lund/LBNL Nuclear Data Search. [Internet].; 1999.
17. D'Mellow , Thomas DJ, Joyce MJ, Kolkowski , Roberts NJ, Monk SD. The replacement of cadmium as a thermal neutron filter. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. 2007 May; 577(3): 690-695.

18. Fitzgerald J. FitzPeaks Gamma Analysis and Calibration Software. [Internet].; 2016 [citerad 2022-09-13]. Hämtad från: <https://www.jimfitz.co.uk/fitzpeak.htm>.
19. The MathWorks I. MathWorks. [Internet].; 2022 [citerad 2021-10-01]. Hämtad från: <https://se.mathworks.com/products/curvefitting.html>.
20. Benavente-Castillo , Lacerda , Ferreira , Dalle , Da Silva. Assessment of the neutron radiation field with activation foils and. Applied Radiation and Isotopes. 2019 November; 153.
21. Gilmore. Practical Gamma-ray Spectrometry. 2nd ed.: John Wiley & Sons, Ltd; 2008.
22. R F. Neutron self-shielding factors for simple geometrics. The International Journal of Applied Radiation and Isotopes. 1982;33(11);: 1263-1268.
23. Lindstrom R FR. Neutron Self-Shielding Factors for Simple Geometries, Revisited. Chemia Analityczna. 2008;53(6);: 855-859.
24. Paris R. Digital Library of Mathematical Functions, Chapter 8 Incomplete Gamma and Related Functions. [Internet].; 2022 [citerad 2022-06-01]. Hämtad från: <https://dlmf.nist.gov/8>.
25. Agostinelli S, al. e. Geant4—a simulation toolkit. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 2003 Juli; 506(3): 250-303.
26. Olver F ML. Digital Library of Mathematical Functions, Chapter 10 Bessel Functions. [Internet].; 2022 [citerad 2022-06-01]. Hämtad från: <https://dlmf.nist.gov/10#PT3>.
27. Zerkin V. Evaluated Nuclear Data File (ENDF). [Internet].; 2022 [citerad 2022-09-13]. Hämtad från: <https://www-nds.iaea.org/exfor/endl.htm>.
28. Ogata Y INMSIKHKAJea. Distribution of Thermal Neutron Flux Around a PET Cyclotron. Health Physics. 2011;100(5);: 60-66.
29. Powsner RA, Palmer MR, Powsner. Essentials of Nuclear Medicine Physics and Instrumentation. 3rd ed.: John Wiley & Sons, Incorporated; 2013.
30. IAEA N2|. iaea.org. [Internet].; 2022 [citerad 2022-06-01]. Available from: <https://www.iaea.org/resources/databases/nudat-2>.
31. Van Grieken R, Markowicz A. Handbook of X-Ray Spectrometry. 2nd ed. Boca Raton: CRC Press; 2001.
32. Lill JO, Harju L, Saarela KE, Lindroos A, Heselius SJ. Increased sensitivity in thick-target particle induced X-ray emission. Analytica Chimica Acta. 1999; 378: 273±278.
33. Jeffries BD, Algieri , Gallagher JA, Nichols TH, So JR, Littlefield Jr. CW, et al. Characterization of the neutron flux during production of ¹⁸F at a medical. Applied Radiation and Isotopes. 2019 December; 154.
34. Cruzate JÁ. Estimate of the radiation source term for ¹⁸F production via thick H₂¹⁸O targets bombarded with 18 MeV protons. Radiation Physics and Chemistry. 2015 December; 117: 54-58.
35. Gallerani R, Cicoria G, Fantuzzi E, Marengo M, Mostacci D. Neutron production in the operation of a 16.5 MeV PETTrace cyclotron. Progress in Nuclear Energy. 2008 November; 50(8): 939-943.
36. Hertel NE, Shannon MP, Wang ZL, Valenzano MP, Mengesha , Crowe RJ. Neutron measurements in the vicinity of a self-shielded pet cyclotron. Radiation Protection Dosimetry. 2004; 108(3): 255-261.

37. Matsuda , Izumi , Yamanaka , Gandou , Yamada , Oishi. Measurements and analyses of the distribution of the. The European Physical Journal Conferences. 2017 Januari; 153.
38. Chiesa , Nastasi , Cazzaniga , Rebai , Arcidiacono , Previtali , et al. Measurement of the neutron flux at spallation sources using multi-foil activation. Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A. 2018 September; 902: 14-24.
39. Lin JB, Lee JP, Lin DB, Chen WK, Liu WS, Chen CY. Evaluation of stray neutron distribution in medical cyclotron vault room. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. 2009; 280(3): 481-487.
40. Vagena , Theodorou , Stoulos. Thick-foils activation technique for neutron spectrum unfolding with the. Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A. 2018 April; 887: 64-69.
41. Vichi , Zagni , Cicoria , Infantino , Riga , Zeller , et al. Activation studies of a PET cyclotron bunker. Radiation Physics and Chemistry. 2019 August; 161: 48-54.
42. Vichi , Infantino , Zagni , Cicoria , Braccini , Mostacci , et al. Activation studies for the decommissioning of PET cyclotron bunkers by. Radiation Physics and Chemistry. 2020 September; 174.
43. Ogata , Ishigure , Mochizuki , Ito , Hatano , Abe , et al. Estimation of the Thermal Neutron Flux in a PET Cyclotron Room via Radioactive Analysis of the Bolts of a Wall Socket in the Room. .
44. Center NND. National Nuclear Data Center. [Internet]. [citerad 2022-09-07]. Hämtad från: <https://www.nndc.bnl.gov/qcalc/>.
45. Ogata , Ishigur , Mochizuki , Ito , Hatano , Abe , et al. Estimation of thermal neutron flux in pet cyclotron rooms by means of radioactive analysis of bolts in the rooms. Proc. Radiochim. Acta. 2011; 1: 55-61.
46. Team F. FLUKA. [Internet].; 2010 [citerad 2022-11-22]. Hämtad från: <http://www.fluka.org/fluka.php>.