

**UNIVERSIDADE DE LISBOA
FACULDADE DE CIÊNCIAS
DEPARTAMENTO DE FÍSICA**



**ESTUDO DA RESPOSTA DE UM
CALORÍMETRO DE CRISTAIS DE
FLUORETO DE BÁRIO, USADO NO
ESPECTRÓMETRO TOF NO CERN, SUA
OPTIMIZAÇÃO**

Carla Maria Pereira Santos

**MESTRADO EM ENGENHARIA FÍSICA
(Física Nuclear Aplicada)**

2007

**UNIVERSIDADE DE LISBOA
FACULDADE DE CIÊNCIAS
DEPARTAMENTO DE FÍSICA**



**ESTUDO DA RESPOSTA DE UM
CALORÍMETRO DE CRISTAIS DE
FLUORETO DE BÁRIO, USADO NO
ESPECTRÓMETRO TOF NO CERN, SUA
OPTIMIZAÇÃO**

Carla Maria Pereira Santos

**Dissertação orientada por: Prof. Doutor José Pedro Vaz
Prof. Doutor Luís Peralta**

**MESTRADO EM ENGENHARIA FÍSICA
(Física Nuclear Aplicada)**

2007

Resumo

A experiência n_TOF tem como objectivo efectuar medições de secções eficazes de reacções induzidas por neutrões de relevância para aplicações tecnológicas inovadoras e Astrofísica Nuclear. Estas medições são realizadas usando um calorímetro de absorção total (TAC) que envolve uma amostra na qual o feixe de neutrões incide. O calorímetro mede a energia depositada pelos gamas provenientes da cascata de desexcitação produzida pelo processo de captura neutrónica. A parte activa do calorímetro é constituída por 40 cristais de BaF₂. Uma fonte importante de ruído de fundo que afecta estas medições é devida à sensibilidade a neutrões do calorímetro. Os neutrões que são dispersos na amostra ou em materiais circundantes possuem uma probabilidade não desprezável de serem capturados no detector, especialmente nos isótopos de bário, produzindo um sinal semelhante a um evento de captura na amostra. Com o dispositivo experimental usado em 2004, as medições efectuadas foram sujeitas a diversas fontes de ruído de fundo, em particular ao efeito de captura no porta amostras contituído por 500 mg de Ti, e pela dispersão de neutrões nas janelas do tubo de feixe situado na área experimental. Com o objectivo de reduzir este tipo de ruído de fundo, uma nova configuração consistindo de um tubo de feixe modificado, um novo dispositivo porta amostras e a adição de novos elementos absorvedores de neutrões foram propostos e deverão ser implementados em 2008. Neste trabalho são apresentados os resultados obtidos através de simulação Monte Carlo executada com o programa GEANT4, que compara a resposta do novo sistema de detecção com o sistema anterior. É demonstrado que uma redução efectiva no ruído de fundo devido a neutrões dispersos pode ser conseguida com a implementação de uma nova geometria do tubo de feixe e a adição de novos elementos absorvedores de neutrões.

Palavras-Chave: Simulação Monte Carlo, Calorímetro de Absorção Total, Ruído de Fundo, Elementos Absorvedores de Neutrões

Abstract

The n_TOF experiment aims at performing high precision measurements of the cross-sections of neutron induced reactions of relevance for innovative technological applications and for Nuclear Astrophysics. These measurements are performed using a 4π total absorption calorimeter (TAC) surrounding a sample on which a beam of neutrons impinges. The calorimeter measures the energies deposited by the gammas of the de-excitation cascade produced during the neutron capture process. The active part of this calorimeter consists of forty BaF₂ crystals. One important source of background affecting the measurements with the TAC arises from its neutron sensitivity. Neutrons scattered in the sample or in the surrounding materials have a non negligible probability of being captured in the detector, mostly by the Barium isotopes, producing a signal similar to a true capture event. With the setup used in 2004, measurements were hampered by different sources of background, in particular, those arising from neutron capture in the sample container, made of 500 mg Ti, and from neutron scattering in the four end cap windows of the beam pipe situated in the experimental area. In order to reduce this type of background, a new configuration consisting of a modified beam-pipe and sample holder and additional shielding has been proposed and should be implemented in 2008. In this work, the results of the Monte Carlo simulations performed using the GEANT4 simulation toolkit in order to compare the behaviour of the new detection system with the existing configuration are presented. It is shown that an effective reduction of the neutron scattering background can be attained with the new geometry of the beam pipe and shielding systems.

Key Words: Monte Carlo Simulations, Total Absorption Calorimeter, Background, Shielding Systems

Agradecimentos

Agradeço ao meu orientador Prof. Doutor Pedro Vaz pela confiança, pelo apoio e pela oportunidade conferida para a realização deste trabalho. Agradeço também à Doutora Isabel Gonçalves pelo acompanhamento em todas as fases.

Agradeço ao Prof. Doutor Luis Peralta a disponibilidade desde o início ao fim, em todos os pedidos.

Ao Doutor Daniel Cano-Ott o meu agradecimento pelo apoio científico absolutamente valioso em todos os aspectos, agradeço também à restante equipa do CIEMAT Madrid pela sua hospitalidade e cordialidade.

Às minhas amigas do ITN, que me proporcionaram um ambiente de trabalho cheio de bom humor apesar de todas as responsabilidades um grande bem hajam.

Agradeço a todos os membros da minha numerosa família por sempre demonstrarem orgulho no meu trabalho e capacidades, apesar dos recúos.

Agradeço ao Pedro Amaral por ser o grande pilar da minha vida e à sua família que agora também é a minha.

Por fim agradeço à FCT a bolsa de investigação concedida sem a qual teria sido impossível a realização deste trabalho.

Índice

Introdução	1
Capítulo 1	7
Objectivos das actividades experimentais em n_TOF	7
1.1 Medições de secções eficazes de reacções induzidas por neutrões de relevância para Astrofísica Nuclear.....	7
1.2 Medições de secções eficazes de dados nucleares para aplicações tecnológicas inovadoras e transmutação de resíduos nucleares.....	11
Capítulo 2	15
Introdução à Física de Neutrões	15
2.1 Propriedades do neutrão.....	15
2.2 Secções eficazes de reacções nucleares induzidas por neutrões.....	16
2.2.1 Formação do núcleo composto.....	19
2.2.2 Ressonâncias.....	20
2.2.3 Captura Radiativa.....	21
2.2.4 Conversão Interna.....	23
2.3 Fissão Nuclear.....	23
2.4 Produção de neutrões – Reacções de espalação.....	25
2.5 Moderação de neutrões na matéria.....	27
2.6 Detectores de neutrões.....	29
Capítulo 3	31
O “setup” Experimental n_TOF	31

3.1 Feixe de Protões.....	31
3.2 Alvo de Espalação.....	33
3.3 O tubo de feixe de neutrões n_TOF.....	34
3.4 Área Experimental.....	35
3.5 Monitor de Fluxo.....	35
3.6 Micromegas – determinação das características do feixe.....	36
3.7 Fluxo de Neutrões.....	37
3.8 Fluxo de fotões, protões, mesões e electrões.....	38
3.9 Resolução em energia (dos neutrões) do espectrómetro.....	41
3.10 Ruído de Fundo durante as medidas.....	43
3.10 Sistema de Aquisição de Dados (DAQ).....	45
Capítulo 4	47
Calorímetro de Absorção Total (TAC)	47
4.1 Medições de Secções Eficazes de Captura Neutrónica Radiativa.....	47
4.2 Critérios na escolha do material cintilador.....	51
4.3 Cristais de Fluoreto de Bário (BaF ₂).....	52
4.3.1 Os Danos da Radiação.....	56
4.4 Forma do Sinal (Pulse Shape).....	56
4.5 Resolução em Energia.....	58
4.6 Eficiência do Detector.....	59
4.7 Resolução Temporal.....	60
4.8 Processamento de Sinal.....	60
4.9 Deposição de energia nos cristais de BaF ₂	60
Capítulo 5	63
O Programa de Simulação Monte Carlo – Geant4	63
5.1 GEANT4 – An Object-Oriented Simulation Toolkit.....	63
5.1.1 CLHEP.....	64
5.1.2 Classes do Utilizador.....	64
5.1.3 Transporte de Partículas.....	65
5.1.4 Generalidades acerca dos Processos Físicos.....	66
5.1.4.1 Processo de Decaimento.....	66
5.1.4.2 Comum a Outros Processos.....	67

Comprimento de Interação, Número de Livres Percursos	
Médios e Perda de Energia.....	67
5.1.5 Processos Electromagnéticos.....	69
Fotões.....	69
Partículas Carregadas.....	70
5.1.6 Processos Hadrónicos.....	70
5.1.6.1 Modelos baseados em dados experimentais (Data Driven Models).....	70
5.1.6.2 Modelos de parametrização e Modelos baseados na Teoria.....	71
5.1.6.3 Interações de Neutrões.....	71
Captura Radiativa.....	72
Dispersão Elástica.....	72
Fissão.....	72
Dispersão Inelástica.....	73
Capítulo 6	75
Fontes de ruído de fundo (“background”) e sua mitigação	75
6.1 Fontes de ruído de fundo.....	73
6.1.1 Amostras.....	76
6.2 Geometrias do tubo de feixe, sistema porta-amostra.....	79
6.3 Sistema absorvedor de neutrões: geometrias e materiais constituintes.....	80
Capítulo 7	83
Simulações Monte Carlo utilizando o código GEANT4	83
7.1 Geometria.....	84
7.2 Physics List.....	85
7.3 Primary Generator Action.....	87
7.4 Classes do utilizador não obrigatórias.....	87
7.5 Submissão dos trabalhos.....	89
Capítulo 8	91
Análise de Resultados	91
8.1 Probabilidade de detecção de um neutrão disperso.....	91
8.2 Energia total depositada no TAC devido a neutrões dispersos na amostra.....	93

8.3 Energia total depositada no TAC devida a neutrões dispersos nos elementos do tubo de feixe.....	97
8.3 Energia total depositada no TAC devida a neutrões dispersos no seu interior.....	102
8.4 Escolha do material para o elemento absorvedor.....	103
8.5 Escolha da geometria para o elemento absorvedor.....	108
Conclusões	117
Referências Bibliográficas	121

Introdução

O presente trabalho insere-se no contexto da participação do Instituto Tecnológico e Nuclear na colaboração n_TOF – “*Neutron Time of Flight*”. Esta colaboração consiste num consórcio de 40 laboratórios na Europa, E.U.A. e Japão e conduziu um programa experimental entre 2001 e 2004 com o objectivo de efectuar medições de alta precisão das secções eficazes de reacções nucleares induzidas por neutrões (captura neutrónica e fissão principalmente) com energias entre 1 eV a 250 MeV, utilizando o espectrómetro TOF (“Time Of Flight”) no CERN. Uma segunda campanha de medições deverá iniciar-se em 2008.

O espectrómetro TOF no CERN consiste de uma fonte de espalação, num tubo de feixe de neutrões com cerca de 185 metros de comprimento e numa área experimental onde se encontram as amostras de material cujas secções eficazes se pretendem medir com os detectores adiante descritos. Um pulso, de duração 6 ns, de protões de momento 20 GeV/c incide todos os 2,4 segundos num alvo de chumbo originando por reacções nucleares de espalação elevados fluxos de neutrões. Uma parte dos neutrões gerados no alvo de espalação viaja no interior do tubo de neutrões até à área experimental onde incidem numa amostra rodeada pelos detectores que efectuem a detecção das partículas produzidas pela interacção dos neutrões na amostra. A energia dos neutrões que interagem na amostra é medida com excelente resolução utilizando a técnica de tempo de voo. O espectrómetro caracteriza-se por i) um elevado fluxo de neutrões incidentes na área de medições (da ordem de 10^5 neutrões $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$), por ii) um ruído de fundo inferior ao existente noutras instalações, por iii) uma excelente resolução em energia por iv) um baixo “duty cycle” e permite o estudo sistemático de reacções induzidas por neutrões no intervalo de energias entre 1 eV e 250 MeV, em amostras de pequena dimensão e baixa massa [1].

O programa experimental já efectuado e a iniciar em 2008 tem como objectivo realizar um grande número de medidas associadas a reacções de captura neutrónica e reacções de fissão induzida por neutrões, de relevância para[2]:

- (1) Astrofísica Nuclear;
- (2) Tecnologias nucleares inovadoras (sistemas ADS¹[3] para a transmutação de resíduos radioactivos e EA² [4,5] para produção de energia);
- (3) Tópicos diversos de relevância em Física Nuclear fundamental.

As características inovadoras do espectrómetro n_TOF permitem efectuar medidas de secções eficazes de reacções induzidas por neutrões em nuclidos para os quais não há dados experimentais ou em intervalos de energia para os quais não existem dados experimentais e/ou avaliados nas bibliotecas existentes de dados de secções eficazes nucleares (ENDF³, JEFF⁴, JENDL⁵, entre outras). Adicionalmente, permite efectuar medições com maior precisão de dados já existentes (nomeadamente de novas ressonâncias ou de parâmetros das ressonâncias já conhecidas) na região das ressonâncias resolvidas e ampliar o intervalo resolvido de energia dos neutrões para a actual zona das ressonâncias não resolvidas.

Durante a primeira fase do projecto n_TOF, três campanhas experimentais em 2002, 2003 e 2004 cobriram medidas de secções eficazes de captura e de fissão de um grande número de amostras. A maioria destas medições, foram efectuadas no âmbito do projecto n_TOF-ND-ADS (n_TOF Nuclear Data for Accelerator Driven Systems), co-financiado pela União Europeia no âmbito do 5º Programa Quadro de Investigação e Desenvolvimento para estudos básicos relativos à separação e transmutação (P&T⁶) de resíduos nucleares.

A segunda fase do projecto n_TOF está prevista para o período 2008-2010. O programa experimental segue as mesmas linhas definidas durante a primeira fase de medidas. As medições propostas para n_TOF a efectuar e já efectuadas encontram-se descritas na tabela 1.1 [2].

¹ Accelerator Driven System

² Energy Amplifier

³ Evaluated Nuclear Data File, versão actual ENDF/B-VII

⁴ Jointly Evaluated Fission File, versão actual JEFF-3.1

⁵ Japanese Evaluated Nuclear Data File, versão actual JENDL-3.1

⁶ Partitioning and Transmutation

<p>Medições de secções eficazes de captura neutrónica realizadas durante a 1ª fase de medidas (2002-2004)</p>
<p>^{151}Sm, $^{204,206,207,208}\text{Pb}$, ^{209}Bi, ^{232}Th, $^{24,25,26}\text{Mg}$, $^{90,91,92,94,96}\text{Zr}$, ^{93}Zr, ^{139}La, $^{186,187,188}\text{Os}$, $^{233,234}\text{U}$, ^{237}Np, ^{240}Pu, ^{243}Am</p>
<p>Medições de secções eficazes de fissão realizadas durante a 1ª fase de medidas (2002-2004)</p>
<p>$^{233,234,235,236,238}\text{U}$, ^{232}Th, ^{209}Bi, ^{237}Np, $^{241,243}\text{Am}$, ^{245}Cm</p>
<p>Medições de secções eficazes de captura neutrónica previstas (2008-2010)</p>
<p>$^{234,235,236,238}\text{U}$, $^{231,233}\text{Pa}$, $^{239,240,242}\text{Pu}$, $^{241,243}\text{Am}$, ^{245}Cm, ^{197}Au, C, Pb Mo, Ru, Pd, Fe, Ni, Zn, Se – isótopos estáveis A ≈ 150 (isótopos vários)</p>
<p>Medidas de secções eficazes de de fissão previstas (2008-2010)</p>
<p>^{231}Pa, ^{245}Cm, ^{241}Pu, $^{241,243}\text{Am}$, ^{244}Cm, $^{235,234}\text{U}$ Vários (Fragmentos de fissão: distribuição angular e em massa)</p>
<p>Outras medidas de secções eficazes previstas (2008-2010)</p>
<p>$^{147}\text{Sm}(n,\alpha)$, $^{67}\text{Zn}(n,\alpha)$, $^{99}\text{Ru}(n,\alpha)$, $^{58}\text{Ni}(n,p)$ Al, V, Cr, Zr, Th, He, Ne, Ar, Xe</p> <p>Reacções de secção eficaz total em diferentes materiais (C, N, O, etc.), CR-39 e dosimetria com TLDs.</p>

Tabela 1.1 – Medidas realizadas no período experimental 2002-2004 e planeadas para o período 2008-2010 de secções eficazes de reacções induzidas por neutrões.

Durante a fase de medições efectuadas em 2004 foi usado um dispositivo experimental constituído por um calorímetro de absorção total (TAC) para a detecção dos fótons provenientes das reacções de captura neutrónica em amostras. Este calorímetro foi especialmente concebido para permitir a medição de secções eficazes de captura neutrónica utilizando amostras de materiais altamente radioactivos disponíveis de baixa massa (na ordem do miligrama ou inferior). O calorímetro de absorção total é composto por 40 cristais de BaF_2 de geometria piramidal truncada, com 15 cm de profundidade e localizados a uma distância de 10 cm em torno da amostra. Os cristais estão encapsulados numa fina camada de Teflon e alumínio, que agem como reflectores dos fótons ópticos e, numa camada de fibra de carbono enriquecida com ^{10}B , para absorver os neutrões dispersos na amostra ou em materiais estruturais envolventes e que incidem no calorímetro.

Estes neutrões possuem uma probabilidade não desprezável de serem capturados no material do detector, em particular por isótopos do bário, que constituem o cristal cintilador, e produzirem um sinal que poderá ser erroneamente identificado como um evento de captura neutrónica na amostra.

Para minimizar este efeito foi introduzido no interior do TAC um absorvedor de neutrões com a forma de uma casca esférica constituído por $^6\text{LiOOC}(\text{CH}_2)_{10}\text{COO}^6\text{Li}$. Este composto funciona simultaneamente como um moderador de neutrões (devido ao baixo valor de número atómico efectivo Z_{eff}) e absorvedor de neutrões (devido à presença de ^6Li). O baixo valor de Z_{eff} também é importante para minimizar a consequente atenuação dos gamas da cascata de captura neutrónica (pretende-se detectar fótons e absorver os neutrões).

Está prevista a utilização deste detector para a segunda fase de tomada de dados durante o programa experimental no período 2008-2010. De forma a diminuir ainda mais o número de neutrões detectados no calorímetro, foram estudados através de simulação Monte Carlo usando o pacote de programas GEANT4[6], as seguintes modificações ao “setup” experimental já existente:

- 1) um novo dispositivo porta amostras;
- 2) uma nova geometria do tubo de feixe de neutrões na área experimental;
- 2) um sistema absorvedor de neutrões consistindo de elementos de geometria cilíndrica e cónica situados no exterior do calorímetro.

A geometria deste “setup” modificado foi implementada nas simulações utilizando métodos Monte Carlo cujos resultados se apresentam nesta Tese. Com a realização deste trabalho pretendeu-se estimar a contribuição desse novo dispositivo na redução do ruído de fundo, associado à dispersão de neutrões no tubo de feixe e porta amostras.

O presente trabalho encontra-se dividido em 8 capítulos cujo conteúdo a seguir se explicita:

- Capítulo 1 – Descrição dos objectivos das medições realizadas em n_TOF.
- Capítulo 2 – Descrição da teoria considerada relevante sobre física de neutrões.
- Capítulo 3 – Breve descrição do espectrómetro TOF no CERN.
- Capítulo 4 – Descrição com algum detalhe do calorímetro de absorção total usado nas medições de secções eficazes de captura neutrónica.
- Capítulo 5 – Descrição sobre os métodos Monte Carlo usados no GEANT4 e quais as potencialidades desta ferramenta na simulação de processos físicos.
- Capítulo 6 – Descrição das fontes de ruído de fundo presentes durante a primeira fase de medições.
- Capítulo 7 – Descrição do trabalho de simulação realizado.
- Capítulo 8 – Apresentação dos resultados obtidos no trabalho de simulação e respectiva análise.
- Finalmente apresentam-se as conclusões.

Capítulo 1

Objectivos das actividades experimentais em n_TOF

Os objectivos principais das actividades experimentais em n_TOF são medições de secções eficazes de reacções nucleares induzidas por neutrões de interesse em processos de Astrofísica Nuclear e para aplicação em tecnologias nucleares inovadoras. Outro objectivo está relacionado com a relevância em tópicos de Física Nuclear fundamental, em particular, avanços nos modelos teóricos nucleares podem ser atingidos através de experiências dedicadas a medidas de grande precisão de quantidades tais como *neutron strength functions*, densidades de níveis nucleares e secções eficazes de reacção, em particular para espécies isotópicas com camadas de neutrões completas.

De seguida irão descrever-se as motivações para as actividades experimentais dos principais objectivos.

1.1 Medições de secções eficazes de reacções induzidas por neutrões de relevância para Astrofísica Nuclear

Um dos objectivos das actividades experimentais em n_TOF são medidas de interesse em processos de Astrofísica Nuclear. Esses processos consistem na nucleosíntese através de captura neutrónica que ocorre no interior das estrelas.

Considera-se [7] que a evolução do universo pode-se dividir em quatro estágios:

(1) Nucleosíntese primordial e formação de átomos leves – Desde o Big-Bang ($t=0$) até à formação dos átomos estáveis de hidrogénio e hélio e pequenas concentrações de outros elementos mais pesados. Estima-se que este período tenha durado 10^6 anos.

(2) Condensação Galáctica – As forças gravitacionais dominaram este período formando a primeira geração de estrelas. A duração estimada deste período é de entre 1 a 2 Gy ($1 \text{ Gy} = 10^9$ anos).

(3) Nucleosíntese Estelar – A nucleosíntese nas estrelas e supernovas levou à formação dos elementos químicos presentes no universo. Este período apresenta uma grande incerteza quanto à sua duração, estima-se um valor de $\approx 8 \pm 2$ Gy.

(4) Evolução do Sistema Solar – Condensação do sistema solar. Período bem estimado com um intervalo de tempo associado de 4.6 Gy.

Crê-se que no início da primeira fase de evolução do universo a temperatura era suficientemente elevada de modo que matéria e energia se encontrassem em equilíbrio, sendo partícula e antipartícula criadas e aniquiladas à mesma razão. Também se acredita que o nosso universo é essencialmente constituído por matéria, em detrimento da antimatéria, então este equilíbrio teve que ser quebrado através de reacções que violam a simetria CP, pois este tipo de reacções favorece a formação de matéria. Quando toda a antimatéria se aniquilou com a matéria, a matéria que sobrou é aquilo que podemos observar hoje. A presente densidade de nucleões é cerca de 10^{-9} da presente densidade de fotões ($\rho_{\text{bariões}} / \rho_{\text{fotões}} \sim 10^{-9}$).

A nucleosíntese primordial e a formação dos núcleos leves começou com reacções de fusão originando a formação do deutério, ao que se seguiu o trítio e o hélio (números de massa 3 e 4). As reacções subsequentes não se encontravam favorecidas pois a temperatura não era suficientemente elevada para quebrar a barreira de Coulomb.

Após o período de condensação galáctica as estrelas começaram a sua vida como uma mistura de hidrogénio e 24% (em massa) de hélio. Com o colapso da matéria, os átomos individuais trocam a sua energia potencial gravítica por energia cinética, aumentando desta forma a temperatura. Para um determinado valor de temperatura é possível vencer a barreira repulsiva de Coulomb e através de reacções de fusão produzir elementos mais massivos do que o hélio. Este tipo de reacções é responsável pela formação dos elementos até $A < 56$ (A é o número de massa).

Para elementos mais massivos que o ferro as reacções de fusão envolvendo partículas carregadas tornam-se energeticamente desfavoráveis. A energia de ligação por nucleão num núcleo diminui com o respectivo número de massa a partir de $A=56$

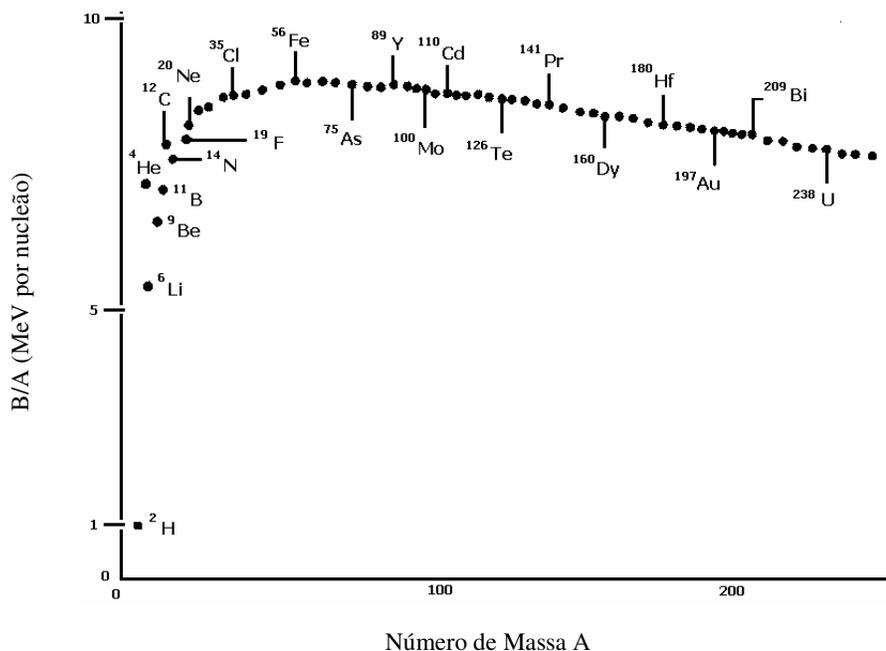


Fig 1.1 – Comportamento da energia de ligação por nucleão com o número de massa do núcleo [7].

tal como se evidencia na figura 1.1. Portanto a maioria dos elementos na região $A > 56$ são formados por processos de captura neutrónica e subsequente decaimento beta.

Estes processos são de dois tipos; o processo-s^{‡‡} (lento) e o processo-r^{§§} (rápido), apesar de na maioria das estrelas não existir uma grande abundância de neutrões. A abundância isotópica geral está relacionada com a contribuição destes dois processos. Existe um terceiro processo, processo-p (protão), de captura de prótons, responsável pela existência de isótopos pobres em neutrões, mas a contribuição deste processo é cerca de 10 vezes inferior aos de captura neutrónica.

A ocorrência de um dos processos de captura neutrónica depende da densidade de neutrões e da temperatura. São identificadas diferentes condições físicas e ambientes astrofísicos onde ocorrem estes dois processos: a formação de núcleos através do processo do tipo processo-s (lento) ocorre em condições de equilíbrio hidrostático nos

‡‡ slow
§§ rapid

núcleos estelares de hélio ou nas massivas gigantes vermelhas. A formação de núcleos através do processo do tipo processo-r (rápido) corresponde a uma nucleosíntese primária, em condições dinâmicas e num ambiente associado com a evolução de estrelas massivas, explosões de supernovas e colisões de estrelas de neutrões [8].

A divisão nestes dois processos baseia-se na relação entre o tempo associado ao processo de captura neutrónica (τ_n) e o tempo associado ao declínio beta (τ_β). Se o fluxo de neutrões é tal que, para um dado isótopo a probabilidade de ocorrer captura neutrónica é inferior à probabilidade de ocorrer declínio beta, ou seja, $\tau_n > \tau_\beta$, (onde τ_β é o tempo de vida característico de núcleos instáveis face ao declínio beta) e perto do vale de estabilidade, então os isótopos radioactivos decaem para isótopos estáveis, que posteriormente sofrem captura neutrónica conduzindo a isótopos radioactivos perto do vale de estabilidade e assim sucessivamente. Este processo assegura que o caminho de captura neutrónica se mantenha perto do vale de estabilidade beta, e define o processo s-process.

Por outro lado se o fluxo de neutrões é tal que, para um dado isótopo, a probabilidade de captura neutrónica é elevada, ou seja, $\tau_n < \tau_\beta$, ocorrem sucessivas reacções de captura neutrónica até à região de núcleos ricos em neutrões e longe do vale de estabilidade beta. Com a exaustão do fluxo de neutrões, os produtos de captura vão, por declínio beta, aproximando-se da região do vale de estabilidade beta, formando os núcleos característicos do processo r-process.

Na figura 1.2 é possível observar um esquema de formação de isótopos a partir do ^{59}Fe através de caminhos possíveis para os dois processos, originando a formação de isótopos distintos para diferentes condições astrofísicas. Como é visível na Figura, nos diversos “pontos de bifurcação” (tais como os isótopos ^{59}Fe , ^{63}Ni) é necessário conhecer com precisão a secção eficaz de captura neutrónica comparativamente à probabilidade de declínio beta para se poder estimar o caminho de produção favorecido, que está intimamente relacionado com a abundância isotópica dos isótopos de cobalto, níquel e cobre.

Em particular para o processo s, existe uma correlação directa entre a secção eficaz de captura neutrónica e a abundância isotópica observada para um determinado elemento no universo. É esta correlação que torna necessárias as medidas da secção eficaz de captura neutrónica com grande precisão para todos os isótopos que se

encontram no vale de estabilidade beta. Estas medidas têm sido realizadas desde os primeiros tempos da astrofísica nuclear.

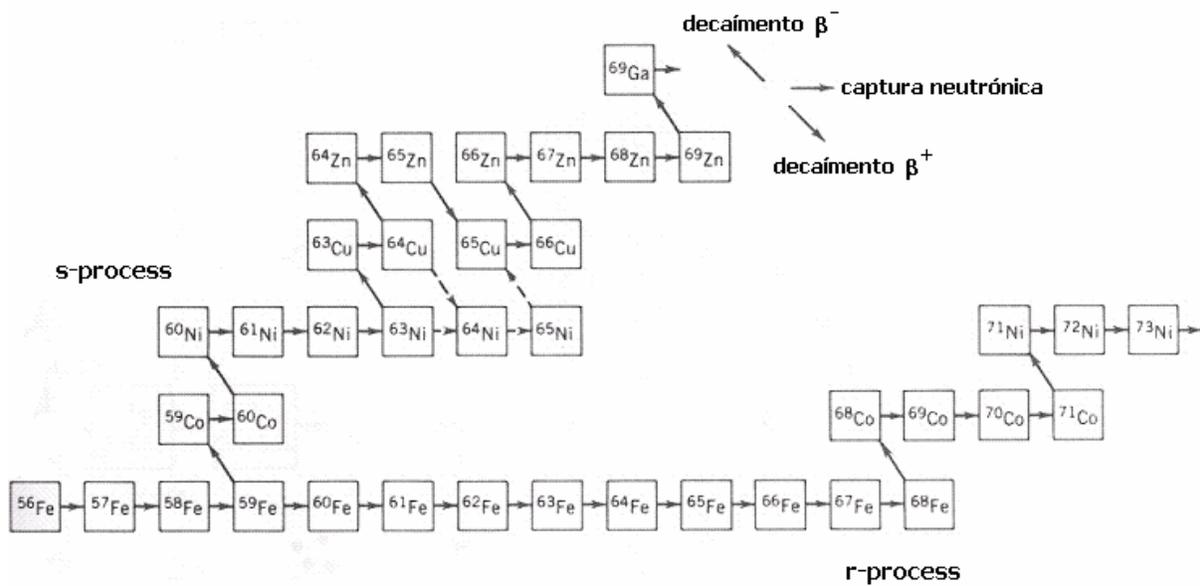


Fig. 1.2 – Os caminhos dos processos r- e s- process desde o ^{56}Fe . As linhas a tracejado no processo s representam caminhos possíveis alternativos para o ^{65}Cu . Muitos caminhos do processo r são possíveis, apenas um está representado [7].

Alguns núcleos são formados através das duas cadeias de processos r e s, para este tipo de núcleos existem muitas incertezas na determinação das contribuições da sua abundância por cada um dos dois processos.

A natureza detalhada dos processos pelos quais se formam os elementos mais pesados desde o ferro até ao urânio, continua a ser um dos mais fundamentais e desafiadores problemas da astrofísica nuclear. Pelo que novas e precisas medições experimentais são extremamente relevantes.

1.2 Medições de secções eficazes de dados nucleares para aplicações tecnológicas inovadoras e transmutação de resíduos nucleares

A produção de energia eléctrica em reactores nucleares, através do aproveitamento da energia libertada em reacções nucleares de fissão, representa uma alternativa real ao uso de combustíveis fósseis. No entanto o funcionamento seguro e económico de tais reactores e a sustentabilidade da energia nuclear depende, entre

outros, das soluções adoptadas para a gestão e armazenamento dos resíduos radioactivos de longos tempos de semi-vida e elevada radiotoxicidade produzidos durante o funcionamento dos reactores nucleares comerciais [9].

Os radionuclidos produzidos num reactor de fissão são essencialmente de dois tipos: actínídeos, (como o plutónio, neptúnio, amerício e cúrio, entre outros) e produtos de fissão (rubídio, molibdénio, céσιο, iodo, xénon, etc.). Uma parte destes radionuclidos caracterizam-se por terem longos tempos de semi-vida e elevada actividade específica. As potenciais consequências destes radionuclidos ao nível biológico são estimadas por uma grandeza denominada *radiotoxicidade*.

A tabela 1.1 apresenta a produção anual dos principais actínídeos e produtos de fissão e correspondentes tempos de semi-vida num reactor de fissão de urânio.

Isótopo	Tempo de semi-vida (anos)	Massa produzida (kg/anos)	Isótopo	Tempo de semi-vida (anos)	Massa produzida (kg/anos)
Plutónio e Actínídeos Menores			Produtos de fissão de vida Longa		
²³⁷ Np	2 100 000	14.5	⁷⁹ Se	65 000	0.2
²³⁸ Pu	80	4.5	⁹⁰ Sr	29	13.4
²³⁹ Pu	24 000	166.0	⁹³ Zr	1 500 000	23.2
²⁴⁰ Pu	6 600	76.7	⁹⁹ Tc	210 000	24.7
²⁴¹ Pu	14	25.4	¹⁰⁷ Pd	6 500 000	7.3
²⁴² Pu	380 000	15.5	¹²⁶ Sn	100 000	1.0
²⁴¹ Am	430	16.6	¹²⁹ I	17 000 000	5.8
²⁴³ Am	7 400	3.0	¹³⁵ Cs	3 000 000	9.4
²⁴⁴ Cm	18	0.6	¹³⁷ Cs	30	31.8
			¹⁵³ Sm	90	0.4

Tabela 1.1 – Produção anual de plutónio, actínídeos menores (neptúnio, amerício e cúrio) e produtos de fissão para um reactor de fissão nuclear típico [10].

Uma das soluções actualmente considerada para a gestão destes resíduos radioactivos consiste no seu armazenamento em repositórios geológicos em profundidade, de acesso controlado, durante milhares de anos. Uma alternativa a este procedimento consiste em efectuar, antes do seu armazenamento, a transmutação dos

resíduos de elevada radiotoxicidade e longos tempos de semi-vida, de forma a diminuir o seu volume. A transmutação tem como objectivo reduzir o potencial impacto radiobiológico dos actínídeos e produtos de fissão dos resíduos produzidos pelos reactores nucleares, através da sua transformação em nuclídeos com tempos de semi-vida mais curtos ou estáveis.

A transmutação de actínídeos é efectuada induzindo directamente a sua fissão, ou através da indução de reacções de captura seguidas de fissão. Através destes dois tipos de reacções transformam-se actínídeos de longos tempos de semi-vida e altamente radiotóxicos em produtos de fissão com tempos de semi-vida mais curta e menos radiotóxicos.

A transmutação é efectuada utilizando elevados fluxos de neutrões rápidos em instalações nucleares dedicadas e aproveitando as características das secções eficazes de actínídeos ou seja: actínídeos com um número ímpar de neutrões, como os isótopos de urânio e plutónio $^{233,235}\text{U}$ e ^{239}Pu , têm uma elevada secção eficaz de fissão na região dos neutrões térmicos contrastando com os isótopos que possuem um número par de neutrões que apenas fissionam com neutrões rápidos. Alguns destes últimos transformam-se em núclídeos fissionáveis na região dos neutrões térmicos através do processo de captura neutrónica, tais como ^{232}Th e ^{238}U que transmutam para o ^{233}U e ^{239}Pu , respectivamente, e são por essa razão chamados de nuclídeos férteis. A maioria dos produtos de fissão têm uma elevada secção eficaz de captura na região dos neutrões térmicos (energia cinética do neutrão da ordem de 25 mili-eV) e a sua secção eficaz de captura neutrónica é considerável e exhibe ressonâncias na gama de energias correspondente aos neutrões epitérmicos (energia cinética do neutrão $\sim 1\text{ eV} - 1\text{ keV}$).

A transmutação utilizando aceleradores de protões acoplados a núcleos de reactores funcionando em regime sub-crítico é o conceito dos sistemas ADS (“Accelerator Driven Systems”). Um sistema ADS consiste num acelerador linear de protões de elevada potência debitando um feixe de protões com energia típica entre 600 MeV e 1 GeV e com intensidades de corrente de feixe de vários mili-Ampère incidente num alvo constituído por um material pesado (tipicamente chumbo ou mistura de chumbo e bismuto). Cada protão na gama de energias mencionadas gera por reacções de espalação cerca de 15 neutrões, sendo o espectro de energia dos neutrões dominado pelos neutrões de evaporação com energias de alguns MeV. O alvo de espalação é rodeado por um núcleo de um reactor funcionando em regime sub-crítico que contém os actínídeos que se pretendem transmutar [10].

A realização de novas e mais precisas medições de secções eficazes de reacções induzidas por neutrões em isótopos de actínídeos e elementos presentes nos materiais estruturais de sistemas ADS, é necessária por dois motivos[11]:

- Pela inexistência de dados de secções eficazes de interacção de neutrões para determinados isótopos e gamas de energia;
- Pela discrepância dos valores das secções eficazes existentes nas diferentes bibliotecas de dados nucleares.

Capítulo 2

Introdução à Física de Neutrões

2.1 Propriedades do neutrão

O neutrão é uma partícula electricamente neutra, 0,1% mais massiva que o protão ($m_n = 939.573 \text{ MeV}/c^2$). O modelo padrão que descreve a estrutura interna de um hadrão diz-nos que o neutrão é um barião, constituído pelo acoplamento de três quarks (udd), de spin 1/2. Julga-se que esta estrutura interna seja responsável pelo valor observado do momento dipolar magnético de $-1.91304273(45) \mu_N$ [7].

O neutrão livre é instável e decai por emissão β^- com um tempo de vida média de 10.6 minutos através da reacção:



No núcleo, o neutrão ligado pode ter um tempo de vida média maior (podendo chegar a ser estável), ou pode ter um tempo de vida média menor, dependendo do alinhamento relativo das camadas dos neutrões e dos protões no núcleo. O decaimento β^+ é o inverso da equação (2.1), e por ser uma reacção endotérmica ocorre no interior do núcleo.



Quando a equação (2.2) é energeticamente favorável compete com o processo de captura electrónica, equação (2.3).



Como o neutrão não possui carga eléctrica, não é afectado pela barreira de Coulomb, e mesmo neutrões de muito baixas energias (na ordem dos meV) podem interagir com o núcleo.

Os feixes de neutrões podem ser classificados de acordo com a sua energia cinética, embora esta classificação não seja universal, encontra-se vulgarmente na literatura e é útil na sua identificação. A designação encontra-se na tabela 2.1.

Designação dos neutrões	Intervalo de energia
<i>Térmicos</i>	E até 1 eV (obedece a uma distribuição de Maxwell-Boltzmann com máximo a 0.025 eV à temperatura ambiente)
<i>Epitérmicos</i>	E ~ 1 eV – 1 keV
<i>Lentos</i>	E ~ 1 keV – 100 keV
<i>Rápidos</i>	E ~ 100 keV – 10 MeV

Tabela 2.1 – Classificação usada para neutrões de acordo com a energia cinética que possuem.

2.2 Secções eficazes de reacções nucleares induzidas por neutrões

Os neutrões podem interagir com um núcleo numa série de formas, por exemplo:



A probabilidade associada à ocorrência de uma reacção relaciona-se directamente com o conceito de secção eficaz para essa reacção. A secção eficaz de uma reacção nuclear é interpretada como sendo a área efectiva de um núcleo vista por uma partícula que com ele sofre uma interacção. A secção eficaz tem portanto dimensões de

área e pode ser expressa em cm^2 , mas tendo em conta a dimensão das partículas subatómicas, é usualmente expressa em barns, $1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$.

O termo “secção eficaz” é por vezes usado em diferentes tipos de grandezas que derivam da secção eficaz total para uma reacção, como sejam a secção eficaz diferencial em função da energia, ou a secção eficaz diferencial no ângulo sólido.

A magnitude da secção eficaz de uma reacção depende se a reacção é do tipo elástica, inelástica e endotérmica ou inelástica e exotérmica e existe dependência também no tipo de interacção associado à reacção. Os valores em barn para a secção eficaz podem variar de várias ordens de grandeza, desde os mb (milibarn) aos kb (kilobarn).

A dispersão elástica de um neutrão por um núcleo deve-se à interacção de curto alcance do tipo forte [12]. A secção eficaz deste tipo de interacção é geralmente constante para neutrões de baixa energia e começa a diminuir lentamente com o aumento da energia do neutrão. A baixas energias a secção eficaz sofre a influência do alinhamento ou anti-alinhamento dos spins do neutrão incidente versus nucleões aumentando o seu valor [12]. Com o aumento do momento do neutrão o valor da secção eficaz desce para valores mais congruentes com os esperados pelo alcance da interacção forte. Acima destas 2 regiões existe a região das ressonâncias que aparece devido à formação do núcleo composto. As ressonâncias correspondem a valores mais elevados da secção eficaz para determinadas energias do neutrão incidente que coincidem com os estados excitados do núcleo composto. Para a secção eficaz elástica, a energia do neutrão correspondente às ressonâncias é coincidente com a energia das ressonâncias para a secção eficaz do processo de captura radiativa. A distribuição angular no processo de dispersão elástica neutrão-núcleo é isotrópica desde que o momento do neutrão seja $p < \hbar / R$ ($R = R_0 A^{1/3}$ – raio nuclear, $R_0 \sim 1.2 \times 10^{-15} \text{ m}$; p = momento do neutrão incidente) [12].

Para as reacções inelásticas que não sofrem a barreira de Coulomb, como é o caso da interacção neutrão-núcleo, os valores de secção eficaz a baixas energias dependem se a reacção é do tipo endotérmica ou exotérmica. As reacções exotérmicas possuem secções eficazes proporcionais a $1/v$, sendo v a velocidade relativa do neutrão. Reacções endotérmicas possuem um valor limiar para a energia do neutrão.

A forma gráfica da secção eficaz de uma reacção nuclear induzida por um neutrão depende da energia do neutrão incidente e apresenta-se como nas curvas das figuras 2.1a) e 2.1b), obtidas experimentalmente.

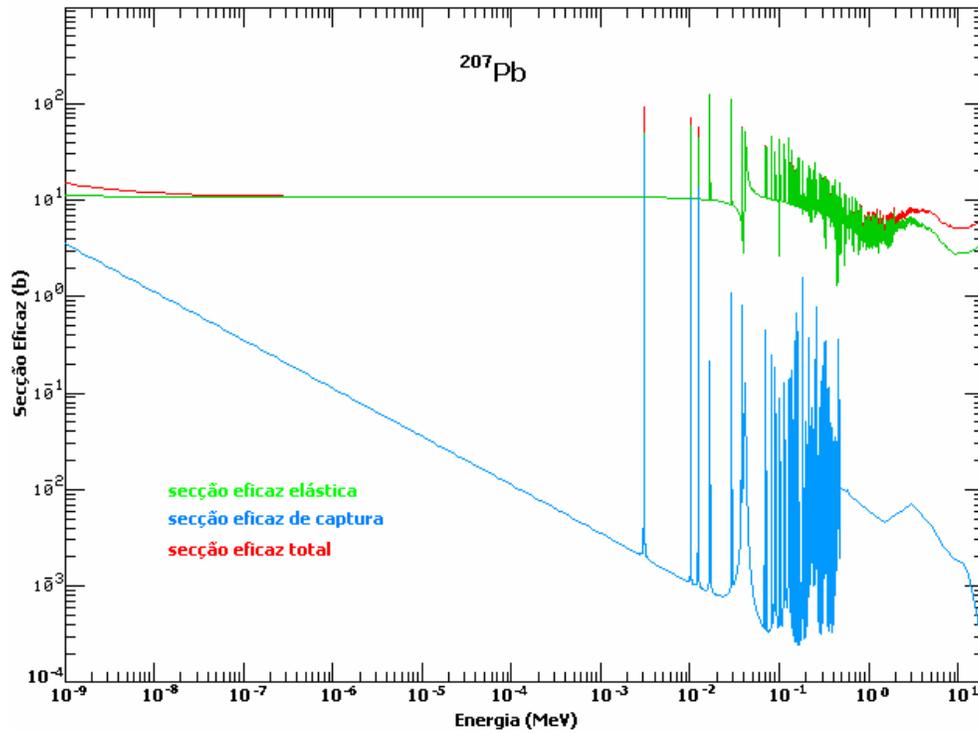


Fig. 2.1 a) – Dependência da secção eficaz (total, elástica e captura) de uma reacção induzida por um neutrão num núcleo de ^{207}Pb com a energia do neutrão incidente [13].

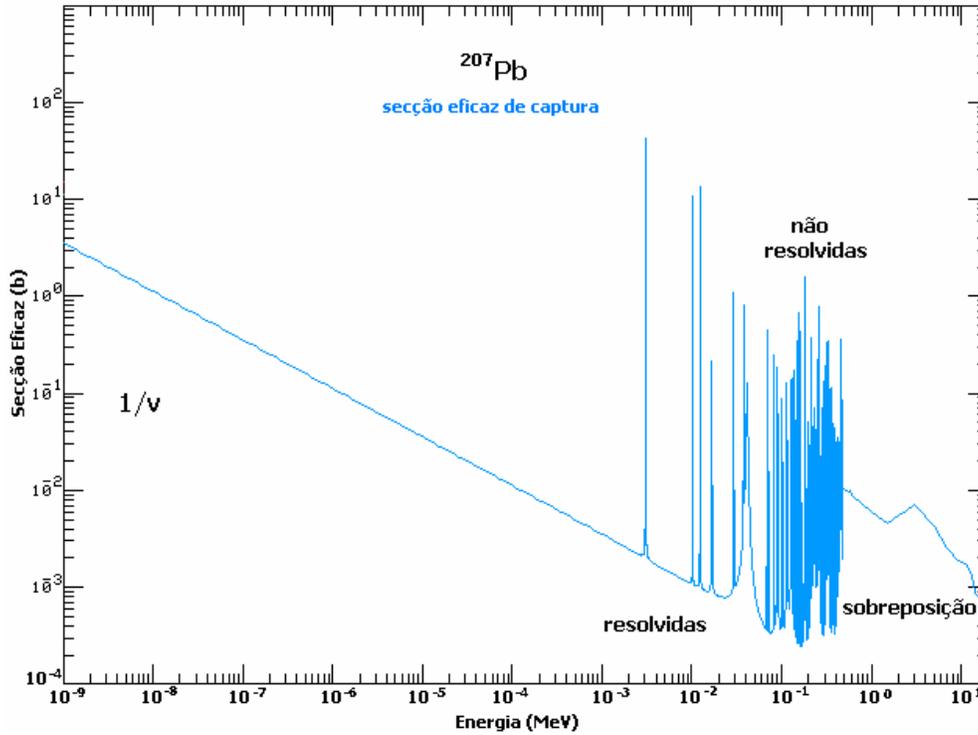


Fig. 2.1 b) – Zonas típicas do comportamento da secção eficaz de captura de um neutrão por um núcleo de ^{207}Pb com a energia do neutrão incidente [13].

Das figuras anteriores verificamos que os neutrões térmicos encontram-se na zona de comportamento $1/v$ da secção eficaz, para as reacções exotérmicas de captura neutrónica. Após esta zona aparece a região das ressonâncias resolvidas que corresponde à zona do gráfico onde as larguras dos níveis nucleares (estados excitados do núcleo composto) são inferiores à separação entre eles mas são superiores à resolução em energia do aparelho de medida. A região das ressonâncias não resolvidas corresponde à zona do gráfico onde as larguras dos níveis são inferiores à separação entre eles mas são também inferiores à resolução do aparelho de medida. Finalmente a zona das ressonâncias sobrepostas corresponde à região onde as larguras dos níveis nucleares são superiores à separação entre eles.

2.2.1 Formação do núcleo composto

Se o neutrão incidente colide com o núcleo com um parâmetro de impacto pequeno quando comparado com o raio nuclear, forma-se um estado intermédio designado por “núcleo composto”:



que tem um tempo de vida média curto e que decai de várias formas possíveis. Assume-se que a probabilidade relativa de decaimento para um dado estado final é independente da forma como se formou o núcleo composto. A probabilidade de decaimento depende unicamente da energia total fornecida ao sistema. A energia total disponível é a soma da energia cinética do neutrão incidente e do valor Q da reacção:

$$E_T = E_n + Q \quad (2.10)$$

Sendo $Q = [\text{massa}({}^A_Z) + \text{massa}(n) - \text{massa}({}^{A+1}_Z)]c^2$, este valor de Q corresponde à energia de separação S_n do neutrão do núcleo ${}^{A+1}_Z$.

Usando as leis de conservação de energia e momento linear para a reacção 2.9, verifica-se que o núcleo composto é excitado para um nível cuja energia é dada por:

$$E_{ex} = S_n + \frac{A}{A+1} E_n \quad (2.11)$$

Onde S_n é a energia de separação do neutrão no núcleo ${}^{A+1}_Z$ e E_n é a energia cinética do neutrão incidente [14].

2.2.2 Ressonâncias

A probabilidade de formação do núcleo composto é superior para certos valores de energia do neutrão incidente. Estes valores correspondem a estados quase-ligados ou estados virtuais chamados de ressonâncias [14].

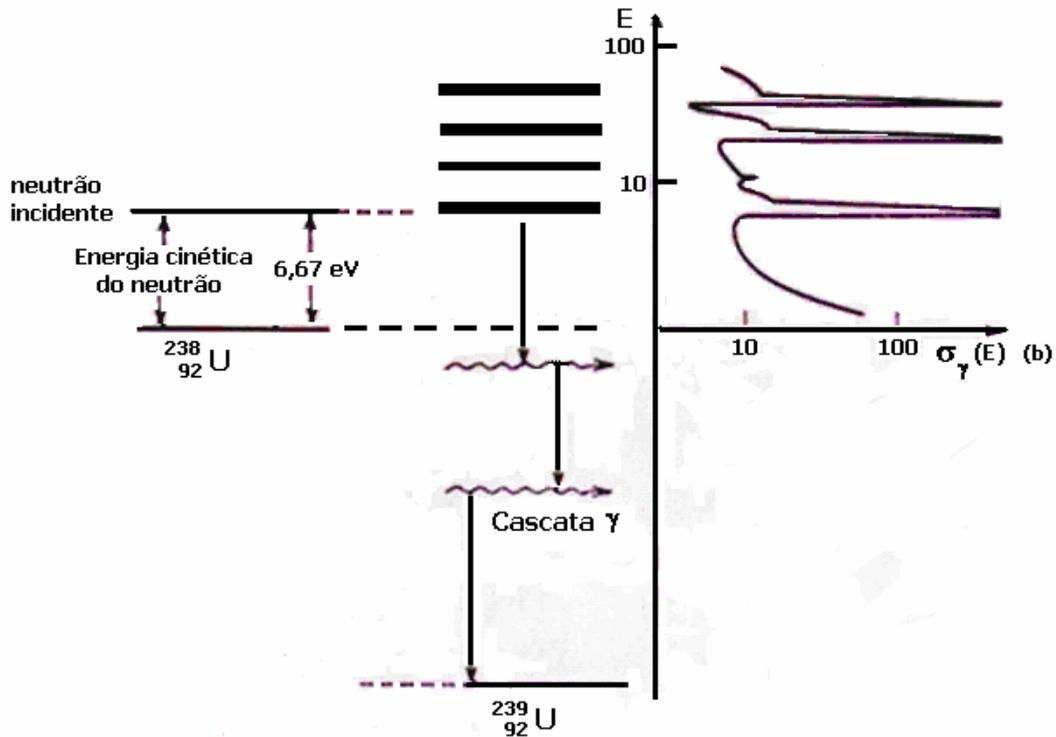


Fig. 2.2 – Diagrama de níveis de energia do ^{239}U e esquema da captura de um neutrão ($E_n = 6,67 \text{ eV}$) por um núcleo de ^{238}U .

Nas ressonâncias o núcleo composto ocupa níveis discretos de energia, estes níveis correspondem a estados excitados do núcleo que decaem rapidamente mais usualmente num de dois modos: re-ejecção da partícula incidente ou por emissão γ (ou por conversão interna mas com uma probabilidade muito inferior).

A secção eficaz total descreve a probabilidade de ocorrência do núcleo composto, a forma de uma ressonância isolada pode ser descrita matematicamente pela fórmula de *Breit-Wigner*

$$\sigma(E_n) = \frac{\pi}{k_n^2} g_n \frac{\Gamma_n \Gamma}{(E_n - E_0)^2 + \Gamma^2 / 4} \quad (2.12)$$

onde,

E_0 é a energia da ressonância,

$g_n = \frac{2J+1}{(2s+1)(2I+1)}$ é o factor de spin, sendo I o spin do núcleo alvo, J o spin do

núcleo composto e s o spin do neutrão,

$$k_n = 2.196771 \times 10^{-3} \frac{A}{A+1} \sqrt{E_n},$$

Γ é a largura total a meia altura da ressonância,

Γ_n é a largura da dispersão do neutrão e corresponde à probabilidade de re-ejectar o neutrão incidente após a formação do núcleo composto.

A largura total Γ representa a soma das larguras individuais de reacção,

$$\Gamma = \Gamma_n + \Gamma_\gamma + \Gamma_f + \Gamma_p + \dots \quad (2.13)$$

2.2.3 Captura Radiativa

A reacção de captura radiativa está representada na equação (2.6), esta reacção é caracterizada por, após a formação do núcleo composto este decair com um tempo de vida média muito curto (10^{-17} - 10^{-15} s ; larguras $\Gamma_\gamma \sim 10$ eV dependendo do tamanho do núcleo), emitindo um ou mais gamas. A forma das ressonâncias para a captura radiativa pode ser reduzida a partir da equação (2.12),

$$\sigma_\gamma(E_n) = \frac{\pi}{k_n^2} g_n \frac{\Gamma_n \Gamma_\gamma}{(E_n - E_0)^2 + \Gamma^2 / 4}. \quad (2.14)$$

Desprezando a energia de recuo do núcleo na emissão dos gamas (para a captura neutrónica radiativa é da ordem dos 100 eV, comparado com as energias dos fotões na ordem dos MeV), pode-se escrever em boa aproximação que a soma das energias dos fotões emitidos é igual à energia do estado excitado do núcleo composto dada pela equação (2.11),

$$E_{ex} = \sum_i E_{\gamma,i}. \quad (2.15)$$

O número de gamas emitidos pelo núcleo é chamado de multiplicidade da cascata. O espectro da radiação gama após o processo de captura pode ser dividido em duas componentes: a componente primária, consistindo em fotões de 5-10 MeV que provêm directamente de uma primeira desexcitação do estado de captura para um estado excitado de energia inferior, e uma componente secundária consistindo de fotões de

energias inferiores provenientes de decaimentos entre este(s) estados excitados com baixa diferença de energia.

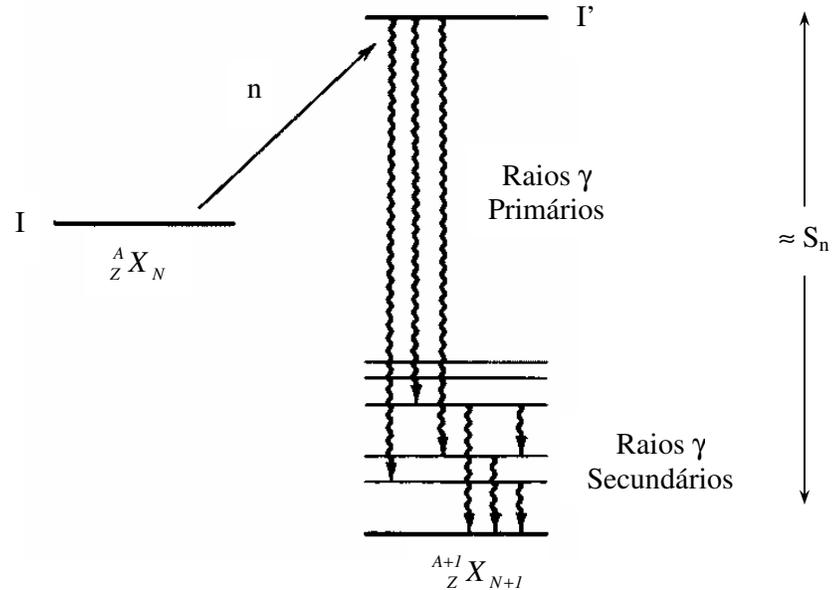


Fig. 2.3 – A captura de um neutrão por um núcleo no estado I origina um núcleo no estado I', que ao decair emite raios γ primários seguidos de raios γ secundários [7].

Existem dois modelos complementares que tratam matematicamente os estados excitados nucleares: o modelo da partícula única, em que a posição de um único nucleão na sua orbital difere no núcleo e é tratado separadamente; o modelo colectivo, onde a produção dos estados excitados é feita adicionando energia ao conjunto de nucleões, que formam rotações ou vibrações colectivas do núcleo.

As leis de conservação de paridade e momento angular total fornecem as chamadas regras de selecção para o tipo de radiação emitida nas transições nucleares. Associa-se a uma distribuição de carga ou corrente um momento multipolar electromagnético associado às características da dependência espacial do campo.

Se o spin e a paridade do núcleo alvo forem representados respectivamente por \vec{I} e π , o spin do núcleo composto é determinado pelo momento angular orbital do neutrão, \vec{l} , pelo seu spin, \vec{s} e pelo spin inicial do núcleo alvo. As leis de conservação são as seguintes, sendo \vec{J} o momento angular total ou spin do núcleo composto:

$$\vec{J} = \vec{I} + \vec{l} + \vec{s} \quad (2.16)$$

As paridades obedecem à relação,

$$\pi' = \pi(-1)^l \quad (2.17)$$

sendo π' a paridade do núcleo composto. Geralmente para neutrões incidentes com espectro térmico, os eventos de captura ocorrem com momento angular orbital l do neutrão igual a zero (ondas s).

2.2.4 Conversão Interna

Em alguns casos o núcleo excitado pode interagir directamente com os electrões atómicos, causando a emissão de um dos electrões do átomo. A transição de energia dos níveis nucleares, ΔE , aparece na forma de energia cinética do electrão emitido retirando a energia de ligação B do electrão na orbital atómica:

$$T_e = \Delta E - B \quad (2.18)$$

Após a emissão do electrão forma-se um buraco na camada atómica que é preenchido por outro electrão de uma orbital atómica exterior, com subsequente emissão de um raio-X ou de um electrão de Auger.

2.3 Fissão Nuclear

A energia de ligação por nucleão num núcleo varia com o respectivo número de massa como foi apresentado na figura 1.1.

Um núcleo pesado próximo da região do ^{238}U tem uma energia de ligação por nucleão de aproximadamente 7.6 MeV. Nesta região é energeticamente favorável, por exemplo dividir o ^{238}U em dois fragmentos de igual massa, $A = 119$, a energia de ligação por nucleão destes fragmentos seria de 8.5 MeV, originando um ganho em energia de cerca de 214 MeV. Apesar deste facto a fissão espontânea não é observada neste nuclido (a constante de decaimento parcial para a fissão permite inferir um “tempo de meia vida para a fissão” de cerca de 10^{16} anos) pois este processo é inibido pela barreira de Coulomb. A absorção de energia de activação pode induzir o processo de fissão, por exemplo um neutrão ou um fotão incidente de baixa energia.

O processo de fissão inicia-se com um estado intermédio, provavelmente um núcleo composto, seguido da divisão do núcleo em dois fragmentos com emissão de neutrões, neutrinos e gamas. A energia libertada é repartida entre a energia cinética dos

fragmentos (80%), energia cinética dos neutrões rápidos (3%), gamas (4%), neutrinos (5%) e produtos dos decaimentos subsequentes dos fragmentos.

Uma reacção de fissão induzida por um neutrão típica é a do ^{235}U que se encontra esquematizada na equação 2.19:



Para este nuclido os produtos de fissão não são univocamente determinados mas obedecem a uma distribuição que varia com a energia do neutrão incidente. Para neutrões térmicos a distribuição da fissão do ^{235}U pode ser observada na figura 2.4, os fragmentos mais prováveis não são os que originam massas iguais. Para a fissão induzida por partículas muito energéticas a distribuição das massas tende para fragmentos de massas iguais.

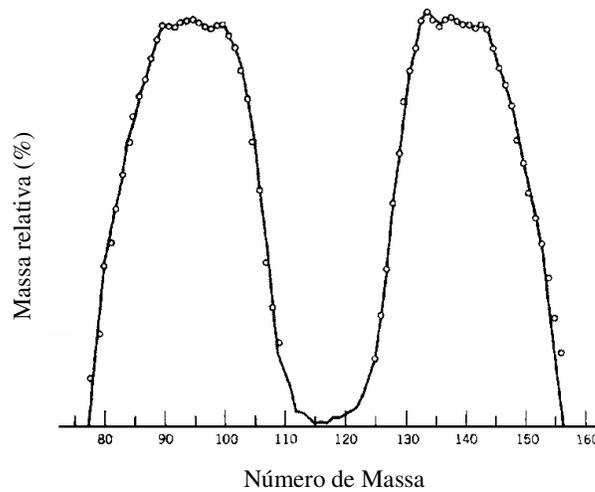


Fig. 2.4 Distribuição em massa dos fragmentos de fissão do ^{235}U induzida por neutrões térmicos [7].

A secção eficaz da fissão induzida por neutrões no ^{235}U apresenta um comportamento típico, com a região da dependência $1/v$ a baixas energias do neutrão incidente seguida da zona das resonâncias. A representação gráfica encontra-se juntamente com a representação da mesma secção eficaz para o ^{238}U na figura 2.5. Para o ^{238}U a energia de activação necessária para vencer a barreira de Coulomb suprime esta reacção para baixas energias do neutrão incidente como se pode observar na figura.

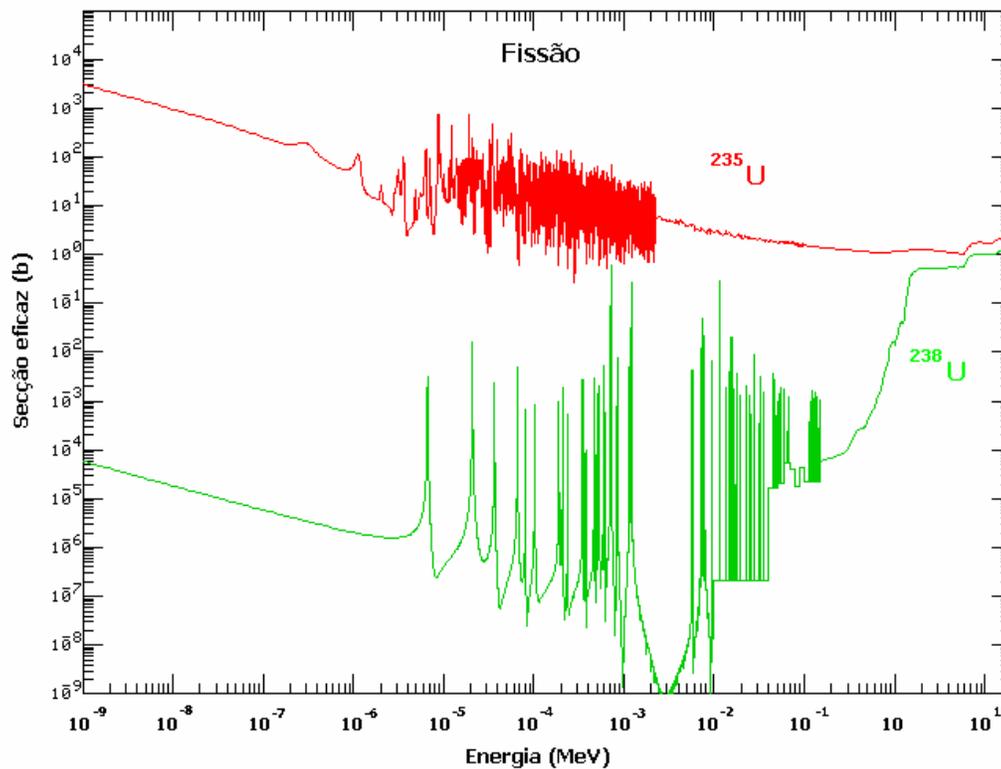


Fig. 2.5 – Seção eficaz de fissão induzida por nêutrons para os isótopos de urânio ^{235}U e ^{238}U . As escalas são logarítmicas [13].

2.4 Produção de nêutrons – Reações de espalação

Feixes de nêutrons podem ser produzidos por uma variedade de reações nucleares mas como não é possível acelerar nêutrons começa-se por nêutrons muito energéticos e reduzindo a sua energia cinética através de colisões com os núcleos do meio obtêm-se nêutrons com um espectro alargado.

Uma boa fonte de nêutrons provém das reações de espalação. As reações de espalação são induzidas por projecteis leves, prótons ou nêutrons, com energias relativistas, a colidir com um alvo pesado. Numa primeira fase o projectil incidente interage por colisões com os nucleões dos núcleos do alvo. Estas colisões originam a emissão imediata de alguns nucleões com energias cinéticas elevadas e deixam os respectivos núcleos num estado excitado. Os primeiros nucleões emitidos vão originar uma cascata intranuclear dentro do alvo. Numa segunda fase o núcleo residual irá sofrer desexcitação, através da evaporação de nêutrons ou prótons de baixa energia ou

sofrendo fissão, a evaporação de neutrões é o processo mais provável porque não é inibido pela barreira de Coulomb.

Processo de produção de neutrões por reacções de espalação

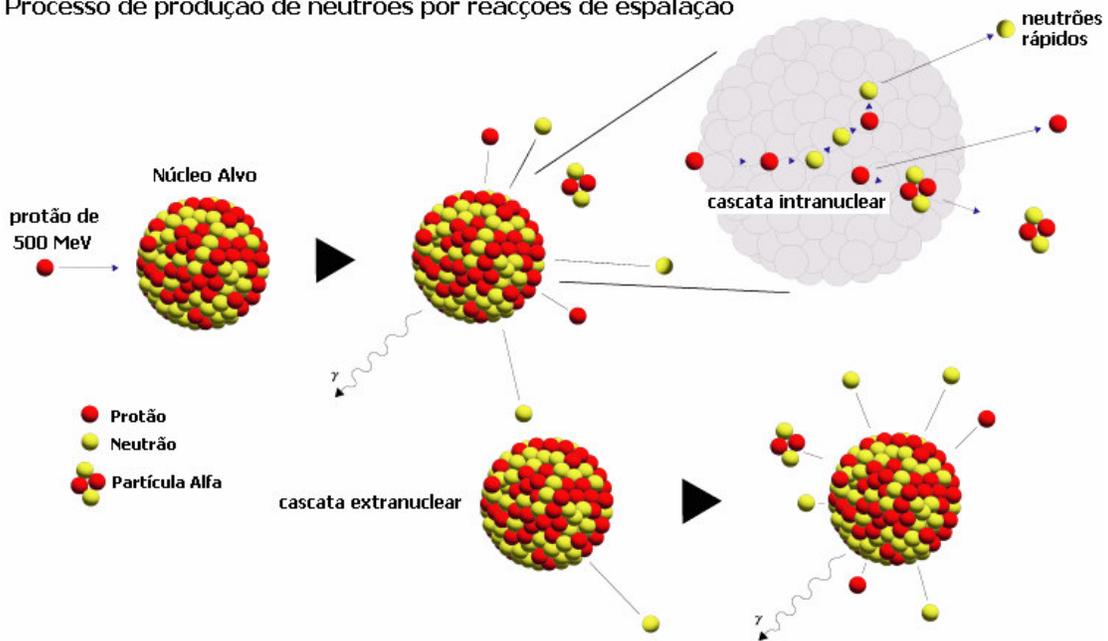


Fig. 2.6 – Esquema representativo das reacções de espalação.

As reacções de espalação não produzem apenas neutrões mas também núcleos residuais e outras partículas, sendo a activação do alvo um dos principais problemas deste processo. Adicionalmente os núcleos residuais irão contribuir para a corrosão, e danos causados pela radiação no alvo, janela do acelerador e materiais envolventes.

O número de neutrões produzidos nas reacções de espalação irá depender da combinação partícula incidente – alvo. Quanto mais massivos são os núcleos constituintes do alvo, maior será o número de neutrões produzidos. Para diferentes materiais constituintes do alvo, a multiplicidade dos neutrões (número de neutrões produzidos por cada partícula incidente) satura para uma determinada espessura deste e aumenta com a energia do projectil [10].

Os neutrões rápidos são emitidos com pequenos ângulos relativamente à direcção de incidência e representam uma primeira fase dos processos de colisão, enquanto que neutrões de energias inferiores são emitidos isotropicamente e correspondem à fase de evaporação.

Diversos resíduos são produzidos pelas reacções de espalação, produtos das fases espalação-evaporação e espalação-fissão.

2.5 Moderação de neutrões na matéria

A interacção de neutrões na matéria é feita através das suas reacções com os núcleos do meio. Para neutrões rápidos as reacções mais frequentes são a dispersão elástica e reacções do tipo (n,p), (n, α) ou (n,2n), mas para neutrões térmicos a interacção mais provável é a captura radiativa ou reacção (n, γ). As secções eficazes para este tipo de reacção apresentam uma ou mais ressonâncias. Neutrões rápidos perdem a sua energia essencialmente por colisões elásticas com os núcleos, ao fim de algumas colisões um neutrão pode-se encontrar em equilíbrio térmico com o meio material.

Se um neutrão com energia cinética inicial E_i (medida no referencial de laboratório), interage elasticamente com um núcleo de massa A que se encontra em repouso, a aplicação das leis de conservação da energia e momento linear resultam para a energia cinética do neutrão após a colisão, E_f (medida no referencial de laboratório) na seguinte expressão:

$$\frac{E_f}{E_i} = \frac{A^2 + 1 + 2A \cos \theta}{(A + 1)^2} \quad (2.20)$$

onde θ é o ângulo de dispersão no referencial centro de massa do sistema. O máximo de transferência de energia cinética obtém-se numa colisão frontal e corresponde à expressão que se segue substituindo em (2.20) $\theta = 0^\circ$:

$$\left(\frac{E_f}{E_i} \right)_{min} = \left(\frac{A - 1}{A + 1} \right)^2 \quad (2.21)$$

Para uma colisão frontal com um núcleo de hidrogénio ($A=1$), o neutrão transfere toda a sua energia cinética para o protão. Para núcleos de massas superiores, $A \gg 1$, a transferência de energia torna-se ineficiente.

A transferência de energia média por colisão do neutrão pode-se estimar definindo a quantidade “letargia”, χ :

$$\chi = \left\langle \ln \frac{E_i}{E_f} \right\rangle = \frac{\int \ln \left[\frac{(A + 1)^2}{A^2 + 2A \cos \theta + 1} \right] f(\Omega) d\Omega}{\int f(\Omega) d\Omega} \quad (2.22)$$

onde $f(\Omega)$ é a distribuição angular e $d\Omega = d\phi d\cos\theta$ é o ângulo sólido diferencial. Para uma distribuição isotrópica dos ângulos no referencial centro de massa assume-se que $f(\Omega)$ é constante, e a integração da expressão anterior no ângulo sólido resulta na equação (2.23):

$$\chi = 1 + \frac{(A-1)^2}{2A} \ln\left(\frac{A-1}{A+1}\right) \quad (2.23)$$

Em média o valor de $\ln E$ decresce em cada colisão por uma quantidade de χ . Ao fim de n colisões o decréscimo médio será de $n\chi$ e o valor médio de $\ln E$ é dado por:

$$(\ln E)_n = \ln E_0 - n\chi \quad (2.24)$$

Os neutrões durante este processo de termalização podem perder-se por captura radiativa nos núcleos do meio. A probabilidade de sofrerem captura numa colisão com um núcleo é dada pela razão das secções eficazes:

$$p = \frac{\sigma(n, \gamma)}{\sigma_{el} + \sigma(n, \gamma)} \quad (2.25)$$

onde $\sigma(n, \gamma)$ e σ_{el} são as secções eficazes de captura radiativa e de dispersão elástica respectivamente [15].

A tabela 2.2 apresenta os valores do número de colisões necessárias para que um neutrão de 2 MeV atinja o equilíbrio térmico em diferentes meios, reduzindo assim a sua energia cinética para 0,025 eV.

Material	Número de colisões
1_1H	18
H_2O	20
2_1H	25
D_2O	36
4_2He	43
${}^{12}_6C$	115
${}^{238}_{92}U$	2166

Tabela 2.2 – Valores do número de colisões necessárias para termalizar um neutrão de 2 MeV em vários materiais.

2.6 Detectores de neutrões

Os neutrões na sua passagem pela matéria não produzem ionização directa, e portanto os detectores de neutrões terão que se basear na detecção de processos secundários resultantes de reacções nucleares do tipo (n,p), (n, α), (n, γ) e (n,fissão), ou através da dispersão nuclear de “alvos” leves, que são posteriormente detectados (por exemplo protões de recuo). Os neutrões são geralmente termalizados primeiro e então observada a sua absorção. Algumas reacções de absorção mais comuns estão listadas na tabela 2.3.

Reacção	Secção-eficaz	Tipo de detector
$n + {}^3\text{He} \rightarrow p + {}^3\text{H}$	$5.33 \times 10^3 \text{ b}$	Câmaras proporcionais de ${}^3\text{He}$
$n + {}^6\text{Li} \rightarrow {}^3\text{H} + {}^4\text{He}$	$9.42 \times 10^2 \text{ b}$	Cintiladores dopados com ${}^6\text{Li}$
$n + {}^{10}\text{B} \rightarrow {}^4\text{He} + {}^7\text{Li}$	$3.8 \times 10^3 \text{ b}$	Câmaras proporcionais de BF_3
$n + {}^{157}\text{Gd} \rightarrow \gamma\gamma + {}^{158}\text{Gd}$	$2.55 \times 10^5 \text{ b}$	Cintiladores dopados com Gadolinium

Tabela 2.3 – Tipos de detectores de neutrões.

A título de exemplo, o actual dosímetro pessoal utilizado no CERN, possui para medir a dose devida a neutrões um dispositivo de pistas de estado sólido denominado Neutrak (Solid State Neutron Track Dosimeter - SSNTD). Este dosímetro destina-se a determinar a dose produzida por neutrões rápidos; com energias compreendidas entre os 0.1 MeV e os 20 MeV. O material do detector é o carbonato de polialildiglicol (PADC ou CR-39). Este detector é sensível a neutrões de energia superior a 150 keV, mas pode-se alargar o domínio de funcionamento para a detecção de neutrões térmicos colocando uma “janela” de poliamida ou de boro em contacto com o detector.

Quando os neutrões rápidos incidem no dosímetro, interagem por dispersão elástica com os átomos de hidrogénio do polietileno, produzindo protões de recuo. Os neutrões térmicos interagem com os átomos de azoto da janela de poliamida, produzindo protões de 0,6 MeV. Os protões resultantes em ambos os processos vão danificar a superfície do detector, que, depois de tratada por um processo de gravura electroquímica, que remove as partes danificadas, revela uma superfície perfurada nos

locais de interacção. Estas pistas na superfície são visíveis para uma ampliação de 40:1, e a dose equivalente é calculada a partir da sua contagem, efectuada através de um procedimento automático com um analisador de imagem.

O detector pode incluir uma camada de revestimento plástico para evitar danos provocados por alfas provenientes do decaimento do radão ou núcleos filhos do radão. Como os SSNTDs não são sensíveis a fotões ou não mostram problemas com o desvanecimento das pistas, podem ser utilizados durante períodos superiores a 3 meses.

Um código de buracos no detector pode ser introduzido para permitir identificar o utilizador do dosímetro [16,17].

Capítulo 3

O “setup” experimental n_TOF

O espectrómetro TOF (“Time Of Flight”^{***}) no CERN permite, utilizando a técnica do tempo de voo de neutrões combinada a uma excelente resolução na energia, a determinação com grande precisão (3-5% de incerteza) das secções eficazes de reacções induzidas por neutrões em amostras, no intervalo de energias entre 1 eV e 250 MeV.

Os neutrões são produzidos por reacções nucleares de espalação de protões de momento 20 GeV/c incidentes num alvo de chumbo (o alvo de espalação). Os neutrões produzidos no alvo viajam no interior de um tubo de feixe de neutrões de 185 m de comprimento até à área experimental onde incidem numa amostra de material cujas secções eficazes se pretendem determinar. A energia cinética dos neutrões incidentes na amostra obtém-se utilizando a técnica de tempo de voo. O fluxo de neutrões obtido na área experimental é da ordem de 10^6 neutrões/cm² por cada impulso de 7×10^{12} protões [18,19].

3.1 Feixe de Protões

O feixe de protões é fornecido pelo acelerador PS (“Proton Synchrotron”) do CERN. O PS tem a capacidade de fornecer até quatro impulsos com uma duração temporal de 7 ns (ver figura 3.1) e uma intensidade entre 4×10^{12} e 7×10^{12} protões por impulso, separados no tempo por 1.2 s. O conjunto de 4 impulsos é designado de super-ciclo.

^{***} Tempo de voo

O PS fornece prótons para várias experiências a decorrer em simultâneo no CERN. A disponibilidade de prótons prevista para as experiências a decorrer no espectrómetro TOF durante o período de 2008-2010 será de aproximadamente 1.5×10^{19} prótons por ano [2].

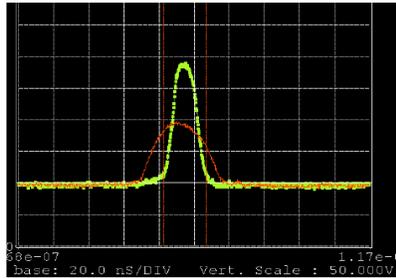


Fig. 3.1 – Sinal correspondente a um impulso de prótons incidentes no alvo de chumbo (verde). Escala horizontal: 20 ns/divisão [19].

O feixe de prótons incide com um ângulo de 10° relativamente ao plano definido pela superfície do alvo de chumbo e tubo de feixe de neutrões. Este ângulo permite que uma boa parte dos fotões e partículas carregadas criadas preponderantemente na zona da frente (a pequenos ângulos relativamente à direcção de incidência do feixe) durante as reacções nucleares de espalação no alvo sejam absorvidas pelo material de blindagem em torno do alvo e não alcancem a área experimental.

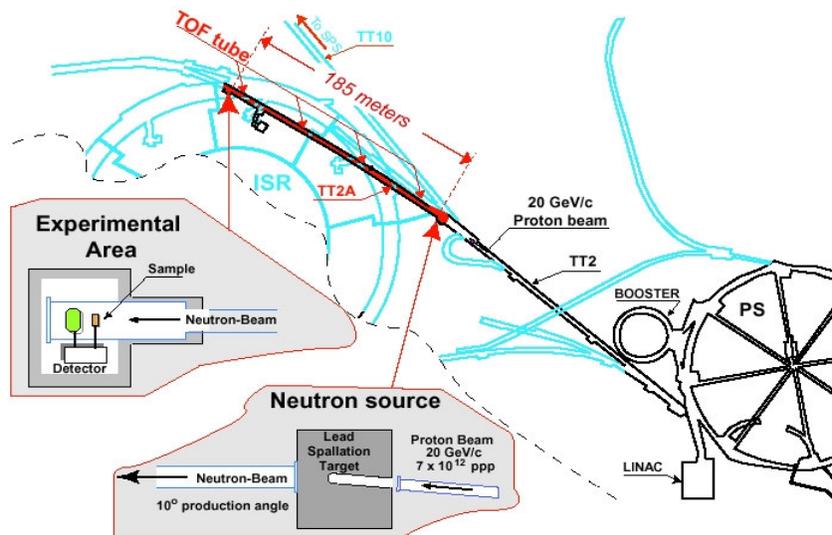


Fig. 3.2 – O dispositivo n_TOF no CERN.

O feixe de prótons incide num alvo de chumbo provocando reacções de espalação, os neutrões produzidos viajam uma distância de 185 m até à área experimental [19].

3.2 Alvo de Espalação

O alvo de espalação consiste de um bloco de chumbo puro com dimensões de $80 \times 80 \times 60 \text{ cm}^3$ (60 cm profundidade). O alvo é suportado por uma estrutura em aço inoxidável e imerso num contentor cheio de água, sendo que a espessura de água na direcção do feixe de neutrões à saída do alvo é de 5 cm. A água tem a função de meio refrigerador mas funciona também como moderador dos neutrões produzidos nas reacções de espalação. Sem este sistema de refrigeração o alvo atingiria uma temperatura de 180°C .

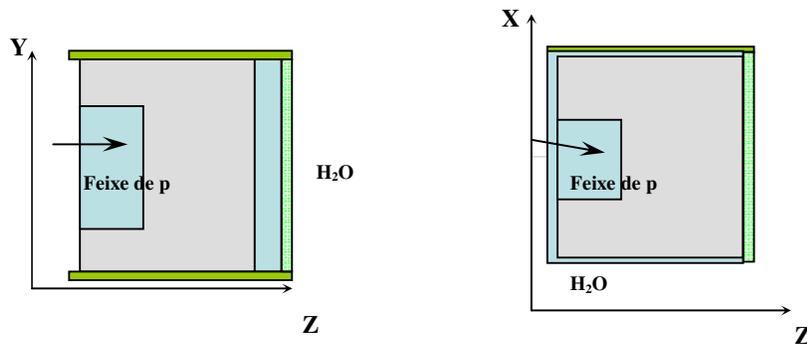


Fig. 3.3 – Alvo de espalação: vista de lado (esquerda) e de topo (direita).

Uma janela de liga de alumínio de 1,6 mm de espessura e 80 cm de diâmetro forma a interface entre o tanque de água e o vácuo no interior do tubo de feixe de neutrões. A liga de alumínio apresenta uma boa estabilidade mecânica que não é afectada pela radiação a que está sujeita. O tubo de feixe de neutrões é adjacente à face do alvo de espalação que é oposta à face onde incide o feixe de prótons, após o moderador (água) e tem (na zona imediatamente adjacente ao alvo) 80 cm de diâmetro.

A protecção à volta do alvo é dividida em duas partes, uma parte fixa e uma parte móvel. A parte fixa é parcialmente feita de mármore e cobre essencialmente os volumes que envolvem o feixe de prótons incidente e o feixe de neutrões à saída. A restante parte fixa, chão, colunas e tecto é constituída por betão dopado com 1% de boro. A parte móvel é constituída por blocos de betão “standard” (80 cm de espessura) seguida por blocos de betão dopados com boro (40 cm de espessura).

3.3 O tubo de feixe de neutrões n_TOF

O tubo horizontal de feixe de neutrões começa directamente após a janela de alumínio e termina onde o chão inclinado do túnel TT2A (1.18% de gradiente) o intersecta a cerca de 200 m do alvo. O tubo é constituído por quatro sectores diferentes, o primeiro sector que se estende por cerca de 70 metros de comprimento tem 80 cm de diâmetro e é constituído de liga de alumínio. Segue-se-lhe o segundo sector com cerca de 65 metros de comprimento e 60 cm de diâmetro, de aço inoxidável. O terceiro sector com cerca de 45 metros de comprimento tem 40 cm de diâmetro e é de aço inoxidável. Finalmente, o último sector até à área experimental tem cerca de 20 cm de diâmetro. A pressão no interior do tubo de vácuo é de aproximadamente 10^{-2} mbar.

Dois colimadores funcionam associados ao tubo de feixe de neutrões para determinar as dimensões transversais do mesmo na área experimental. O primeiro colimador está colocado a 136,7 m do alvo de espalação. O seu diâmetro é de 11,5 cm e é constituído por 1 m de ferro e 1 m de cimento. O segundo colimador está colocado a 178 m do alvo de espalação, o seu diâmetro é de 1,8 cm e é constituído por 50 cm de polietileno dopado com 5% boro, 125 cm de ferro e 75 cm de polietileno dopado com boro.

Um dipolo de varrimento^{†††} com 2 m de comprimento está localizado a 145 m do alvo de espalação e é usado para deflectir do feixe de neutrões, as partículas carregadas que viajam no interior do tubo de feixe.

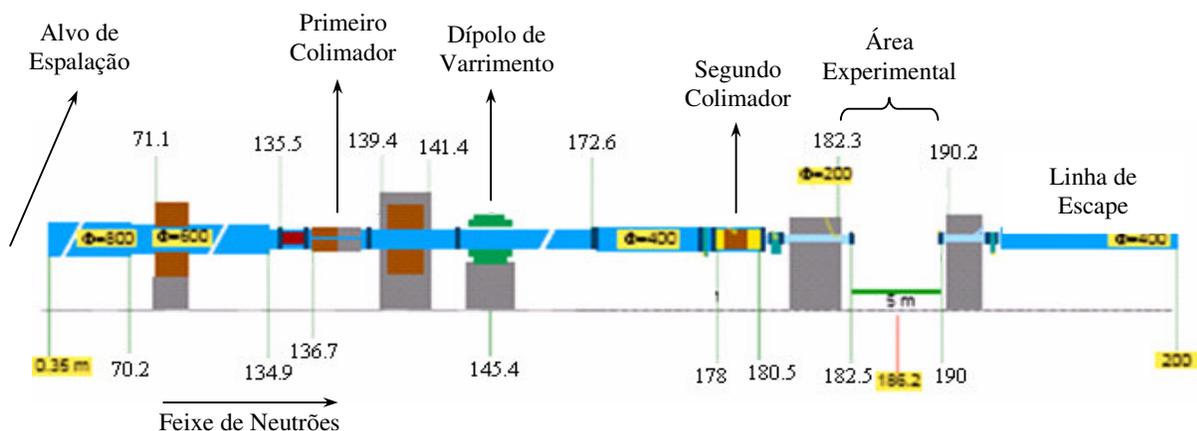


Fig. 3.4 – Esquema do tubo de feixe de neutrões, colimadores e área experimental. Os diâmetros do tubo; Φ estão expressos em milímetros e o comprimento do tubo está expresso em metros.

^{†††} “sweeping magnet”

Após as medidas executadas em Junho de 2001 um ruído de fundo elevado foi medido na área experimental de n_TOF, levando à implementação de uma blindagem adicional de 3m de espessura de ferro entre o dipolo de varrimento e o segundo colimador.

3.4 Área Experimental

Na área experimental (EAR-1), que se inicia a cerca de 185 metros a jusante do alvo de espalção estão situados os seguintes detectores:

- Monitores de Fluxo – estes 4 detectores de Silício permitem determinar as características (dimensões transversais) do feixe de neutrões e estudar a estabilidade temporal da intensidade do feixe na área experimental;
- Calorímetro de Absorção Total (TAC) - este detector é constituído por 40 cristais de BaF₂ e combina uma grande eficiência de detecção (95% para eventos reais de captura), uma boa resolução em energia e uma boa resolução temporal. Colocado em torno da amostra, este detector permite registar as interacções entre os neutrões incidentes e os átomos da amostra. A descrição detalhada das suas características de funcionamento é efectuada no próximo capítulo.

A linha de escape de neutrões, situada após a área experimental tem o papel importante de evitar a retrodispersão de neutrões para a área experimental.

3.5 Monitor de Fluxo

A monitorização do fluxo de neutrões durante as medidas em n_TOF é feita recorrendo a 4 detectores de silício. Os detectores estão colocados em torno de uma fina amostra de 6 cm de diâmetro de ⁶Li puro, que intersecta o feixe de neutrões. Toda o sistema está contida numa câmara de vácuo de fibra de carbono junto à área experimental. O dispositivo está construído de modo a perturbar o mínimo possível o fluxo de neutrões incidente na amostra.

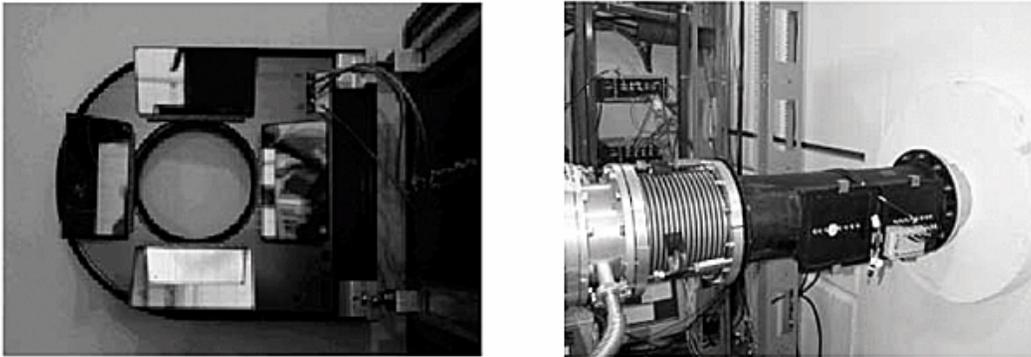


Fig. 3.5 – Esquerda: Os detectores de silício. Direita: Vista da entrada do tubo de feixe, onde o monitor de fluxo foi montado [20].

Os detectores de silício medem a energia depositada pelos produtos de reacção de neutrões com o lítio, ${}^6\text{Li} (n,\alpha) {}^3\text{H}$. Os sinais correspondentes à energia depositada nos detectores pelos trítios e partículas alfa encontra-se representado na Figura 3.6

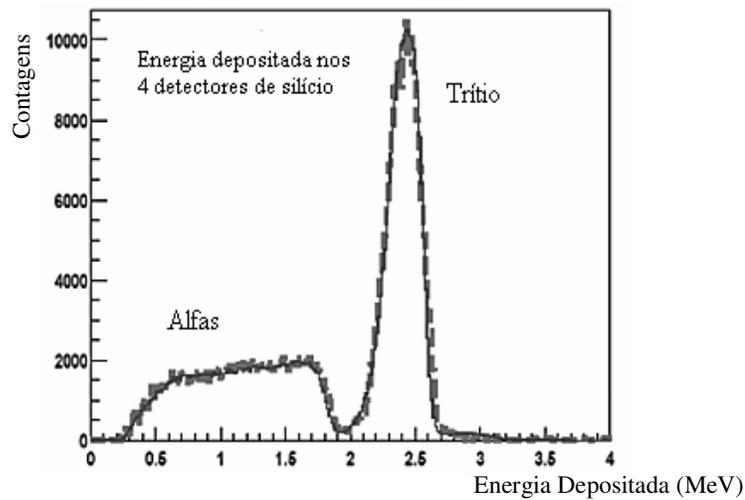


Fig. 3.6 – Energia depositada pelos produtos de reacção ${}^6\text{Li} (n,\alpha) {}^3\text{H}$ nos detectores de silício, para neutrões com energia compreendida entre 1 eV e 100 keV [20].

3.6 Micromegas – determinação das características do feixe

Para a determinação da posição e dimensões do feixe de neutrões em função da energia foi utilizado um detector Micromegas na área experimental. Este consiste de

uma câmara de ionização com uma amostra de filme fino de ${}^6\text{LiF}$ depositada numa folha de alumínio.

Para a determinação da posição e forma do feixe é usado um detector de pistas (“track-etch”) de estado sólido. O material do detector é o CR-39.

As medidas da distribuição espacial do feixe são obtidas por dois métodos diferentes: para neutrões térmicos através da reacção ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ no detector Micromegas ou através da reacção ${}^{10}\text{B}(n,\alpha){}^7\text{Li}$ no detector de pistas CR-39; para neutrões mais energéticos através das suas reacções de dispersão elástica com os núcleos de hidrogénio do gás da câmara (Ar + isobutano ou He + isobutano).

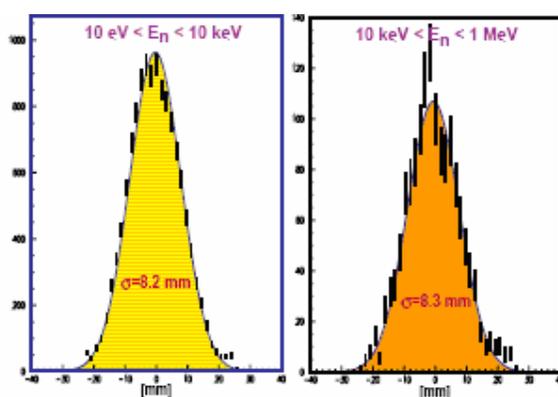


Fig. 3.7 Projecções verticais da fluência de neutrões para dois intervalos de energia dos neutrões medidas com o detector Micromegas [20].

Tal como se pode ver na Figura 3.7, a distribuição espacial do feixe de neutrões, determinada utilizando o detector Micromegas, apresenta uma forma Gaussiana com desvio padrão $\sigma = 8.2$ mm para neutrões no intervalo de energia 10 eV a 10 keV e um desvio padrão $\sigma = 8.3$ mm para neutrões no intervalo de energia 10 keV a 1 MeV,.

3.7 Fluxo de Neutrões

Em média, várias centenas de neutrões são produzidos por cada protão incidente no alvo de espalção. Após o sistema de colimação o fluxo de neutrões medido na área experimental a 185 m do alvo é da ordem de 10^6 neutrões/cm² por cada impulso de 7×10^{12} protões. A figura 3.8 mostra a fluência em energia dos neutrões do feixe incidente na área experimental.

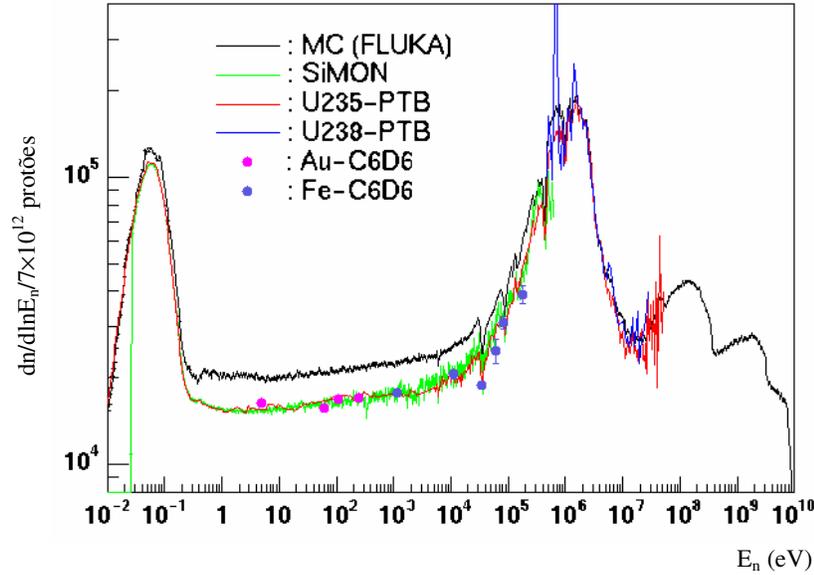


Fig. 3.8 – Distribuição da energia dos neutrões do feixe incidente na área experimental obtida através de simulações Monte Carlo e medidas utilizando diversos detectores [21].

A distribuição do fluxo de neutrões a baixas energias é característica dos neutrões térmicos, com um pico a cerca de 0.25×10^{-2} eV. Este comportamento corresponde aos neutrões que são térmalizados nos 5 cm de água após o alvo de chumbo. A distribuição do fluxo de neutrões na gama dos MeV deve-se aos processos de espalação e a reacções do tipo (n,xn) no alvo, com um pico a aproximadamente 3-4 MeV.

3.8 Fluxos de fótons, prótons, mesões, múons e electrões

O feixe de prótons de momento 20 GeV/c origina, ao interagir com o alvo de chumbo, outras partículas carregadas ou neutras, além de neutrões. São produzidos fótons que se podem separar em dois grupos distintos: “rápidos”, que resultam do processo de espalação no alvo, com tempos de chegada à área experimental inferiores a $1 \mu\text{s}$ ($t < 1 \mu\text{s}$) após a sua produção no alvo de espalação; e “lentos”, resultantes essencialmente da captura neutrónica no moderador (40% devido à captura no ^1H , com um fóton de energia 2.2 MeV) e no alvo de chumbo (5%, 7 MeV), com tempos de chegada à área experimental compreendidos entre $t > 1 \mu\text{s}$ a $100 \mu\text{s}$. A simulação Monte Carlo da distribuição em energia dos fótons produzidos nas diversas reacções encontra-

se representada na Figura 3.9. A correspondente distribuição em tempo de chegada ao detector (após o instante de incidência do feixe de prótons no alvo) encontra-se representada na Figura 3.10

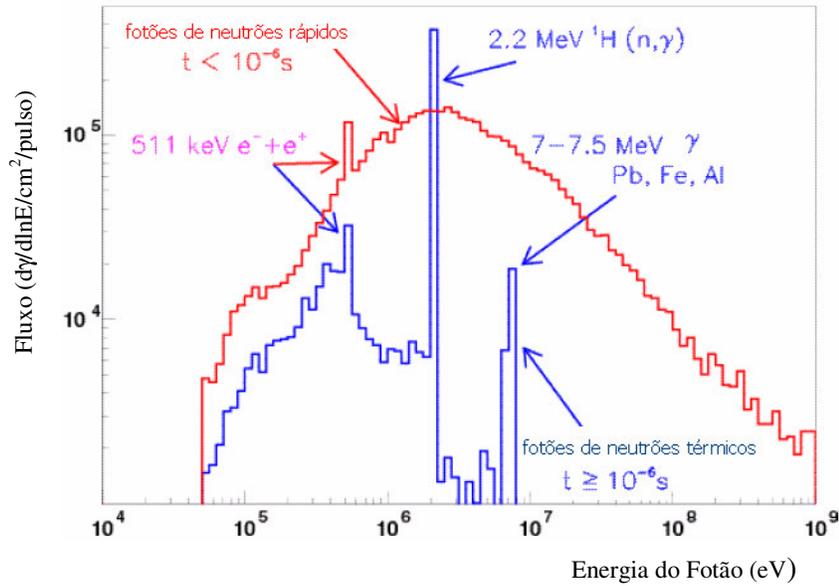


Fig. 3.9 – Distribuição em energia dos fotões na zona experimental obtida por simulação Monte Carlo [21].

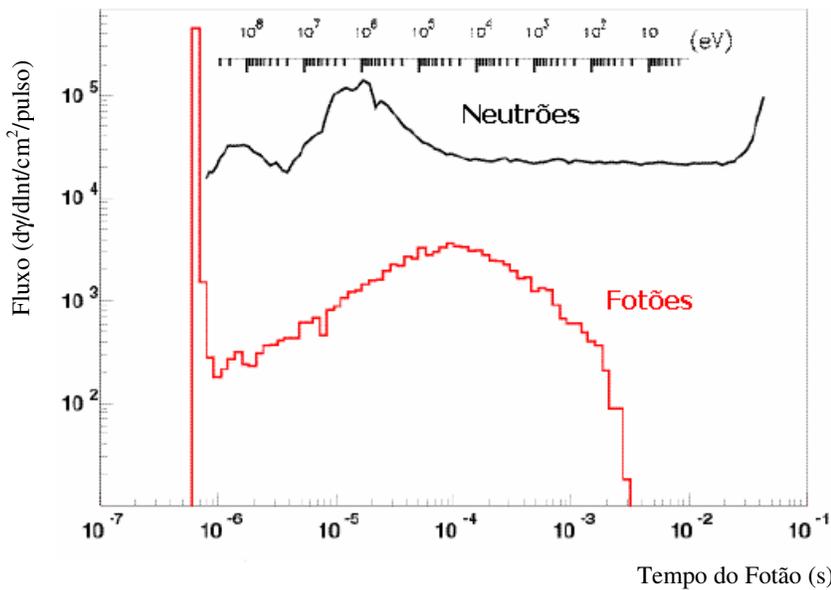


Fig. 3.10 – Distribuição dos fotões em função do seu tempo de chegada a 200 m do alvo de chumbo obtida por simulação Monte Carlo [21].

Os fótons ditos “rápidos” são produzidos a pequeno ângulo relativamente à direcção de incidência do feixe de prótons, mas devido ao ângulo de 10° que este último forma com a linha de feixe de neutrões, o fluxo de fótons que viajam no interior do tubo de feixe de neutrões e alcançam a área experimental é drasticamente reduzido. Estes fótons chegam à área experimental 616 ns após o feixe de prótons atingir o alvo, bastante antes da chegada dos neutrões mais rápidos e portanto não interferem directamente com as medidas de secções eficazes. A este fenómeno dá-se o nome de “gamma flash”.

Os fótons que provêm da captura neutrónica são emitidos isotropicamente e aqueles que chegam à zona experimental têm um pico largo centrado em 10^{-4} s. Irão desta forma sobrepor-se aos neutrões de 20 keV e causar efeitos de pileup que não podem ser ignorados.

Partículas carregadas tal como piões e kaões são produzidas durante as reacções de espalação no alvo de chumbo de n_TOF, dando posteriormente origem a muões por decaimento semi-leptónico.

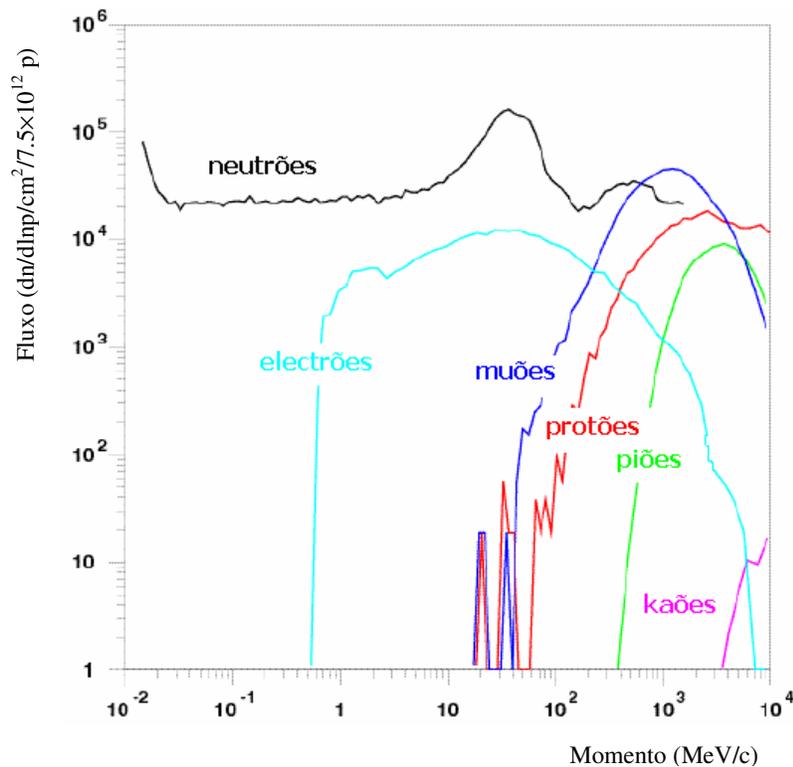


Fig. 3.11 – Fluxo de partículas secundárias carregadas produzidas pelo processo de espalação ou resultantes do decaimento semi-leptónico de mesões em função do seu momento linear, obtido através de simulação Monte Carlo [21].

Cerca de 63,5% dos kaões decaem em vôo em muões com um percurso médio de $\gamma\tau^{***} = 3.7$ m e os restantes 36.5% decaem em piões, sendo que estes últimos decaem 100% em muões com um percurso médio de $\gamma\tau = 7.8$ m. Estes muões são deflectidos pelo dipolo de varrimento a cerca de 145 metros do alvo e/ou absorvidos na blindagem de vários metros de espessura de ferro, instalada no túnel depois do dipolo de varrimento.

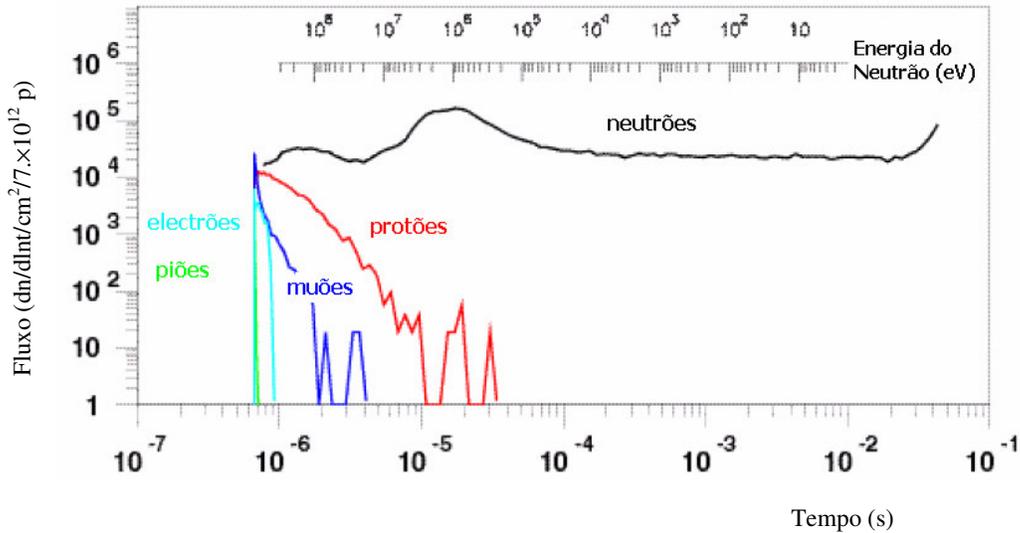


Fig. 3.12 – Fluxos de partículas secundárias carregadas produzidas pelo processo de espalação no alvo de chumbo ou resultantes do decaimento semi-leptónico de mesões em função do seu tempo de chegada a 200 m obtidos por simulação. Também se pode observar a energia do neutrão [21].

3.9 Resolução em energia (dos neutrões) do espectrómetro

Ao efectuar medições de secções eficazes de reacções induzidas por neutrões utilizando a técnica do tempo de vôo [22], a energia cinética E_n do neutrão é habitualmente determinada através da sua velocidade, medindo o tempo t que o neutrão levou a percorrer uma distância conhecida L entre dois pontos, pela seguinte relação:

$$E_n = \frac{1}{2} m_n \frac{L^2}{t^2} \quad (3.1)$$

*** $\gamma = \frac{1}{\sqrt{1-\beta^2}}$ (adimensional).

$\beta = v/c$ - razão entre a velocidade da partícula e a velocidade da luz (adimensional).
 τ - o tempo de vida média da partícula no referencial próprio.

O comprimento efectivo percorrido pelo neutrão é a soma do caminho geométrico, definido como a distância entre o ponto de produção do neutrão no alvo (que não é conhecido exactamente) e o ponto onde interacciona com a amostra, e a “distância de moderação”, que é a distância efectiva percorrida pelo neutrão durante o processo de moderação (no alvo de chumbo e na água constituinte do meio de refrigeração). Este processo é de natureza estocástica e introduz uma incerteza associada no tempo que um neutrão de uma certa energia leva a percorrer a distância geométrica entre o alvo e a amostra. Ao derivar a expressão (3.1) obtém-se:

$$\frac{\Delta E_n^2}{E_n^2} = 4 \frac{\Delta L^2}{L^2} + 4 \frac{\Delta t^2}{t^2} \quad (3.2)$$

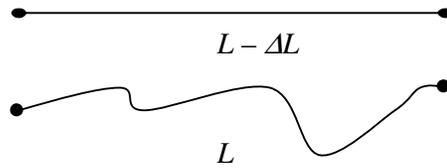


Fig. 3.13 – Distância efectiva L e distância geométrica $L - \Delta L$.

Em n-TOF, a exactidão das medições planeadas ou já efectuadas de secções eficazes de reacções induzidas por neutrões em função da energia do neutrão depende fortemente da correcta determinação da energia do neutrão, reconstruída através do tempo de vôo medido. O valor da energia do neutrão E_n (em unidades eV) pode ser determinado pela distância efectiva L (em metros) e pelo tempo t (em μ s) levado para a percorrer através da equação (3.3):

$$E_n = \left(\frac{72.2977 L}{t} \right)^2. \quad (3.3)$$

A distância efectiva de vôo do neutrão é a soma da distância geométrica, definida como a distância entre a face exterior do moderador e a amostra que se pretende medir, adicionada a uma “distância de moderação”, que é a distância percorrida pelo neutrão durante o processo de moderação no interior do alvo de espalação e na água de refrigeração. Um valor médio pode ser determinado através de simulações Monte Carlo detalhadas dos processos de espalação e moderação, obtendo-se uma distribuição de distâncias efectivas para diferentes energias do neutrão. Para energias superiores a alguns keV, correcções relativistas têm de ser usadas.

O tempo de voo medido é obtido tomando como referência o instante de tempo correspondente à incidência do feixe de prótons no alvo (que é conhecido com grande precisão) e no sinal de referência que provém do “flash” de fótons ao atingirem a área experimental, cerca de 616 ns mais tarde.

A distância efectiva L pode então ser definida como a soma de um termo fixo L_0 , que representa a distância geométrica e um termo da distância de moderação independente da energia, com um termo ΔL dependente da energia e correspondente à distância de moderação. O termo ΔL aumenta com a energia do neutrão até valores da ordem das centenas de keV, começando para energias superiores a decrescer devido à menor importância do processo de moderação para neutrões de energias elevadas. Esta distância pode ser da ordem de apenas alguns centímetros para neutrões de baixas energias ou pode atingir 50 cm para energias superiores. A dependência do termo ΔL com a energia foi obtida através de simulações Monte Carlo, tendo-se obtido a seguinte parametrização:

$$\Delta L = (0.094 \pm 0.018)\sqrt{E} \quad (3.4)$$

Um processo iterativo é usado para calcular a energia do neutrão através do tempo de voo medido. Primeiro aplicando a equação (3.1) usando L_0 e calcular a energia aproximada do neutrão, então ΔL é calculado usando a equação (3.4). Finalmente a distância efectiva total do percurso é calculada através de:

$$L = L_0 + \Delta L \quad (3.5)$$

e a energia do neutrão determinada utilizando a equação (3.3).

3.10 Ruído de Fundo durante as medidas

Existem diversas fontes de ruído de fundo que podem afectar as medições de secções eficazes de captura neutrónica e reacções de fissão induzidas por neutrões em n_TOF, sendo de realçar as seguintes [23]:

- a) Os neutrões que chegam à amostra após interacções com os materiais constituintes do túnel (tubo de feixe, colimadores, paredes...). A relação tempo-energia do feixe de neutrões não pode ser correctamente aplicada a estes neutrões. A energia incorrectamente determinada a partir do tempo de voo medido irá introduzir uma incerteza nas medições efectuadas.

- b) Os neutrões que chegam ao detector por dispersão na amostra ou nos materiais constituintes do tubo de feixe, no dispositivo porta-amostra, nas paredes, etc.)
- c) Os fotões que viajam no interior do tubo de feixe de neutrões e interagem com a amostra por dispersão de Compton.
- d) Os fotões que são directamente produzidos no alvo de chumbo e materiais circundantes e que podem atingir o detector ou criar novas partículas nas suas interacções com os materiais do túnel e gerar sinais no detector.

As contribuições b) c) e d) originam sinais no detector que podem ser confundidos com sinais correspondentes a fotões provenientes de reacções de captura neutrónica na amostra.

Outras fontes de ruído de fundo podem ser identificadas, tais como:

- As partículas secundárias produzidas após as interacções das partículas carregadas (produzidas no alvo de espalação) com os materiais do túnel.
- Existe também ruído de fundo produzido pelos neutrões que chegam ao fim do tubo de feixe e sofrem retrodispersão.

O dispositivo porta-amostras usado em 2004 constituído por um invólucro de titânio introduziu uma fonte de ruído de fundo que perturbou significativamente as medições efectuadas. A amostra encontrava-se no interior do invólucro de titânio, entre duas lâminas de kapton, todo este dispositivo estava rodeado de ar. O tamanho de uma amostra de um actínideo é tipicamente inferior quando comparado com o porta amostras de titânio, introduzindo um efeito de dispersão de neutrões no porta-amostras não negligível. Para além do efeito da dispersão, o titânio (natural) constituinte do porta-amostras possui uma elevada secção eficaz de captura para neutrões incidentes com energias na gama das dezenas de keV, e uma cascata de fotões resultantes que exhibe dois picos a 6 e 8 MeV e que mascaram as secções eficazes de captura na amostra nessa ordem de energias.

Para energias entre algumas centenas de keV e 1 MeV, os recúos produzidos pelos neutrões e reacções neutrónicas inelásticas ocorridas nas amostras são os principais responsáveis pelo ruído de fundo. No entanto é bem conhecido que os recúos produzidos pelos neutrões produzem menos luz de cintilação que electrões ou fotões pelo que a influência desta fonte de ruído de fundo pode ser considerada desprezável escolhendo um valor adequado para o mínimo de energia depositada no detector.

Nas medições das secções eficazes de captura neutrónica de actínideos, existem dificuldades adicionais, pois há um significativo ruído de fundo devido à actividade da

amostra. A mitigação desta contribuição é efectuada, tal como explicado no próximo capítulo através da colocação em torno da amostra, de um casco esférica absorvedora, através de cortes em energia total depositada no calorímetro e pela análise da forma dos impulsos reconstruídos.

3.11 Sistema de Aquisição de Dados (“DAQ”^{§§§})

Considerando o elevado fluxo instantâneo de neutrões e o espectro em energia que se estende desde cerca de 1 eV até 1 MeV, o sistema de aquisição de dados não deve exibir tempo morto e deve ser capaz de processar e registar todas os sinais registados nos detectores e evitar que se verifique a sobreposição^{****} de sinais correspondentes a diferentes interacções. O sistema de aquisição de dados é baseado em flash-ADCs^{†††} (FADC) de 8 bits. O sinal analógico produzido em cada canal de um dado detector é digitizado por uma FADC com uma frequência de amostragem até 2 GHz. Os sinais digitais à saída de cada conversor analógico-digital de 8 bits são armazenados num “buffer” de 8 Mbyte de memória. Esta capacidade máxima de armazenamento introduz como limitação que para as frequências de amostragem mais elevadas só se efectue a aquisição de sinais durante cerca de 16 milisegundos (correspondentes a energias de neutrões de cerca de 0.7 eV) após o pulso de prótons no alvo (sinal de “pick-up”). Durante este intervalo de tempo, os sinais dos diversos detectores (MicroMegs, monitores de Silício, os detectores PPAC^{††††} associados às medidas de fissão induzida por neutrões e que constam de um conjunto de câmaras de avalanche de placas paralelas com 50 canais, e o calorímetro de absorção total (TAC) com 40 canais para medidas de reacção de captura neutrónica) são digitizados nas FADCs e os dados resultantes de cada interacção (evento) são registados sequencialmente em ficheiros de dados num PC. Os ficheiros de dados brutos são transferidos via GigaBit Ethernet e temporariamente armazenados num disco de um servidor dedicado ao sistema de aquisição de dados, sendo posteriormente transferidos para um segundo servidor via GigaBit Ethernet e gravados em suporte magnético (cassetes) apropriado para posterior acesso público e análise.

§§§ “Data Acquisition System”

**** “pile-up”

††† ADC – Analog to Digital Converter

†††† “Parallel Plate Avalanche Chambers”

Este procedimento produz uma quantidade considerável de dados que terão que ser reduzidos posteriormente. Um algoritmo de tipo “zero suppression” selecciona ao nível da electrónica, os sinais acima de um limiar previamente seleccionado na Flash-ADC. Dependendo do tipo de detector e de evento este procedimento reduz a quantidade de dados por um factor que vai entre o 2 e o 1000. Algoritmos de compressão são também usados pelos PCs de leitura.

Durante o período de tomada de dados de 2004, foram armazenados cerca de 300 Terabyte de dados brutos^{§§§§}, correspondendo a um volume de dados registados de cerca de 2 Terabyte por dia.

O software de aquisição está escrito nas linguagens C e C++ e corre sobre plataformas RedHat Linux [24].

^{§§§§} “raw data”

Capítulo 4

Calorímetro de Absorção Total (TAC^{*****})

4.1 Medições de Secções Eficazes de Captura Neutrónica Radiativa

Tal como discutido no Capítulo 2, eventos de captura neutrónica radiativa frequentemente referidos como (n,γ) correspondem à reacção



entre um neutrão incidente (n) e o nuclido ${}^A\text{X}$ e são caracterizados por uma cascata de fótons emitidos isotropicamente posteriormente à formação do estado excitado ${}^{A+1}\text{X}^*$ do núcleo composto. A multiplicidade e as energias dos fótons individuais são determinadas pelas probabilidades de transição entre os diferentes níveis nucleares. Para cada nuclido, a soma das energias dos fótons da cascata (ΣE_γ) que corresponde à soma da energia de separação do neutrão capturado (S_n) com a sua energia cinética (E_n), (equações 2.11 e 2.15):

$$\sum E_\gamma = S_n + \frac{A}{A+1} E_n \quad (4.2)$$

Embora a energia dos fótons individuais seja variável, os valores de ΣE_γ são tipicamente da ordem dos vários MeV, variando de nuclido para nuclido. Do ponto de vista experimental, a determinação com elevada precisão e exactidão da secção eficaz de captura neutrónica requer um detector com uma eficiência de detecção elevada para

***** Total Absorption Calorimeter

fotões no intervalo de energia até aos 10 MeV e uma elevada eficiência geométrica assegurada pela cobertura da quase totalidade do ângulo sólido que rodeia a amostra a ser medida (detector 4π). Estas características garantem que a totalidade dos fotões da cascata de captura são registados no detector e que a eficiência de detecção é independente da multiplicidade da cascata. Também é necessário que o detector tenha uma boa resolução em energia, uma boa resolução temporal e que o sistema de detecção exiba uma baixa sensibilidade a neutrões dispersos nos materiais constituintes do detector e na amostra.

O calorímetro de absorção total (TAC) que preenche os requisitos previamente referidos está colocado na área experimental (EAR-1) do espectrometro n_TOF situada a 185 m do alvo de espalação. O TAC é constituído por 40 cristais de fluoreto de bário (BaF_2) que formam uma casca esférica com 10 cm de raio interior e 15 cm de espessura. Dos 40 cristais, 12 exibem uma forma piramidal pentagonal truncada e 28 uma forma piramidal hexagonal truncada, tal como representado na Figura 4.1. Os 40 cristais asseguram uma cobertura do ângulo sólido $\Delta\Omega/4\pi = 95\%$, sendo os restantes 5% correspondentes aos acessos (entrada e saída) do tubo de feixe de neutrões. A amostra é colocada no centro geométrico do TAC.

Cada módulo individual do TAC consiste de um cristal de BaF_2 , de um fotomultiplicador e de um divisor de tensão, constituindo cada módulo um detector independente e conferindo ao detector uma razoável granularidade. Os módulos estão suportados por uma estrutura do tipo favo de mel que é representada em esquema na figura 4.1 [25,26].

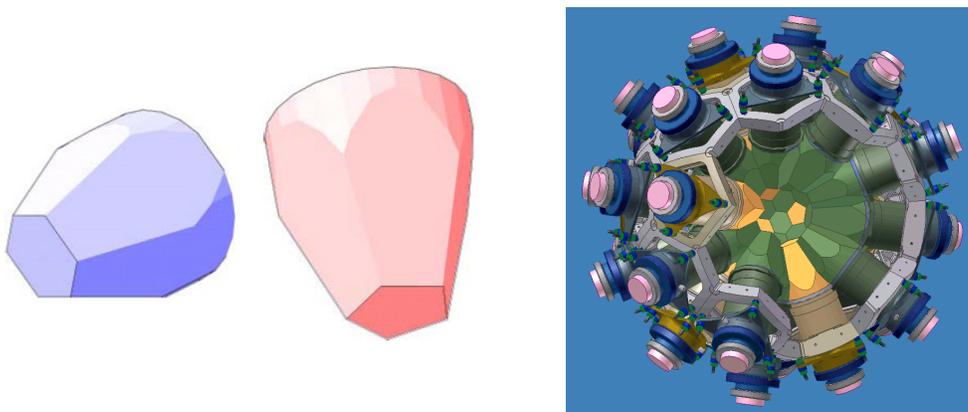


Fig. 4.1 – Representação das geometria piramidal hexagonal e pentagonal dos cristais de BaF_2 e da estrutura tipo favo de mel que suporta cada módulo.

A utilização do TAC tem como objectivo a medição de secções eficazes de captura neutrónica em diferentes nuclidos, sendo também um detector único para medir secções eficazes de captura neutrónica de materiais fissionáveis. Para tal é utilizada a técnica de absorção total que consiste na detecção de todos os fótons da cascata electromagnética que constitui a assinatura de cada processo, sendo que a granularidade do TAC é suficiente para permitir distinguir eventos com multiplicidades diferentes. A técnica de absorção total baseia-se nas propriedades de cintilação dos cristais de BaF₂ quando excitados com radiação ionizante, em particular raios gama, e na posterior colecção da luz resultante para obter a energia total depositada.

Como se pode ver da figura 4.2 extraída da referência [27], o valor médio da energia total da cascata electromagnética para um processo de fissão é aproximadamente igual ao mesmo valor para um processo de captura, sendo no entanto o valor médio da multiplicidade de fótons de um evento de fissão aproximadamente o dobro do valor médio da multiplicidade correspondente para eventos de captura neutrónica.

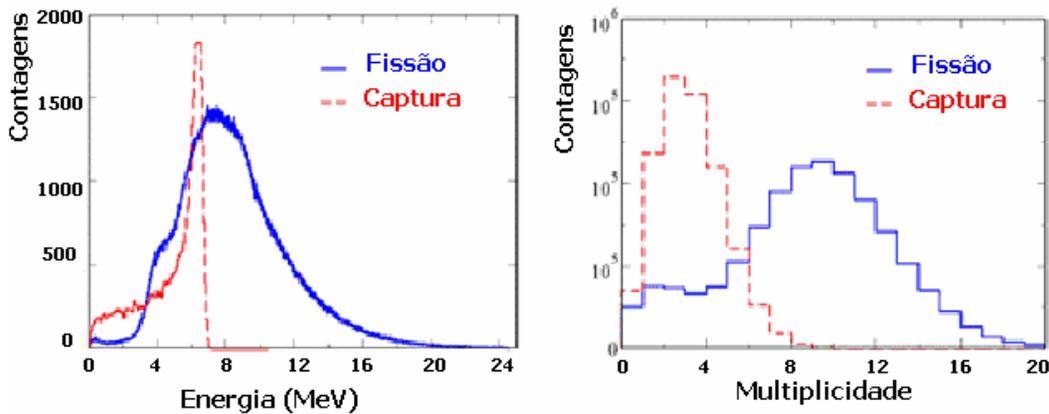


Fig. 4.2 – **Esquerda:** Espectro da energia total depositada para eventos de fissão e eventos de captura medidos com uma fonte de ²⁵²Cf. **Direita:** Distribuição das multiplicidades de fótons para eventos de fissão e eventos de captura obtidos da mesma forma [27].

Estas características permitem diferenciar e distinguir processos de captura de processos de fissão usando o TAC.

Os valores de secção eficaz para processos de captura neutrónica radiativa obtêm-se através da razão entre o número de reacções de captura e o produto do número

de núcleos alvo por unidade de área com o número de neutrões de uma específica energia que incidem na área do alvo:

$$\sigma_{\gamma}(E) = \frac{\text{Número de reacções de captura}}{\text{Número de núcleos alvo p/ un. de área} \times \text{Número de neutrões de energia } E} \quad (4.3)$$

Na prática a quantidade que se pretende determinar é o rendimento^{††††} (Y) de captura numa amostra definido como a fracção do número total de neutrões incidentes na amostra que interagem por captura neutrónica. O rendimento de captura ($0 < Y < 1$) é calculado através da seguinte expressão.

$$Y = (1 - \exp(-n\sigma_T)) \frac{\sigma_{\gamma}}{\sigma_T} \approx \begin{cases} n\sigma_{\gamma} & \text{(amostras finas)} \\ \frac{\sigma_{\gamma}}{\sigma_T} & \text{(amostras espessas)} \end{cases} \quad (4.4)$$

onde n é a densidade atómica da amostra (átomos/barn), σ_T é a secção eficaz total e σ_{γ} é a secção eficaz de captura. Para uma formulação rigorosa, devem ser contabilizados os efeitos e correcções devidas à dispersão múltipla de um neutrão no interior da amostra. No entanto, para amostras muito finas, como é o caso das utilizadas em n_TOF, os termos associados à contribuição da dispersão múltipla podem ser ignorados pois têm um pequeno efeito na análise e pode-se usar a primeira aproximação da expressão 4.4.

Algumas determinações da secção eficaz de captura neutrónica são feitas relativamente a um padrão, como por exemplo o isótopo ^{197}Au . Este isótopo caracteriza-se pelo valor elevado e bem determinado experimentalmente dos parâmetros das ressonâncias (saturadas) na gama de alguns eV até algumas dezenas de eV, sendo o mais conhecida a ressonância que ocorre a uma energia do neutrão incidente de 4.9 eV. De uma forma simplificada, as contagens efectuadas para a amostra do material em estudo são normalizadas às contagens efectuadas utilizando uma ou mais ressonâncias saturadas do ^{197}Au (normalmente a primeira ressonância a 4.9 eV). Para tais ressonâncias é válida a aproximação das amostras espessas obtendo-se, no pico da ressonância, o rendimento de captura como o quociente entre a secção eficaz de captura e a secção eficaz total. Então, por proporcionalidade, utilizando os valores bem conhecidos das secções eficazes para as ressonâncias do ^{197}Au extraem-se os valores das secções eficazes da amostra que se pretende medir.

^{††††} yield

4.2 Critérios na escolha do material cintilador

Existem disponíveis no mercado muitas espécies de materiais cintiladores, tanto orgânicos como inorgânicos. Em geral, os cintiladores orgânicos são usados para detectar a passagem de partículas carregadas pela matéria enquanto que os inorgânicos são usados quando é necessário uma alta resolução em energia, sendo este o caso.

Um factor que limita a escolha do material cintilador é a capacidade de fabrico de cristais de grandes proporções, apropriados para a construção de um detector 4π . Este factor limita a discussão a 4 cristais inorgânicos: NaI(Tl); CsI(Tl), BGO e BaF₂. Algumas propriedades básicas destes 4 materiais cintiladores estão expostas na tabela 4.1. Como se pode observar na tabela, o BaF₂ possui a desvantagem de ter um longo comprimento de radiação quando comparado com o CsI(Tl) e o BGO. Outra observação é o relativamente baixo rendimento luminoso, especialmente o da componente rápida.

	NaI(Tl)	CsI(Tl)	BGO	BaF₂
Densidade [g/cm³]	3,67	4,51	7,13	4,89
Comprimento de Radiação [cm]	2,59	1,85	1,12	2,06
Higroscópico	Sim	Pouco	Não	Pouco
Luminescência [nm] (comprimento de onda do pico)	410	550	480	310 220
Tempo de Decaimento [ns]	230	1000	300	620 0,6
Rendimento Luminoso Relativo (relativo ao NaI(Tl))	100	45	13	20 4

Tabela 4.1 – Propriedades dos cristais cintiladores propostos para a construção de um detector 4π [25].

Contudo os cristais que contêm iodo exibem uma desvantagem para o tipo de medições a efectuar em n-TOF, pois o isótopo ¹²⁷I tem uma grande secção eficaz de captura neutrónica, de cerca de 635 mb a 30 keV de energia do neutrão incidente. Este tipo de cristal iria largamente aumentar o “background” devido a neutrões dispersos

nesta gama de energia, uma vez que estes produziram sinais semelhantes a um evento de captura numa amostra de interesse.

O critério final na escolha do BaF₂ está relacionado com a sua superior resolução temporal devido à componente rápida do processo de cintilação. A principal desvantagem dos cristais de BaF₂ é a sua incontornável contaminação com rádio como será mostrado adiante.

4.3 Cristais de Fluoreto de Bário (BaF₂)

O fluoreto de bário é um material cintilador vulgarmente usado na detecção de raios-X e raios gama. Devido ao seu elevado Z_{eff} possui uma boa eficiência de absorção para a radiação gama e o seu elevado poder de paragem (dE/dx) eleva a eficiência de absorção para partículas carregadas.

O BaF₂ é um cintilador inorgânico de elevada densidade (4.89 g/cm³) com três picos de emissão a 195, 220 e 310 nm (ver figura 4.3). Habitualmente apenas os dois últimos comprimentos de onda são referidos na literatura. Estes correspondem às componentes rápida e lenta respectivamente.

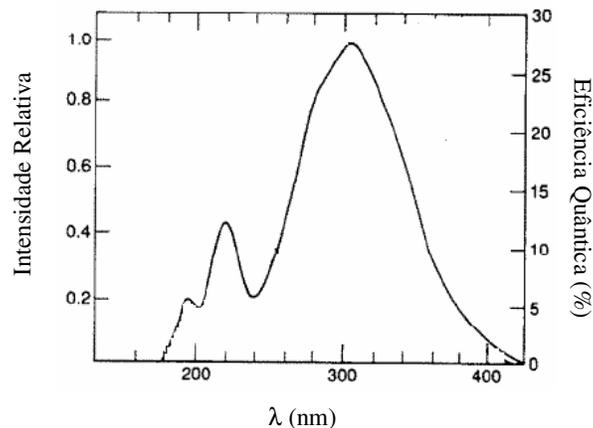


Fig. 4.3 – Espectro de cintilação dos cristais de BaF₂ [28].

As características dos cristais de Fluoreto de Bário comercialmente disponíveis estão descritas na tabela seguinte.

Rendimento Luminoso	1300 fotões/MeV (rápida) 1600 fotões/MeV (lenta)
Constante de Decaimento (ns)	0,6 (rápida) 620 (lenta)
Pico de Emissão (nm)	220 (rápida) 310 (lenta)
Percurso de radiação (cm)	2,05
“Afterglow” (após 3 ms) (%)	0,005
Transmitância (μm)	0,14 - 13

Tabela 4.2 – Algumas características dos cristais de BaF₂ [29].

O fluoreto de bário é um material luminescente não emissor de electrões de Auger^{****}. Quando excitado com partículas de alta energia decai com a emissão de dois fotões. Um deles resulta da desexcitação entre as bandas de valência e condução^{*****}. O outro resulta de um tipo específico de luminescência, entre a banda de valência e a banda mais externa da rede cristalina. Este fenómeno aparece porque a diferença de energia E_{VC} entre o topo da banda de valência e o topo da banda da rede é inferior à diferença entre a energia da banda de valência e banda de condução E_g e as transições radiativas dos buracos da rede para a banda de valência são feitas livres da ejeção de electrões de Auger. O resultado é um processo com a emissão de dois fotões através da excitação da banda de rede feita por um único fotão.

**** Auger-Free Luminescent – AFL
***** InterBand Luminescence – IBL

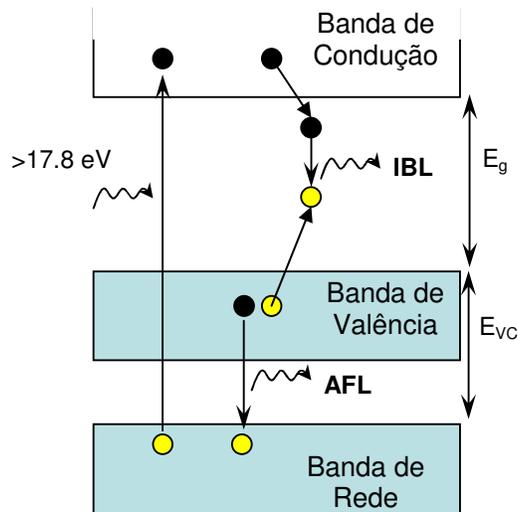


Fig. 4.4 – 2 fótons UV com energias de IBL~4.1 eV e AFL~5.6 eV [30].

Este processo possui a vantagem de um curto tempo de decaimento (para os fótons do processo AFL é inferior a 1 ns), uma boa estabilidade térmica e um rendimento luminoso elevado. No entanto observações experimentais concluíram que para fótons muito energéticos a componente AFL é suprimida. A intensidade da componente rápida não tem dependência com a temperatura enquanto que a intensidade da componente lenta aumenta com a diminuição da temperatura a uma taxa de $2.4\%/^{\circ}\text{C}$.

Os cristais de BaF₂ não são higroscópicos mas possuem uma baixa solubilidade em água, de 0.17g/100g. Os cristais demonstram problemas com a gordura e o seu manuseamento tem de ser efectuado com cuidado.

A abundância isotópica natural do bário corresponde a uma mistura de sete isótopos estáveis. O mais abundante é o ¹³⁸Ba, com 72% de abundância, e uma pequena secção eficaz de captura neutrónica de 3.9 mb a 30 keV. A secção eficaz de captura neutrónica do bário elementar incluindo os isótopos ¹³⁵Ba e ¹³⁷Ba é 50 mb. A captura no Ba ou no F de neutrões dispersos na amostra ou em materiais estruturais circundantes produz um sinal no calorímetro que pode ser confundido com um evento de captura na amostra a estudar. Na figura 4.5 podem ser vistos os resultados de simulação da resposta do TAC a neutrões dispersos numa amostra de ¹⁹⁷Au. Os neutrões são capturados essencialmente nos isótopos de bário constituintes dos cristais de BaF₂, na figura também se pode observar a captura no isótopo de ¹⁹F.

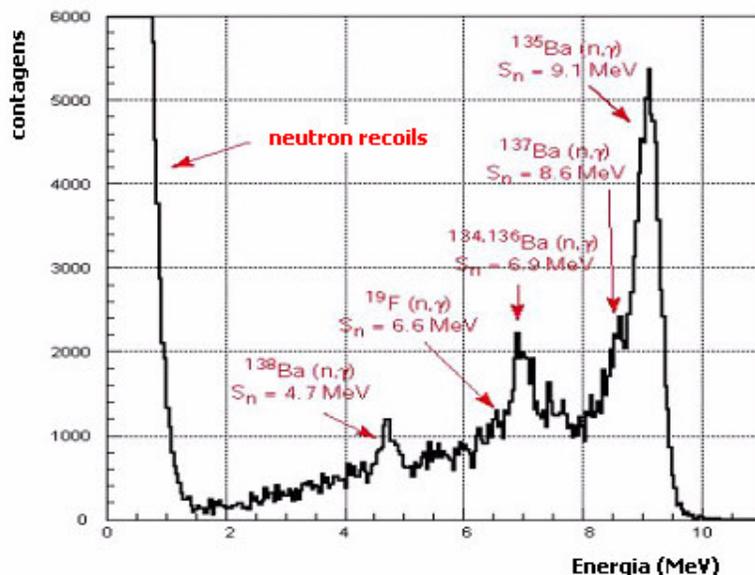


Fig. 4.5 – Resposta do calorímetro a neutrões dispersos numa amostra de ^{197}Au [26].

Os cristais estão envolvidos por uma fina camada de material reflector para não deixar escapar os fótons ópticos e encapsulados numa camada exterior em fibra de carbono dopada com ^{10}B para a absorção de neutrões. Em contacto com o cristal está o reflector formado por uma fina camada de 0,3 mm de Teflon e 0,3 mm de alumínio e posteriormente é encapsulada por 1mm de fibra de Carbono.

Com o intuito de reduzir a sensibilidade a neutrões, para além dos cristais estarem encapsulados com fibra de carbono dopada com ^{10}B é colocada no interior do TAC uma casca esférica de $^6\text{LiOOC}(\text{CH}_2)_{10}\text{COO}^6\text{Li}$ para a absorção de neutrões. A presença de átomos de hidrogénio (e também de oxigénio e carbono) permite efectuar a moderação dos neutrões que são posteriormente absorvidos por captura pelos átomos de lítio.



Fig. 4.6 – Absorvedor de ^6Li , $\text{C}_{12}\text{H}_{20}\text{O}_4(^6\text{Li})_2$, em torno da amostra com o intuito de minimizar o número de neutrões dispersos na amostra e outros constituintes das vizinhanças que são detectados no TAC.

Os isótopos de bário constituintes dos cristais de BaF₂ sofrem uma contaminação natural de rádio, o seu homólogo químico, que também contribui para o “background” no detector, através da cadeia de decaimento dos isótopos ²²⁶Ra e ²²⁸Ra. No entanto este tipo de ruído de fundo pode ser facilmente discriminado.

4.3.1 Os Danos da Radiação

Os danos causados pela radiação nos cristais de BaF₂ são devidos à presença de impurezas, defeitos na estrutura do cristal, pela presença de oxigénio e de iões OH⁻. À temperatura ambiente, a recuperação dos danos causados pela radiação é extremamente lenta. No entanto não se verifica um dano permanente no cristal que seja causado por irradiação de fótons, neutrões ou hadrões.

Os danos causados pela radiação no BaF₂ mostram sofrer um efeito de saturação. Tanto a transmitância como o rendimento luminoso são estabilizados após um valor limiar de dose inicial. Os danos não evidenciam uma dependência na taxa de dose. Eles são causados pela formação de “centros coloridos” e consequente auto absorção da luz de cintilação, mas não existe dano no mecanismo de cintilação.

Os danos podem ser totalmente recuperados após um “annealing” térmico a 500°C durante 3h num ambiente seco e sem oxigénio. A luz UV também se revela efectiva na remoção dos danos [31,32].

4.4 Forma do Sinal (Pulse Shape)

A forma dos impulsos resultantes no BaF₂ depende da partícula incidente e está relacionada com o poder de paragem^{*****} ou perda de energia por unidade de comprimento atravessado pela partícula ionizante $\frac{dE}{dx}$. Esta grandeza é característica de cada tipo de partícula. Nos cintiladores inorgânicos, tal como o BaF₂, um valor alto de $\frac{dE}{dx}$ produz uma grande densidade de estados moleculares excitados o que resulta num aumento de interacções intermoleculares. Este efeito favorece o desvio de energia para outros canais que não a desexcitação normal dos electrões nas bandas. Desta forma há

***** “Stopping power”

uma redução da componente rápida relativamente à componente lenta. Este fenómeno acontece por exemplo com a passagem de partículas α , resultantes dos decaimentos dos isótopos de rádio que contaminam o cristal ou de amostras radioactivas emisoras de partículas α [33].

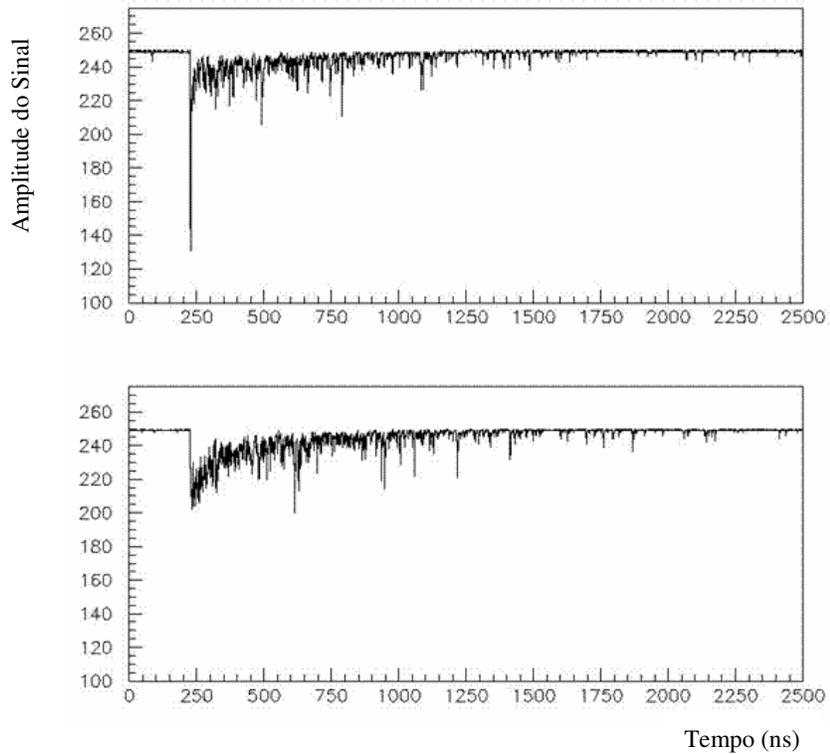


Fig. 4.7 – Diferentes sinais obtidos por um cristal de BaF_2 . Sinal obtido através da passagem de um raio gama (cima); Sinal obtido através da passagem de uma partícula alfa (baixo).

A forma do impulso dos sinais obtidos por um módulo do detector está representado na figura 4.7. A reconstrução da forma do impulso é feita tanto para a componente rápida ($t=0.7$ ns) como para a componente lenta ($t=620$ ns) da cintilação. Estas são ajustadas a uma distribuição Maxwelliana e a uma distribuição Exponential (com $t=620$ ns), respectivamente. O resultado obtido é mostrado na Figura 4.8

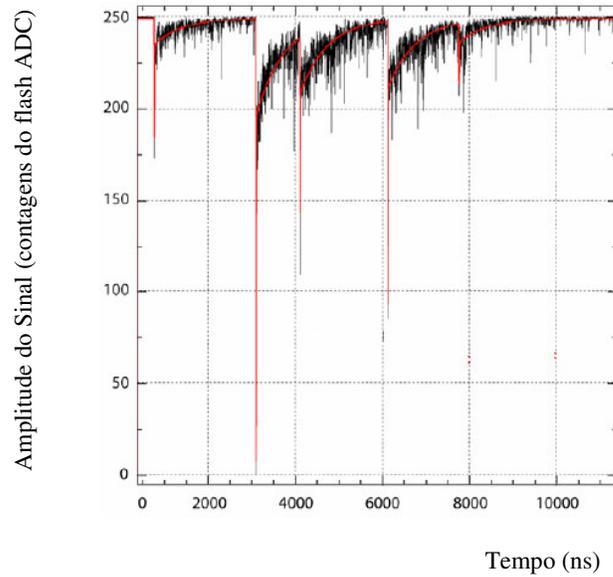


Fig. 4.8 – Sinais no BaF₂. Preto: Sinais digitalizados no BaF₂; Vermelho: Reconstrução da forma do impulso de um sinal no BaF₂.

4.5 Resolução em Energia

A resolução em energia de um calorímetro electromagnético pode ser parametrizada da seguinte maneira [32]:

$$\left(\frac{\Delta E}{E}\right)^2 = \left(\frac{a_0}{E}\right)^2 + \left(\frac{a_1}{\sqrt{E}}\right)^2 + b^2 \quad (4.5)$$

onde

- a_0 é a contribuição devida a efeitos instrumentais, esta componente pode limitar a performance do calorímetro a baixas energias;
- a_1 é o termo de natureza estatística da contribuição das flutuações dos fotoelectrões;
- b é o termo sistemático independente da energia, devido a erros de calibração, não uniformidades e não linearidades nos fotomultiplicadores, contadores proporcionais, ADC's, etc, esta componente estabelece o limite para a performance a energias muito elevadas.

A resolução em energia dos cristais de BaF₂ depende da temperatura. De acordo com a descrição de um detector muito similar instalado no “Institut für Kernphysik” em

Karlsruhe [25], para temperaturas entre os 20 e os 25 °C, a resolução em energia para o espectro soma do conjunto de todos os cristais foi obtida como sendo de 11%, 7% e 5% para as energias de 1 MeV, 2.5 MeV e 6 MeV respectivamente. Estes resultados para a resolução em energia podem ser representados por uma Gaussiana de acordo com a expressão:

$$\left(\frac{\Delta E}{E}\right)^2 = \alpha + \frac{\beta}{E} \quad (4.6)$$

$$\alpha = 7.7 \times 10^{-4}$$

$$\beta = 12.9$$

A expressão tem o termo do processo de natureza estatística do rendimento luminoso (dependência com β/E), e o termo sistemático α [26].

4.6 Eficiência do Detector

Diversos estudos relativamente ao comportamento e características de funcionamento do TAC foram efectuados, nomeadamente:

- Estudos computacionais através de simulações Monte Carlo para modelizar a resposta do calorímetro [26];
- Estudos comparativos utilizando resultados e medições experimentais obtidos com o detector instalado no “Institut für Kernphysik” em Karlsruhe [25].

Estes valores mostram um excelente acordo. O TAC na sua configuração standard de 40 cristais encapsulados possui uma eficiência de detecção próxima dos 100% e uma eficiência de absorção total de 60% [26] para as energias características da desintegração do ^{60}Co . A eficiência de detecção corresponde à eficiência de detectar uma cascata resultante do processo de captura neutrónica. A eficiência de absorção total corresponde à eficiência de absorver a totalidade da energia da cascata de fotões.

No entanto foi obtido através de simulação de Monte Carlo que a introdução do absorvedor de neutrões esférico e interior muda estes valores para 95% para a eficiência de detecção e 38% para a eficiência de absorção total para a linha do ^{60}Co [26].

4.7 Resolução Temporal

A resolução temporal é limitada pelo tempo de decaimento do cristal em resposta à passagem de radiação, pelos fotomultiplicadores, pela velocidade de armazenamento dos dados no sistema de aquisição e pela intercalibração das diferentes componentes do sistema. Uma vez que a frequência de amostragem dos flash-ADCs é de 2 GHz, este não é um factor limitativo na resolução temporal.

A componente rápida dos cristais de BaF₂ é inferior a 1 ns e o sinal obtido resulta de uma convolução em ambas componentes, rápida e lenta, sendo a componente rápida a dominante. Portanto as características temporais da componente rápida dominam a componente lenta, sendo a resolução temporal inferior a 1 ns.

4.8 Processamento de Sinal

Um primeiro sinal registado num módulo do calorímetro é processado quando corresponde a uma deposição de energia no cristal correspondente superior a 50 keV. Após esta primeira interacção que funciona como um “trigger” abre-se uma janela temporal de 20 ns, intervalo de tempo durante o qual se contam todas as interacções a que correspondam deposições de energia nos cristais superiores a 50 keV. A multiplicidade do evento é definida como sendo o número de cristais que com energias superiores a 50 keV dentro da janela temporal de 20 ns [26].

4.9 Deposição de energia nos cristais de BaF₂

A forma como gamas, com energias cuja ordem de grandeza é associada às cascatas electromagnéticas resultantes do processo de captura neutrónica radiativa, depositam a sua energia em cristais de BaF₂ pode ser obtida por simulação Monte Carlo.

Considerando um cilindro de BaF₂ puro de 15 cm de comprimento e incidindo um feixe de gamas monodireccional e monocromático com 3 energias diferentes, respectivamente 1 MeV, 5 MeV e 10 MeV, obtiveram-se as seguintes curvas de deposição de energia:

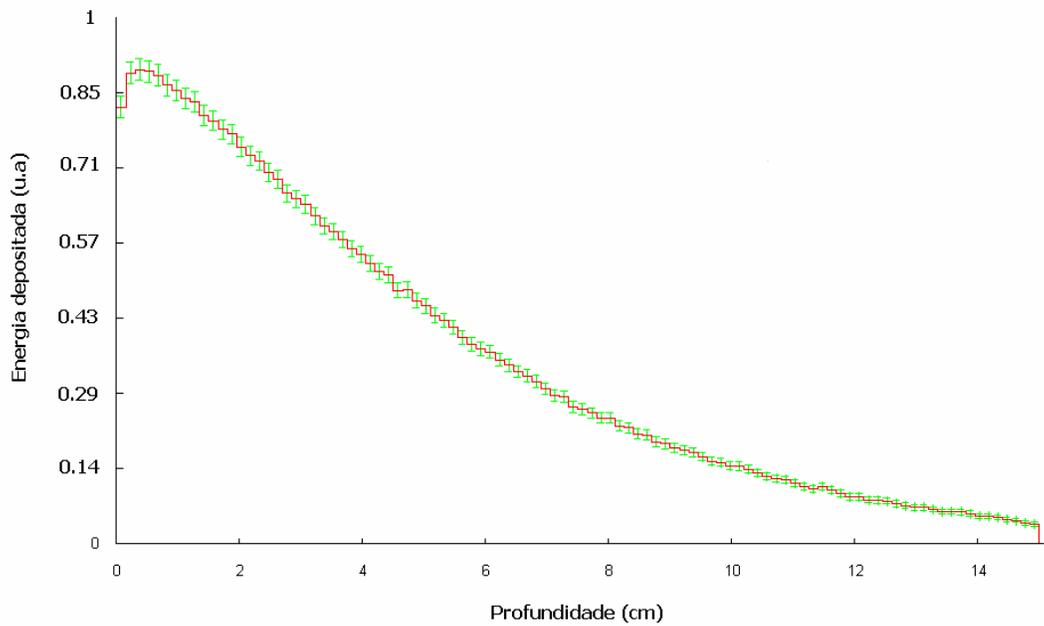


Fig. 4.9 – Curva de deposição de energia de fótons de 1 MeV num cilindro de 15 cm de profundidade constituído por BaF₂ obtida por simulação Monte Carlo.

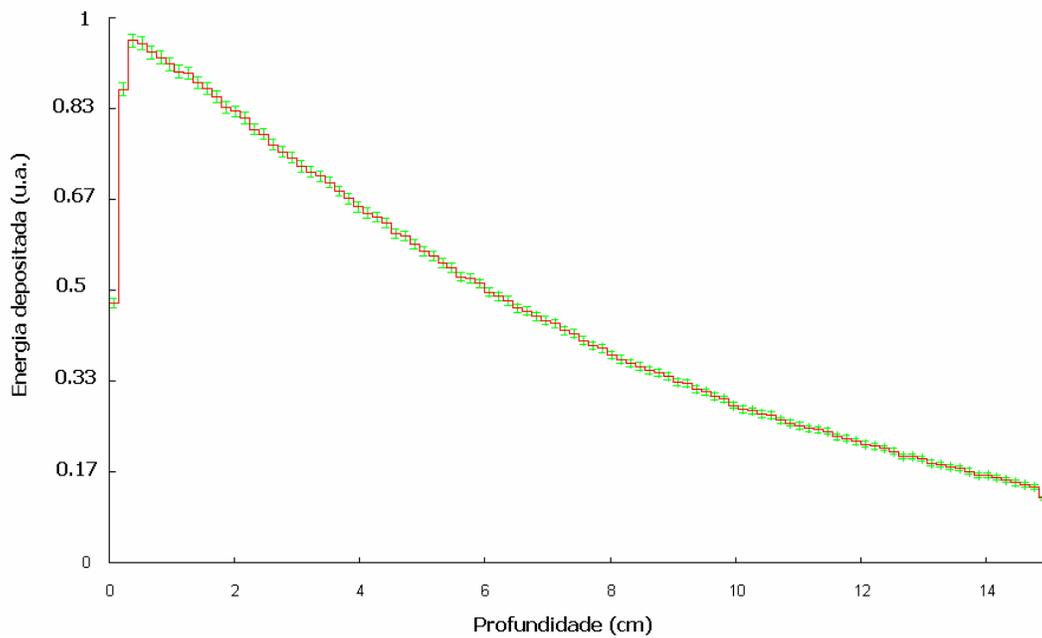


Fig. 4.10 – Curva de deposição de energia de fótons de 5 MeV num cilindro de 15 cm de profundidade constituído por BaF₂ obtida por simulação Monte Carlo.

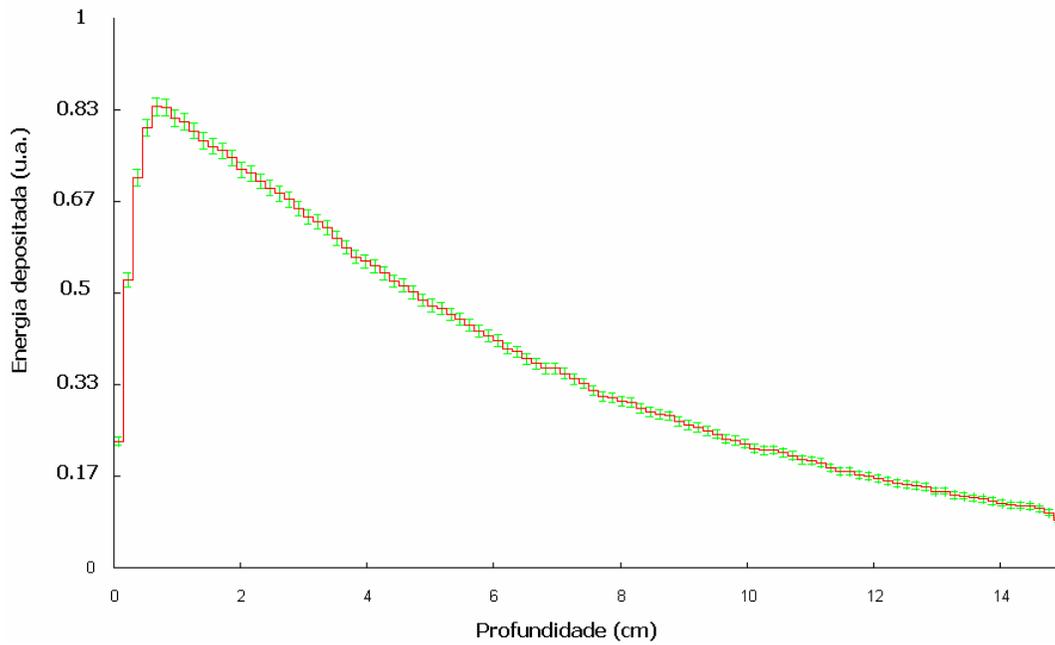


Fig. 4.11 – Curva de deposição de energia de fótons de 10 MeV num cilindro de 15 cm de profundidade constituído por BaF₂ obtida por simulação Monte Carlo.

As curvas apresentadas possuem uma forma sensivelmente idêntica, indicando que o pico de energia depositada, para gamas com energias de 1 MeV, 5 MeV e 10 MeV, encontra-se no primeiro centímetro do cristal.

Capítulo 5

O Programa de Simulação Monte Carlo – Geant4

Os métodos de Monte Carlo são baseados na geração de números aleatórios (ou pseudo-aleatórios) para simular o comportamento de sistemas físicos. Em física nuclear e em física de partículas estes métodos amostram aleatoriamente valores de secções eficazes das interacções microscópicas das partículas no meio que atravessam. O objectivo principal destes métodos é reproduzir o comportamento dos sistemas reais de uma forma o mais rigorosa possível, usando distribuições de probabilidade conhecidas.

5.1 GEANT4 – An Object-Oriented Simulation Toolkit

GEANT (GEometry ANd Tracking) é o nome do pacote de simulação desenvolvido por uma comunidade de físicos de partículas baseada no CERN. Este pacote que simula a passagem de partículas elementares pela matéria usando métodos de Monte Carlo, já teve várias versões, sendo a última o Geant4. Esta versão é escrita em linguagem C++, orientada por objectos e é mantida e melhorada de uma forma contínua pela colaboração Geant4.

O Geant4 é constituído por um conjunto de classes C++ as quais o utilizador pode manipular de acordo com as suas aplicações. Este conjunto inclui a geometria do sistema, os materiais envolvidos, as partículas fundamentais de interesse, a geração das primeiras partículas associadas ao evento, o percurso das partículas através dos materiais e campos magnéticos aplicados, os processos físicos que governam as interacções das partículas, a resposta a componentes sensíveis do detector, a geração de

dados do evento, o armazenamento de eventos e trajectórias, a visualização do detector e das trajectórias das partículas e o armazenamento, para subsequente análise da simulação, de dados em diferentes níveis de detalhe e refinamento. As classes são chamadas e implementadas pelo programa principal (main) que manipula o run management, cada classe tem o seu papel definido e corresponde a um passo na simulação [6].

5.1.1 CLHEP

O Geant4 usa o pacote de bibliotecas CLHEP (Class Library for High Energy Physics) para gerar os números aleatórios, a criação de vectores, matrizes, geometria e unidades. Para a geração dos números aleatórios o CLHEP possui uma grande variedade de motores para produzir diferentes distribuições. Para a geração de números distribuídos uniformemente entre 0 e 1, o motor RanLux é um gerador de números pseudo-aleatórios de alta qualidade vulgarmente usado. O motor RanLux tem 5 diferentes níveis de “luxury”, o nível mais baixo 0 resulta num gerador rápido, enquanto que o nível mais alto 4 é cerca de cinco vezes mais lento mas garante uma aleatoriedade completa. Em todos os casos o período de geração dos números é superior a 10^{165} [34,35].

5.1.2 Classes do Utilizador

No Geant4 a geometria do sistema é implementada na classe do utilizador *DetectorConstruction*; a geração das partículas primárias na classe *PrimaryGenerator* e a descrição das partículas e processos físicos é implementada na classe do utilizador *PhysicsList*. Estas três classes são mandatórias para que qualquer simulação funcione. As outras não são, mas são necessárias para recuperarem informação. A informação está distribuída pelas classes, *RunAction*, *EventAction* e *SteppingAction*, que correspondem a diferentes níveis do run. Um run é um conjunto de eventos, um evento é a unidade base de simulação e corresponde a um conjunto de passos e finalmente um passo é a distância unitária que uma partícula percorre ao atravessar o meio. Podem ser criadas pelo utilizador outras classes que herdem as propriedades das existentes e das primeiras.

O programa principal comunica com as classes através do “administrador da simulação”, que é uma outra classe chamada *RunManager*. Esta classe possui dois métodos: o *Initialize()*, e o *BeamOn()*. O primeiro é chamado no início da simulação e constrói a geometria dada pelo utilizador, constrói as partículas, os processos e os modelos físicos especificados, carrega as tabelas de secções eficazes correspondentes e actualiza os parâmetros necessários para o correcto funcionamento da simulação. O segundo método governa o desenvolvimento da simulação, otimiza a geometria, gera as partículas uma a uma e segue-as [36].

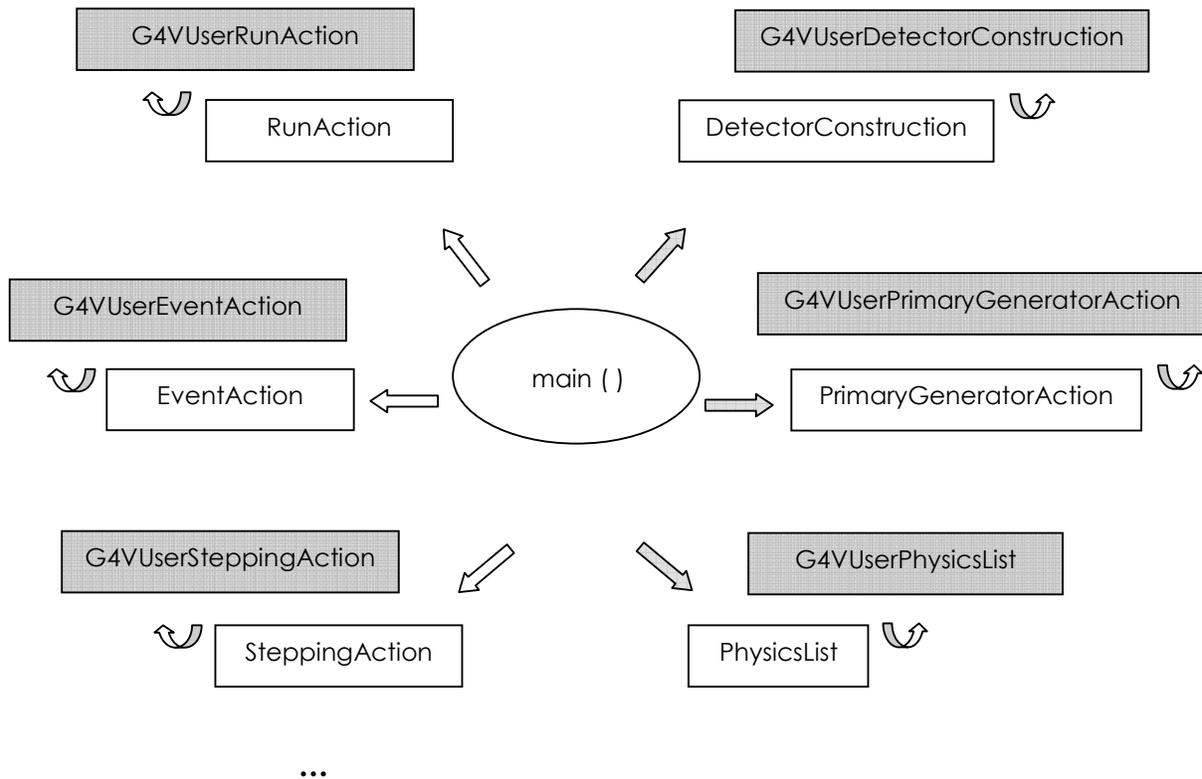


Fig. 5.1 – Arquitectura mínima de um código de simulação em Geant4. O utilizador implementa as suas próprias classes baseado nas classes disponibilizadas pelo Geant4. Existem outras classes não representadas.

5.1.3 Transporte de Partículas

No Geant4 as partículas são “transportadas” e isso é feito pelo processo de transporte, cada partícula move-se em passos (steps) estabelecendo um compromisso entre optimização na performance de execução e precisão na trajectória. Todos os

processos físicos associados à partícula propõem um valor para a dimensão do passo, a forma como isso é conseguido é através do método comum a todos os processos físicos que se chama *GetPhysicalInteractionLength*. Se a partícula se encontra em repouso, o passo consiste num intervalo de tempo em vez de um comprimento. Os valores físicos associados a cada passo são trocados entre o *tracking* e cada processo físico usando objectos da classe *G4Step*. O valor mínimo do passo é seleccionado de acordo com o descrito anteriormente e tendo em conta os limites geométricos do sistema, ou então pelo limite máximo para o passo estabelecido pelo utilizador, este pode definir um corte para o alcance de uma partícula (este corte pode ser também especificado em termos de energia). As partículas secundárias são seguidas até depositarem toda a sua energia no meio.

Se as partículas são carregadas e estão sujeitas a um campo magnético aplicado, o Geant4 fornece uma equação do movimento para o transporte dessas partículas, para outro tipo de campos aplicados a equação do movimento tem de ser explicitada pelo utilizador [37,38,39].

5.1.4 Generalidades acerca dos Processos Físicos

O pacote Geant4 possui uma grande variedade de modelos físicos que estão classificados em sete categorias: decaimento, processos electromagnéticos, processos hadrónicos, transporte, processos ópticos, processos fotoleptão-hadrão e parametrização. A concepção da implementação física é baseada na arquitectura aberta do C++ e portanto permite um desenvolvimento contínuo de novos modelos sem afectar o código prévio.

5.1.4.1 Processo de Decaimento

No processo de decaimento de uma partícula a dimensão do passo é directamente calculada a partir do seu tempo de vida média. O livre percurso médio λ é calculado para cada passo de acordo com a expressão que se segue:

$$\lambda = \gamma\beta c\tau \quad (5.1)$$

onde τ é o tempo de vida próprio da partícula. Se a velocidade da partícula não sofre alterações significativas ao longo do passo, o tempo de vida da partícula medido no referencial de laboratório é actualizado no fim de cada passo de acordo com a expressão (5.2):

$$\Delta_{t_{lab}} = \frac{\Delta x}{0.5(v_0 + v)} \quad (5.2)$$

onde v_0 é a velocidade da partícula imediatamente antes do passo e v é a velocidade da partícula imediatamente após o passo.

A geração dos produtos de decaimento e a sua cinemática requiere conhecimento dos branching ratios que estão definidos na classe *G4VDecayChannel*, que herda propriedades da classe *G4ParticleDefinition*. Para decaimentos a três ou mais corpos é necessário o uso de teoria ou de dados fornecidos em bibliotecas ou pelo utilizador.

5.1.4.2 Comum a Outros Processos

Comprimento de Interação, Número de Livres Percursos Médios e Perda de Energia

Para outros processos o livre percurso médio ou comprimento de interação λ , é expresso em termos da secção eficaz total para cada processo:

$$\lambda(E) = \left(\sum_i [n_i \cdot \sigma(Z_i, E)] \right)^{-1} \quad (5.3)$$

n_i é o número de átomos do elemento i por unidade de volume; $\sigma(Z, E)$ é a secção eficaz total por átomo do processo físico. O livre percurso médio para cada processo é o inverso da secção eficaz macroscópica. Os valores da secção eficaz por átomo e dos livres percursos médios são tabelados durante a inicialização da execução do programa.

Após atravessar um comprimento igual ao livre percurso médio uma partícula pode ou não interagir com o meio, se a partícula inicia o seu percurso no ponto x_1 e interage no ponto x_2 , o número de livres percursos médios que a partícula irá efectuar será:

$$n_\lambda = \int_{x_1}^{x_2} \frac{dx}{\lambda(x)} \quad (5.4)$$

Este número corresponde a uma variável aleatória, seja n_t , esta variável possui uma distribuição de probabilidade que corresponde à seguinte função:

$$P(n_t < n_\lambda) = 1 - e^{-n_\lambda} \quad (5.5)$$

Desta forma amostra-se o número de livres percursos médios no início da trajetória de acordo com:

$$n_\lambda = -\log(\eta) \quad (5.6)$$

onde η é um número aleatório uniformemente distribuído no intervalo entre (0,1).

Para contabilizar a perda de energia por um processo físico, será necessário distinguir perdas de energia discretas e perdas de energia contínuas. Começa-se por seleccionar um valor mínimo para a energia cinética de uma partícula secundária, este valor irá corresponder ao limite de produção da partícula e é denotado por T_{cut} . Abaixo deste valor a perda de energia é contínua e acima deste valor a perda de energia obtém-se através da simulação explícita das partículas secundárias. A perda média de energia abaixo do limiar de produção explícita de partículas secundárias denota-se por dE_{soft}/dx e é obtido através da seguinte expressão:

$$\frac{dE_{soft}(E, T_{cut})}{dx} = n_{at} \cdot \int_0^{T_{cut}} \frac{d\sigma(Z, E, T)}{dT} T dT \quad (5.7)$$

onde n_{at} é o número de átomos por unidade de volume do material e $\frac{d\sigma(Z, E, T)}{dT}$ é a secção eficaz diferencial por átomo para a ejeção de uma partícula secundária com energia cinética T por uma partícula incidente de energia total E .

Se existem muitos processos a calcular a perda contínua de energia, então o termo contínuo corresponde à soma de todos os processos. Para estes processos de perda de energia contínua, como a secção eficaz depende da energia da partícula, o passo é suficientemente pequeno tal que a secção eficaz permanece aproximadamente constante ao longo do passo.

Para a produção explícita de partículas secundárias, a secção eficaz total para a ejeção de uma partícula secundária é dada por:

$$\sigma(Z, E, T_{cut}) = \int_{T_{cut}}^{T_{max}} \frac{d\sigma(Z, E, T)}{dT} dT \quad (5.8)$$

Todos estes valores são calculados durante a inicialização e armazenados na tabela de dE/dx . Após este procedimento são calculados os valores para o alcance de cada partícula em cada material e armazenados tabela do *Range*.

Se a deposição de energia por parte da partícula no material é inferior a 5% da sua energia cinética, então é usada a tabela de dE/dx . Se a perda de energia é superior que a perda média então ΔT pode ser escrito como:

$$\Delta T = T_0 - f_T(r_0 - step) \quad (5.9)$$

T_0 e r_0 são a energia cinética e o alcance da partícula respectivamente no início do passo. A função $f_T(r)$ é dada pelo inverso da tabela de alcance.

Para poupar memória, no caso de hádrões e iões as tabelas de perda de energia, dE/dx , Alcance e inverso do alcance são calculadas apenas para protões. Para as outras partículas é usada uma energia cinética escalada T_{scaled} que é calculada através de:

$$T_{scaled} = q_{eff}^2 \frac{M_{proton} T}{M_{particle}} \quad (5.10)$$

5.1.5 Processos Electromagnéticos

O conjunto de classes que define os processos electromagnéticos maneja com as interacções dos leptões, hádrões e iões. Este conjunto é organizado nas categorias *standard*, que trata dos processos básicos no intervalo de energias entre 1 keV e 100 GeV, *low energy*, que trata de modelos alternativos que se estendem a energias mais baixas que a categoria *standard* (a presente implementação dos processos associados aos fotões e electrões de baixa energia pode ser usada até valores de energia de 250 eV), *muons*, que trata das interacções dos muões, *X-rays*, dispondo código específico para a física dos raios-X, *high energy, utils*, que organiza classes úteis para serem usadas por outras categorias.

A estrutura dos processos electromagnéticos é normalmente mais bem entendida se for vista em termos de partículas.

Fotões

Existem processos que são característicos dos fotões como partícula incidente, são eles:

- Efeito fotoeléctrico;
- Dispersão de Compton;
- Conversão de um gama num par electrão positrão;

- Conversão de um gama num par muão anti-muão.

Partículas Carregadas

Os processos característicos associados às partículas carregadas são:

- Dispersão múltipla;
- Ionização – Simula a perda de energia discreta e contínua;
- Radiação de transição;
- Cintilação;
- Bremsstrahlung;
- Aniquilação – Simula a aniquilação de electrões e muões produzindo dois fotões, a produção de um número superior de fotões é desprezável;
- Efeito Chěrenkov.

5.1.6 Processos Hadrónicos

O conjunto dos processos hadrónicos abrange energias que vão desde os térmicos para os valores de secções eficazes e interacções de neutrões, até 7 TeV (Tera-eV) ou superior dependendo da aplicação em questão. Para modelar o estado final de uma interacção que envolve um hadrão, existem três tipos de modelos: modelos que se baseiam fortemente em dados experimentais, estes são preferidos sempre que a informação experimental está disponível; modelos que são baseados na parametrização ou extrapolação de dados experimentais de acordo com considerações teóricas; e modelos predominantemente baseados na teoria.

5.1.6.1 Modelos baseados em dados experimentais (Data Driven Models)

Os modelos baseados em dados experimentais (data driven models) são usados para os casos de transporte de neutrões, evaporação de fotões, absorção, cálculo de secções eficazes inclusivas e produção de isótopos. Os códigos usados para a interacção de neutrões são códigos genéricos de amostragem baseados no formato das bibliotecas ENDF/B-VI, JENDL3.2 e FENDL2.2. O procedimento está limitado aos dados

disponíveis, para reacções induzidas por neutrões as bibliotecas incluem dados tipicamente até energias cinéticas dos neutrões de 20 MeV, com extensões até aos 150 MeV para alguns isótopos. Para a foto-evaporação são usados os dados baseados nas bibliotecas ENSDF de níveis nucleares e probabilidades de transição, conversão e emissão para energias de excitação baixa a moderada, estes dados são complementados para altas energias de excitação pelo modelo teórico da ressonância gigante (giant dipole resonance). Para a previsão da activação das partículas no estado final é usado o modelo de produção de isótopos baseado nas bibliotecas MENDL.

5.1.6.2 Modelos de parametrização e Modelos baseados na Teoria

Os modelos de parametrização incluem fissão induzida, captura, dispersão elástica e produção dos estados finais da dispersão inelástica. Os modelos usados no Geant4 são os mesmos modelos do GEANT3, chamados GEISHA.

Os modelos baseados em teoria são usados para extrair ou prever valores de secções eficazes que não constam nas bibliotecas disponíveis. Estes modelos fornecem uma aproximação que consiste numa extrapolação segura dos resultados para energias além da região de teste, e permitem uma máxima extensibilidade da física subjacente. Um exemplo de modelo adoptado recentemente consiste no modelo da teoria das cordas para prever estados finais de reacções nucleares envolvendo gamas e electrões altamente energéticos. A baixas energias, são usadas variações do modelo clássico de Weisskopf-Ewing. No final da cadeia de reacções estima-se a configuração electrónica do átomo residual, e é efetuada a correspondente relaxação atómica.

5.6.1.3 Interacções de Neutrões

O transporte de neutrões a baixas energias abrange o intervalo desde os térmicos até 20 MeV. O tratamento baseia-se na separação em quatro modelos: captura radiativa, dispersão elástica, fissão e dispersão inelástica.

Os valores das secções eficazes são tirados das bibliotecas ENDF/B-VI e tratados como pontos isolados.

Captura Radiativa

O estado final de um processo de captura radiativa é descrito pela multiplicidade da cascata de fótons, pela secção eficaz da produção dos fótons e pelas contribuições discretas e contínuas para o espectro de energia dos fótons da cascata, juntamente com as distribuições angulares dos fótons emitidos.

Para a descrição das multiplicidades, se houver conhecimento de todos os valores das probabilidades de transição, essa informação é usada para determinar os photon yields. Se essa informação não estiver disponível, são usados dados tabelados em função da energia do neutrão incidente. As técnicas usadas para descrever e amostrar as distribuições angulares são idênticas ao caso da dispersão elástica e descritas adiante.

Dispersão Elástica

O estado final de uma dispersão elástica é descrito pela amostragem da secção eficaz diferencial $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ como função do ângulo de dispersão θ e da energia do neutrão incidente: $\frac{d\sigma}{d\Omega}(\cos\theta, E)$.

Fissão

Para o tratamento dos processos de fissão induzida por neutrões ou o tratamento dos neutrões resultantes de processos de fissão em geral existem cinco formas possíveis de representar a distribuição de energia dos neutrões, são eles:

- Espectro de evaporação geral;
- Espectro de Maxwell;
- Espectro de Watt;
- Espectro de Madland Nix.

Os fótons resultantes do processo de fissão são tratados analogamente aos fótons do processo de captura radiativa.

Dispersão Inelástica

Para a dispersão inelástica a distribuição dos fótons é novamente feita em analogia ao processo de captura radiativa. As distribuições angulares e em energia das partículas no estado final são descritas de forma semelhante à fissão.

Capítulo 6

Fontes de ruído de fundo (“background”) e sua mitigação

6.1 Fontes de ruído de fundo

Durante o ano de 2004 foram realizadas medições com grande precisão de secções eficazes de captura neutrónica de diversos actínídeos no espectrómetro TOF. O detector usado foi o calorímetro de absorção total (TAC) descrito no capítulo 4.

O calorímetro consiste em 40 cristais de BaF_2 e exhibe uma grande eficiência de detecção das cascatas electromagnéticas resultantes do processo de captura neutrónica. Para garantir a qualidade das medidas, o ruído de fundo (“background”) associado deverá ser reduzido ao mínimo possível. Uma fonte importante de ruído de fundo deve-se aos neutrões do feixe que são dispersos na amostra, sendo posteriormente capturados nos materiais constituintes da área experimental (paredes, materiais constituintes dos detectores, etc.). Uma das principais contribuições para o ruído de fundo afectando as medições das reacções de captura neutrónica na amostra deve-se aos isótopos de bário constituintes dos cristais do calorímetro de absorção total; neutrões dispersos pela amostra, que podem ser capturados por estes isótopos originando no calorímetro falsos sinais de fótons provenientes de captura neutrónica no material da amostra.

Outra fonte de ruído de fundo existente é devida à dispersão dos neutrões noutros materiais constituintes da área experimental e que posteriormente atingem o calorímetro.

Durante o período de medidas de 2004, o dispositivo de detecção na área experimental consistia num tubo de feixe descontínuo (por forma a permitir colocar a

amostra no interior do calorímetro) que penetrava no TAC e num porta amostras constituído por titânio que encaixava num dos lados do tubo, no centro do calorímetro. O tubo de feixe tinha como fronteiras quatro janelas feitas de kapton com 50 μm de espessura que preservavam o vácuo no interior de cada peça do tubo. A dispersão de neutrões nestas janelas e no porta amostras revelou-se a mais importante fonte de ruído de fundo associado ao tubo de feixe, em especial nas janelas interiores e no porta amostras que se encontravam no interior do TAC.

6.1.1 Amostras

A amostra (fonte radioactiva selada) estava contida no porta amostras de titânio, entre duas lâminas de material “kapton” e todo este dispositivo estava rodeado de ar. Na figura seguinte pode-se observar as dimensões típicas de uma amostra de um actínídeo e dos diversos componentes do sistema porta-amostra.



Figura 6.1 – Porta amostras de titânio e tamanho de uma amostra típica.

De acordo com as especificações do fabricante, todas as amostras em n_{TOF} são constituídas por materiais com um elevado grau de pureza, tipicamente acima de 99%. As características físicas de algumas amostras medidas em n_{TOF} encontra-se na tabela que se segue.

Isótopo	Densidade (g/cm³)	Massa disponível (mg)	Diâmetro da amostra (cm)	Área da superfície da amostra (cm²)	Espessura da amostra (μm)
²³³ U	18.95	100	1	7.85×10 ⁻¹	6.72×10 ¹
²³⁷ Np	20.45	20	1	7.85×10 ⁻¹	1.25×10 ¹
²⁴⁰ Pu	19.84	20	1	7.85×10 ⁻¹	1.28×10 ¹
²⁴² Pu	19.84	20	1	7.85×10 ⁻¹	1.28×10 ¹
²⁴¹ Am	13.6	25	1	7.85×10 ⁻¹	2.34×10 ¹
²⁴³ Am	13.6	25	1	7.85×10 ⁻¹	2.34×10 ¹
²⁴⁵ Cm	13.511	10	1	7.85×10 ⁻¹	9.42
¹⁹⁷ Au	19.32	100	1	7.85×10 ⁻¹	6.59×10 ¹
^{nat} C	2.62	100	1	7.85×10 ⁻¹	4.86×10 ²
²⁰⁸ Pb	11.34	300	1	7.85×10 ⁻¹	3.37×10 ²
²⁷ Al	2.702	2.1	1	7.85×10 ⁻¹	1.000×10 ¹

Tabela 6.1 – Descrição das características físicas das amostras de actínídeos, amostras de referência e de materiais estruturais (tubo de feixe e porta amostras) [40].

Para além do efeito da dispersão o titânio (natural) constituinte do porta amostras possui uma secção eficaz de captura elevada para neutrões incidentes com energias superiores a 5 -10 keV e a cascata de fótons resultantes possui dois picos a 6 e 8 MeV que mascaram as secções eficazes de captura nas amostras nessa ordem de energias, como se pode observar na figura 6.2.

Observa-se também na figura que o ruído de fundo devido às janelas de kapton e ao porta amostras afecta diferentemente as medições da secção eficaz de captura neutrónica (no exemplo da Figura o isótopo. ^{240}Pu): o seu efeito é de cerca 5% para baixas energias (<10 eV) do neutrão incidente sendo de cerca de 40% para energias mais elevadas (1-10 keV), mascarando os valores na totalidade na zona da captura no titânio.

Note-se que apesar do ruído de fundo ser uma percentagem significativa do sinal que se pretende medir, as suas diversas componentes podem ser medidas separadamente e subsequentemente subtraídas, excepto na zona de captura do titânio, com um erro inferior a 5%.

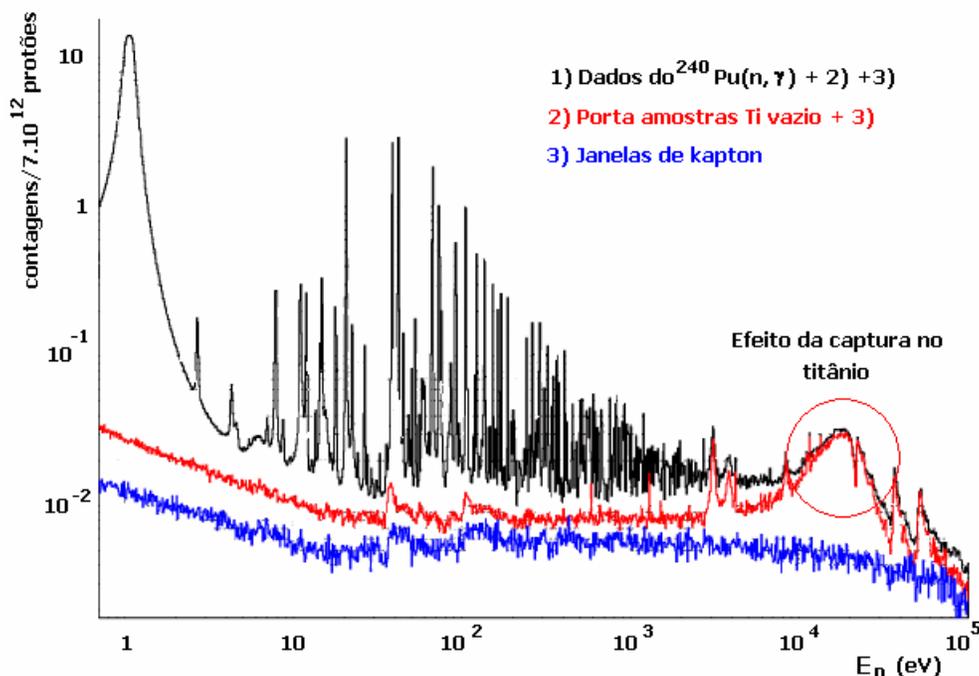


Fig. 6.2 – Sinais obtidos pelo TAC para 3 configurações diferentes. 1) O dispositivo de medida com uma amostra de ^{240}Pu (a preto). 2) O dispositivo de medida com o porta amostras de titânio vazio (a vermelho). 3) O dispositivo de medida sem porta amostras (a azul) [41].

6.2 Geometrias do tubo de feixe, sistema porta-amostra

Para reduzir a contribuição das diversas fontes de ruído de fundo previamente identificadas, em especial o resultante da dispersão de neutrões na amostra, uma casca esférica feita de material absorvedor e moderador de neutrões foi colocada no interior do calorímetro. Adicionalmente, cada cristal de fluoreto de bário encontra-se encapsulado por um material enriquecido em ^{10}B , material aborvente de neutrões, para evitar que os neutrões dispersos atinjam os cristais do calorímetro.

Na figura 6.3 está representada a configuração do tubo de feixe e calorímetro utilizados durante as medições efectuadas em 2004. Pode ser visto um esquema de um neutrão incidente que é disperso numa janela interior de kapton e posteriormente capturado num isótopo de bário do cristal, produzindo uma cascata de fotões.

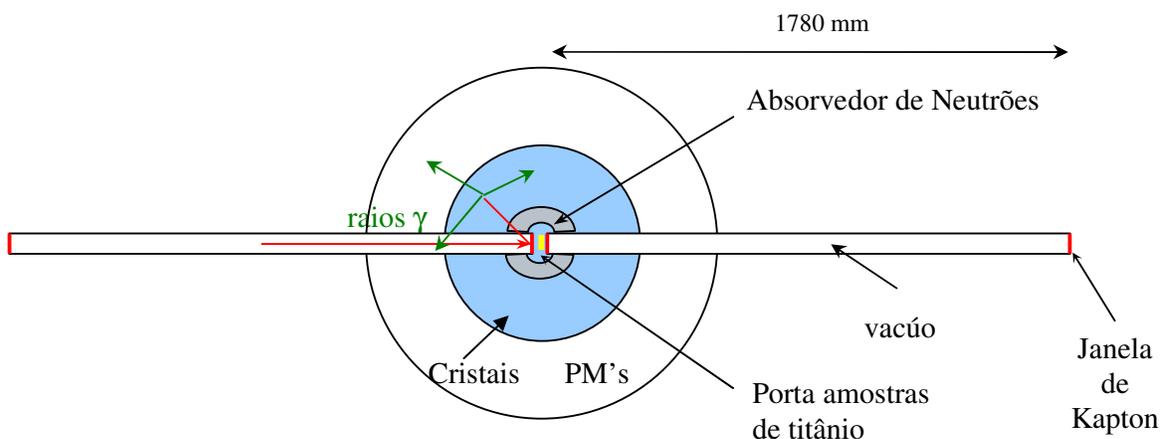


Figura 6.3 – Esquema da configuração do tubo de feixe e porta amostras usada em 2004. O vácuo no interior do tubo é preservado por quatro finas janelas de kapton. O porta amostras é constituído por titânio e está localizado no centro geométrico do TAC, em redor do porta amostras está ar.

Para as medidas de secções eficazes de captura neutrónica que decorrerão a partir de 2008, de forma a reduzir ainda mais o ruído de fundo associado ao tubo de feixe e porta amostras, foi proposta e desenhada uma nova configuração do tubo de feixe e do sistema porta amostras. Nesta nova configuração, o tubo consiste num contentor de vácuo de 1,5 m de comprimento certificado pela ISO e contém, fixada no seu centro a uma folha fina de alumínio, a amostra do material cujas secções eficazes se pretende determinar. Desta forma pretende-se reduzir a quantidade de material que se encontra no interior do calorímetro TAC e que contribuiu potencialmente para a

dispersão de neutrões. Esta configuração encontra-se representada na figura 6.4 que se segue.

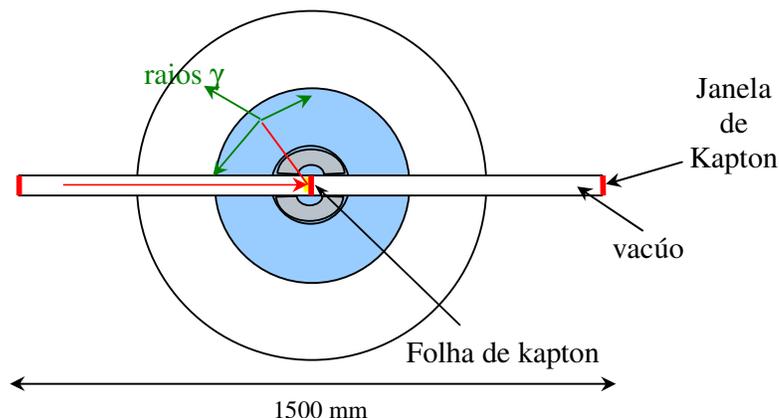


Figura 6.4 – Novo dispositivo do porta amostras consistindo num tubo de vácuo no qual a amostra se encontra depositada. A amostra está fixa numa folha de kapton no centro do tubo e no centro do TAC.

Como se pode concluir pela observação das duas figuras anteriores, as janelas exteriores do novo dispositivo porta-amostra encontram-se mais próximas do material sensível a neutrões (cristais de BaF_2) quando comparadas com as janelas exteriores do antigo tubo de feixe. Para mitigar esta potencial contribuição para a deterioração das medições que serão efectuadas, foi adicionalmente proposto um sistema absorvedor de neutrões, exterior (adjacente) ao calorímetro e localizado em torno do tubo de feixe de neutrões. Tal sistema absorvedor consiste em blocos de polietileno dopados com boro ou lítio e tem como objectivo a termalização e posterior absorção dos neutrões dispersos nas respectivas janelas.

O trabalho de simulação realizado, cujos resultados são apresentados no próximo capítulo, permitiu efectuar um estudo comparativo do ruído de fundo associado ao tubo de feixe e porta amostras para as duas configurações em causa e otimizar a geometria e composição do material constituinte dos blocos absorvedores de neutrões.

6.3 Sistema absorvedor de neutrões: geometrias e materiais constituintes

Os materiais considerados e simulados para os blocos absorvedores de neutrões foram os seguintes:

- Polietileno dopado com 5% de Boro natural;

- Polietileno dopado com 10% de Boro natural;
- Polietileno dopado com 7,5% de Litio natural;

A escolha destes materiais não é arbitrária: o polietileno possui uma estrutura molecular rica em hidrogénio (C₂H₄), e tal como se explicita na secção 2.5 do capítulo 2, este constitui um bom moderador de neutrões por processos de dispersão elástica. A composição isotópica do boro natural é constituída por 19,8% do isótopo ¹⁰B. O isótopo de ¹⁰B possui uma secção eficaz para neutrões térmicos de 3840 b para a seguinte reacção:



Por sua vez o ⁷Li* decai em 94% das vezes para o ⁷Li estável emitindo um gama de 0,48 MeV. A composição isotópica do litio natural é constituída por 7,4% de ⁶Li. Este isótopo possui uma secção eficaz para neutrões térmicos de 940 b para a seguinte reacção:



Apesar do ⁶Li se encontrar em menor percentagem no litio natural relativamente ao ¹⁰B e de possuir uma menor secção eficaz de captura para neutrões térmicos a reacção representada em (6.2) possui como produtos partículas estáveis, daí o interesse na sua simulação [42].

Para a determinação da geometria mais eficiente na absorção dos neutrões dispersos nas janelas de kapton, estudaram-se diferentes configurações com diversos volumes de polietileno. A tabela 6.2 e as figuras 6.4 descrevem as geometrias simuladas.

Geometria	Volume de Polietileno (dm ³)
1) Cilindro de referência	118,595 × 2
2) Cilindro menor	71,157 × 2
3) Cone	31,698 × 2
4) Cone + pequeno cilindro	32,82 × 2
5) Cone + pequeno cilindro + Pb	32,659 × 2

Tabela 6.2 – Volumes de polietileno simulados para os blocos absorvedores de neutrões considerados.

A importância do cálculo dos volumes de polietileno utilizados foi dictada por critérios económicos associados aos custos de fabricação dos elementos absorvedores considerados, para os materiais e os teores de boro e lítio previamente referidos.

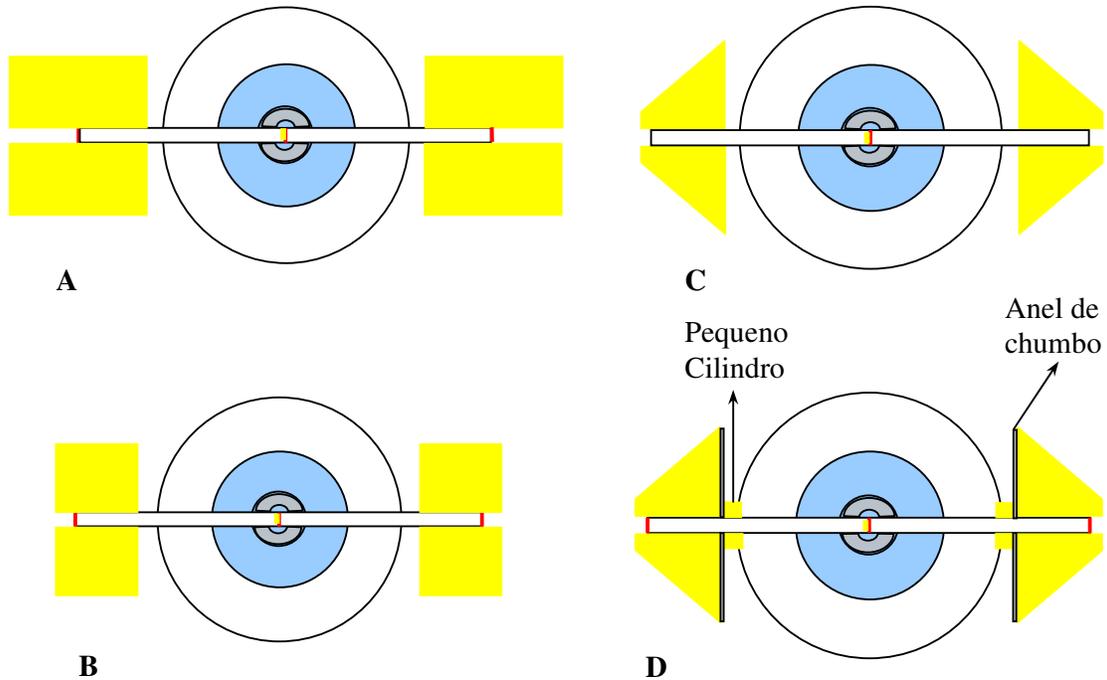


Figura 6.5 – Geometrias cilíndricas e cónicas propostas para os blocos absorvedores de neutrões consideradas nas simulações.

A – Cilindro de referência. B – Cilindro menor. C – Cone. D – Cone + pequeno cilindro + Pb

Na figura anterior se retirarmos ao esquema D o anel de chumbo e alongarmos o cilindro pequeno 1 cm obtém-se a geometria 4) da tabela 6.2.

Capítulo 7

Simulações Monte Carlo utilizando o código GEANT4

Com o objectivo de estudar e prever o ruído de fundo associado aos neutrões dispersos nas janelas do tubo de feixe e porta amostras, foram implementadas no pacote de programas de simulação GEANT4, as geometrias e materiais constituintes das diversas configurações do sistema de absorção de neutrões discutidas no Capítulo 6. A simulação Monte Carlo efectuada incluiu a descrição detalhada das geometrias e materiais constituintes de todo o “setup” experimental (tubo de feixe, sistema porta-amostra, elementos absorvedores e calorímetro) e dos processos físicos envolvidos. A reconstrução dos eventos no calorímetro já tinha sido previamente simulada mas será descrita adiante neste capítulo. Foi também introduzida uma modelação simples das paredes constituintes da área experimental por forma a estudar o seu contributo no ruído de fundo devido à dispersão de neutrões.

Foram usados os modelos desenvolvidos no CIEMAT para a geração de eventos de captura e para a geração da distribuição angular de neutrões dispersos elasticamente por um núcleo. Os neutrões foram gerados numa amostra de ^{235}U e nas janelas do tubo de feixe consideradas constituídas por núcleos de ^{27}Al .

O espectro em energia dos neutrões incidentes cobre o intervalo entre 1 eV e 1 MeV e obedece à conhecida distribuição de fluência de energia no espectrómetro TOF (ver fig. 3.9). A distribuição espacial obedece a uma gaussiana bidimensional semelhante à da área experimental em n_TOF (ver fig. 3.8).

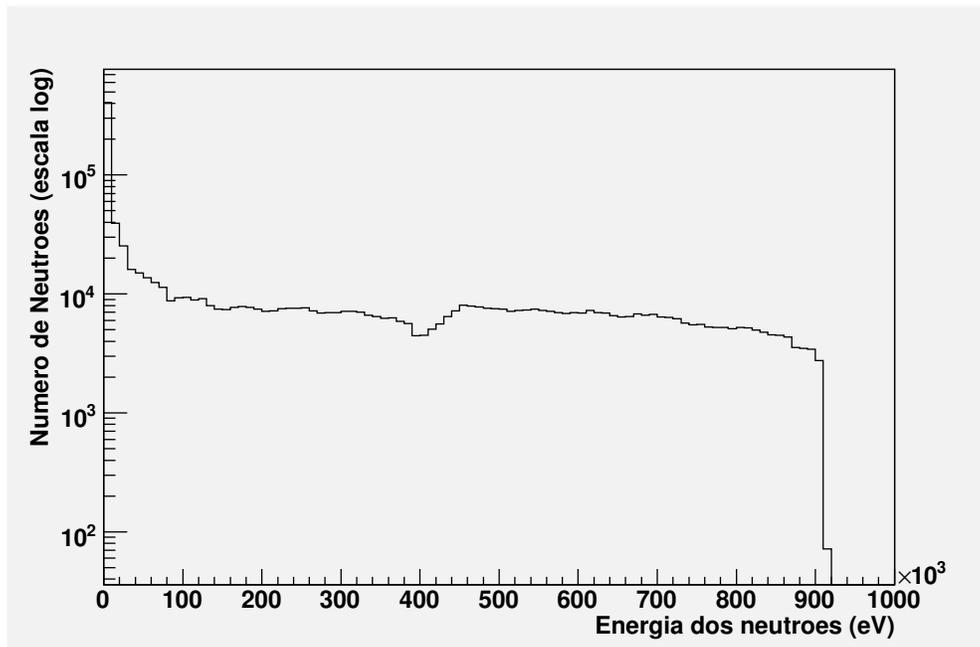


Fig. 7.1 – Espectro de energia dos nêutrons do tubo de feixe na área experimental de n_TOF .

7.1 Geometria

A estrutura complexa dos 40 cristais de BaF_2 está implementada no código de simulação na classe do utilizador *G4VUserDetectorConstruction*. Os cristais encontram-se envolvidos num reflector formado por uma fina camada de 0,3 mm de Teflon e 0,3 mm de alumínio e são posteriormente encapsulados num material enriquecido com boro, os fotomultiplicadores também estão presentes na simulação. Todo o dispositivo do detector, incluindo o absorvedor de nêutrons e o tubo de feixe fazem parte da geometria do TAC. Para a configuração de 2004 do tubo de feixe está incluído o porta amostras de titânio.

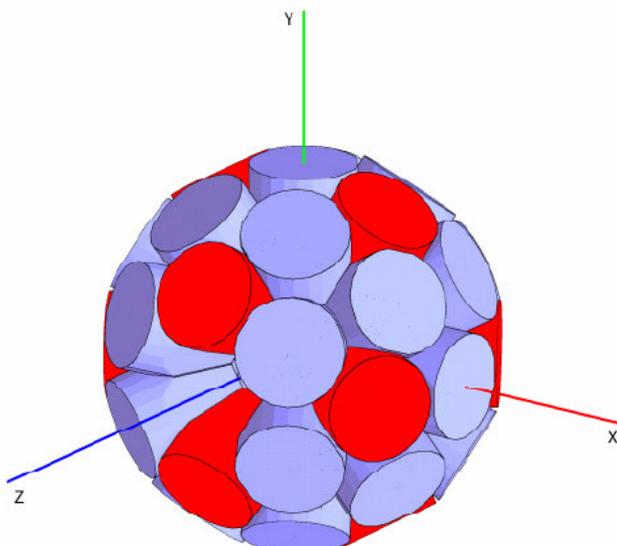


Fig. 7.2 – Vista tridimensional da geometria dos cristais simulada com o Geant4 [26].

Foi feita uma modelização simples das paredes da área experimental para estudar a sua influência no ruído de fundo causado pela dispersão de neutrões e absorção nos isótopos das paredes. O material considerado das paredes foi o betão descrito no “Particle Physics Booklet” [43] como sendo o “shielding concrete”. As paredes têm 2 m de espessura e possuem as mesmas posições e inclinações das paredes da área experimental de n_TOF.

A geometria para as diferentes configurações do tubo de feixe e porta amostras bem como os blocos de absorvedores de neutrões adicionais encontra-se esquematizada nas figuras 6.3 a 6.5.

7.2 Physics List

Na classe do utilizador *G4VuserPhysicsList* é possível seleccionar as partículas e os processos físicos que se querem implementar na simulação, assumindo dessa forma um compromisso entre o detalhe nos modelos usados e a optimização da velocidade de execução do programa. Na simulação aqui descrita todas as partículas e processos físicos foram criados no código de uma forma automática na classe do utilizador *G4VuserPhysicsList*, através dos métodos *ConstructAllParticles* e *ConstructAllProcesses* disponíveis na versão 6 do Geant4. No transporte de neutrões

estão incluídos diversos modelos, pois torna-se menos prático implementar apenas aqueles que são necessários.

Como se trata de um código com uma filosofia de programação orientada por objectos é possível incluir classes criadas pelo utilizador com descrições alternativas ou suplementares de modelos físicos. Nas simulações efectuadas encontra-se incluída na lista dos processos hadrónicos um programa de simulação de cascatas electromagnéticas resultantes do processo de captura neutrónica radiativa. A classe construída interage com a classe do Geant4 *G4ReactionProductVector*.

Como foi referido no capítulo 5 o Geant4 simula o processo de captura neutrónica radiativa, ou através do conhecimento de todos os valores das probabilidades de transição dos níveis nucleares ou usando valores tabelados nos ficheiros das bibliotecas de dados de secções eficazes nucleares ENDF^{††††††}. No entanto o uso destas bibliotecas não inclui propriedades importantes tais como:

- 1) A conservação da energia total da cascata de fotões,

$$E_{sum} = S_n + \frac{A}{A+1} E_n \quad (2.10)$$

- 2) A correlação entre a multiplicidade da cascata e a sua energia total.

O modelo criado pelo grupo do CIEMAT é simples e reproduz bem alguns dos dados experimentais relevantes, com uma precisão inferior a 5% [26]. Além disso permite a inclusão de diversos isótopos na simulação, que o modelo por defeito do GEANT4 não permite. Cada isótopo presente e de importância particular no processo de captura neutrónica radiativa é incluído no ficheiro de dados que é lido pelo gerador de eventos de captura. Este ficheiro de dados inclui as seguintes propriedades dos isótopos:

- Z (número atómico), A (número de massa) e símbolo químico de cada núcleo composto [44];
- Parâmetros A e δ da *back-shifted* fórmula de densidade de níveis de um gás de Fermi (recomendação RIPL1) [45];
- Energia de separação do neutrão do núcleo composto (tabelas de massa de Audi-Wapstra) [46];
- Parâmetro β_2 de deformação nuclear (cálculos Möller-Nix) [47];
- Spin e Paridade do estado fundamental do núcleo progenitor (ficheiros ENSDF) [48];
- Spin e Paridade do estado fundamental do núcleo composto (ficheiros ENSDF) [48];

^{††††††} ENDF – Evaluated Nuclear Data File, versão actual ENDF/B-VII

- Energia do primeiro estado excitado do núcleo composto (ficheiros ENDSF) [48].

As cascatas de raios gama são geradas através da média das razões de bifurcação obtidas pela densidade de níveis e forças de transição. A densidade de níveis é calculada de acordo com a *back-shifted* fórmula de densidade de níveis de um gás de Fermi e as forças de transição são obtidas pelos valores recomendados dos parâmetros da ressonância gigante de carácter dipolar para as transições E1, M1 e E2. O modelo não inclui o processo de conversão interna [26,49].

7.3 Primary Generator Action

A classe *PrimaryGeneratorAction* inclui modelos típicos de geração de partículas previamente definidos no código fonte mas podem ser incluídos modelos mais elaborados criados pelo utilizador. Um dos modelos incluídos na simulação é o de geração de neutrões dispersos por um dado isótopo. Este modelo é uma classe que herda as propriedades da classe do utilizador *G4VUserPrimaryGeneratorAction*.

Os neutrões são gerados num intervalo de energia entre 1 eV e 1 MeV de acordo com a parametrização da fluência de energia bem conhecida e medida em n_TOF. Um ficheiro de dados relativos ao fluxo é lido e amostrado durante a simulação. Os neutrões são criados na área experimental com uma distribuição espacial que obedece a uma gaussiana bidimensional semelhante à da área experimental em n_TOF e possuem um tempo de voo associado ao percurso de 185 m do túnel do tubo de feixe.

O ângulo de dispersão de um neutrão em relação a um núcleo (A,Z) é calculado no referencial centro de massa e obedecendo a uma distribuição isotrópica. Seguidamente o momento dos neutrões dispersos é transportado para o referencial de laboratório.

7.4 Classes do utilizador não obrigatórias

Diversas classes são usadas para construir e extrair informação do código de simulação. O código GEANT4 permite a construção de tipos especiais de classes no código, os chamados *SensitiveDetectors* ou Volumes Sensíveis. Estes são responsáveis por construir os *hits* que correspondem a um conjunto específico de métodos de

extração da informação criado pelo utilizador. Uma classe do tipo *SensitiveDetector* está associada a um ou mais volumes ou material da geometria. De cada vez que uma partícula atravessa um volume sensível, o kernel é responsável por chamar a classe de *SensitiveDetector* correspondente, que implementa a geração de algoritmos do *hit*.

No código usado a reconstrução do sinal no calorímetro foi feita recorrendo ao uso de volumes sensíveis, a reconstrução dos eventos é baseada nas limitações reais associadas ao detector. Um volume sensível foi criado e associado aos cristais de BaF₂. Um *hit* é produzido quando a passagem de uma partícula num cristal de BaF₂ deposita uma quantidade de energia superior a 50 keV. Nessa situação abre-se uma janela temporal de 20 ns (porque o Geant4 simula em tempo real) e guardam-se todos os registos associados à deposição de energia superior a 50 keV nos cristais de BaF₂. O conjunto dos registos guardados nessa janela temporal constitui um evento. A multiplicidade de um evento corresponde ao número de cristais que se encontram nas especificações do *hit* na janela temporal de 20 ns.

A informação é extraída através das classes do utilizador *G4VuserRunAction*, *G4VuserSteppingAction*, *G4VuserEventAction* e *G4VuserTrackingAction*, de acordo com a hierarquia descrita na secção 5.1.2 do capítulo 5. A informação extraída é a seguinte:

- Energia do neutrão incidente;
- Tempo de voo do neutrão incidente calculado relativamente ao percurso do túnel de n_TOF (185 m);
- Tempo de voo do neutrão incidente associado ao código de simulação, que inclui o percurso do túnel e moderação do neutrão após a sua criação;
- Energia total depositada nos cristais que foram atravessados pelos neutrões nas condições de geração de um *hit*;
- Energia total depositada nos cristais convoluída com a Gaussiana correspondente à resolução em energia do TAC.
- Número de cristais que produzem os registos do *hit* e que correspondem à multiplicidade do sinal.

Esta informação é manipulada usando a ferramenta para análise de dados baseada em programação orientada por objectos ROOT. A informação é agrupada num ficheiro binário e rearranjada numa n_tuple do ROOT. Esta ferramenta permite a construção de histogramas e outras funções usando a informação ordenada [50].

7.5 Submissão dos trabalhos

As simulações correram no “cluster” *LINCE* do CIEMAT, constituído por mais de 120 CPUs do tipo Pentium 4 que funcionam em paralelo [51].

Verificou-se que as simulações consumiam muito tempo na sua execução devido à introdução das paredes de cimento a envolver a área experimental e portanto com maior probabilidade de sofrer uma interrupção por razões técnicas do “cluster”. A uma simulação com 1 milhão de eventos está associado um intervalo de tempo superior a um dia. Por esta razão introduziu-se no código a possibilidade de guardar o valor da semente associada ao evento em intervalos de 1 milhão de eventos. Recomeçando a simulação seguinte a partir desse valor da semente, constroem-se resultados agrupados e consecutivos em intervalos de 1 milhão.

No tratamento dos dados é possível construir a informação ordenada recorrendo à construção de uma *chain* no ROOT.

Capítulo 8

Análise de Resultados

8.1 Probabilidade de detecção de um neutrão disperso

A probabilidade de detectar, no TAC, um neutrão disperso num dos materiais da área experimental, foi calculada como a razão entre o número de neutrões dispersos que originam uma deposição de energia total no TAC entre 1 MeV e 10 MeV e o número total de neutrões dispersos gerados.

Os neutrões são gerados na posição onde se pretende simular a dispersão, de acordo com a descrição feita na secção 7.3 do capítulo 7. Simulou-se a dispersão numa amostra de ^{235}U no porta-amostra e nas janelas interiores e exteriores do tubo de feixe, consideradas constituídas por núcleos de ^{27}Al , o principal material constituinte do kapton.

Se um neutrão disperso, na sua passagem pelo detector ou através dos produtos resultantes das suas interacções, depositar uma energia no TAC entre 1 MeV e 10 MeV, isto significa que irá produzir um sinal no detector semelhante ao sinal resultante de fotões provenientes de uma interacção de captura neutrónica na amostra e consequentemente originará ruído de fundo (ou seja, contagens falsas que serão interpretadas como correspondendo a um evento real) no espectro de contagens de interacções (em função do tempo de voo ou equivalentemente da energia do neutrão incidente) que é posteriormente utilizado para determinar as secções eficazes associadas a esta reacção. Assume-se que energias totais depositadas no TAC entre 1 MeV e 10 MeV correspondem à soma das energias dos fotões de uma cascata de captura neutrónica na amostra. Abaixo de 1 MeV, assume-se que a deposição de energia no

TAC está associada a pequenas transferências de energia dos núcleos de recuo, produtos da interacção com neutrões de altas energias.

A contribuição da dispersão em outros elementos no interior do TAC, tais como o porta amostras de titânio usado na configuração existente em 2004 e a folha de alumínio onde será depositada a amostra do novo porta-amostras a utilizar, pode ser *estimada* tendo em conta que se constatou que a probabilidade de detecção de um neutrão disperso no interior do TAC é semelhante (inferior a 3%) quando se compara a dispersão numa amostra de ^{235}U e numa janela de ^{27}Al (ambos situados no interior do TAC mas a uma distância de 10 mm ou 4mm). Desta forma, o cálculo da probabilidade de dispersão pode ser feito através, dos valores de secção eficaz elástica para os diferentes isótopos e intervalos de energia do neutrão incidente, e da quantidade de núcleos que podem originar uma dispersão. A razão entre este produto para dois elementos dispersores diferentes resulta numa comparação entre probabilidades de dispersão.

$$\frac{\sigma_{el}(\text{el. disp. 1}) \times n_{at}(\text{el. disp. 1})}{\sigma_{el}(\text{el. disp. 2}) \times n_{at}(\text{el. disp. 2})} = X \quad (8.1)$$

X = razão nas probabilidades de dispersão

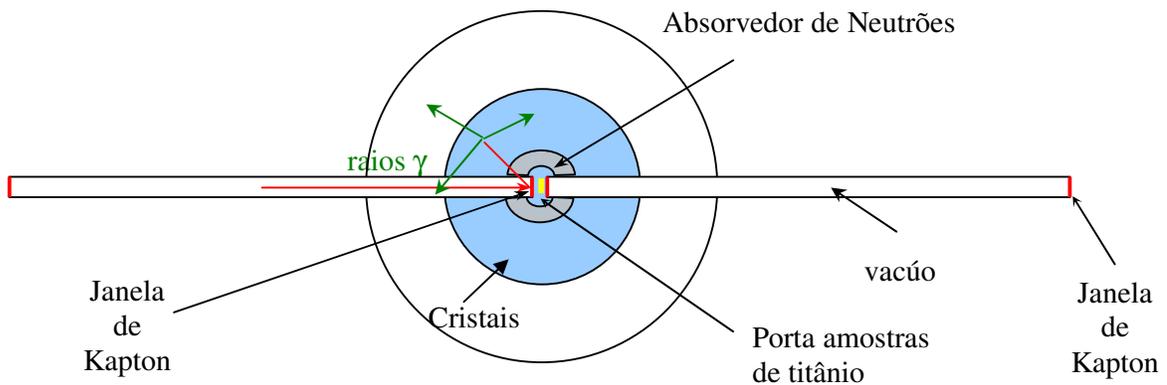


Figura 8.1 – Esquema da configuração do tubo de feixe e porta amostras usada em 2004. O porta amostras é constituído por titânio e está localizado no centro geométrico do TAC, em redor do porta amostras está ar. As janelas interiores de kapton encontram-se a 4 mm e 10 mm do porta amostras de titânio.

8.2 Energia total depositada no TAC devida a neutrões dispersos na amostra

Na apresentação dos resultados que é efectuada seguidamente, a deposição de energia total no calorímetro é discriminada para diferentes intervalos de energia do neutrão disperso. São considerados seis intervalos de energia que correspondem a seis décadas de energia do neutrão incidente entre 1 eV e 1 MeV:

- de 1 eV a 10 eV
- de 10 eV a 100 eV
- de 100 eV a 1 keV
- de 1 keV a 10 keV
- de 10 keV a 100 keV
- de 100 keV a 1 MeV

Para cálculos utilizando a amostra de ^{235}U apresentam-se resultados para os seis intervalos, enquanto que para os restantes cálculos, apresentam-se resultados somente para os três primeiros intervalos e um resultado global correspondente a todo o intervalo de energia entre 1 eV e 1 MeV. O limite superior (1 MeV) é imposto pelas características do espectrómetro e pela electrónica dos detectores (nomeadamente o tempo de recuperação das FADCs na sequência do “gamma flash” que é de alguns micro-segundos não permitindo registar fiavelmente as interacções de neutrões mais rápidos), enquanto que o limite inferior (cerca de 1 eV) é imposto pela capacidade (8 MB de memória dos módulos do sistema de aquisição) de armazenamento dos sinais digitizados a uma taxa de amostragem^{*****} que pode ir até 1-2 GHz, fazendo com que o sistema de aquisição de dados funcione somente durante 16 milisegundos após o feixe de prótons incidir no alvo de espalação.

As figuras seguintes correspondem ao espectro de energia total depositada no TAC para diferentes intervalos de energia do neutrão disperso.

***** Sampling rate

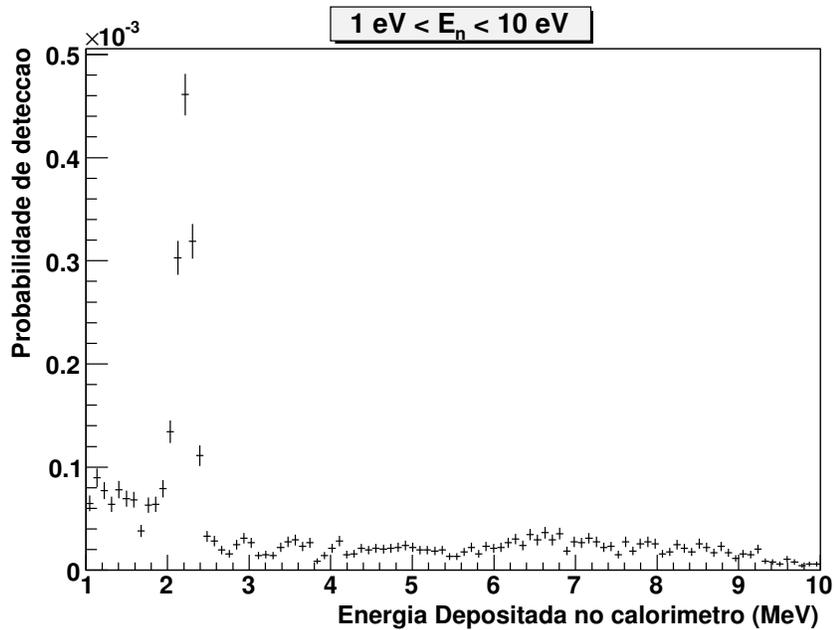


Figura 8.2 – Probabilidade de detecção em função da energia total depositada no TAC para neutrões dispersos numa amostra de ^{235}U localizada no interior do TAC e no porta amostras de titânio. Intervalo de energia cinética do neutrão entre 1 eV a 10 eV.

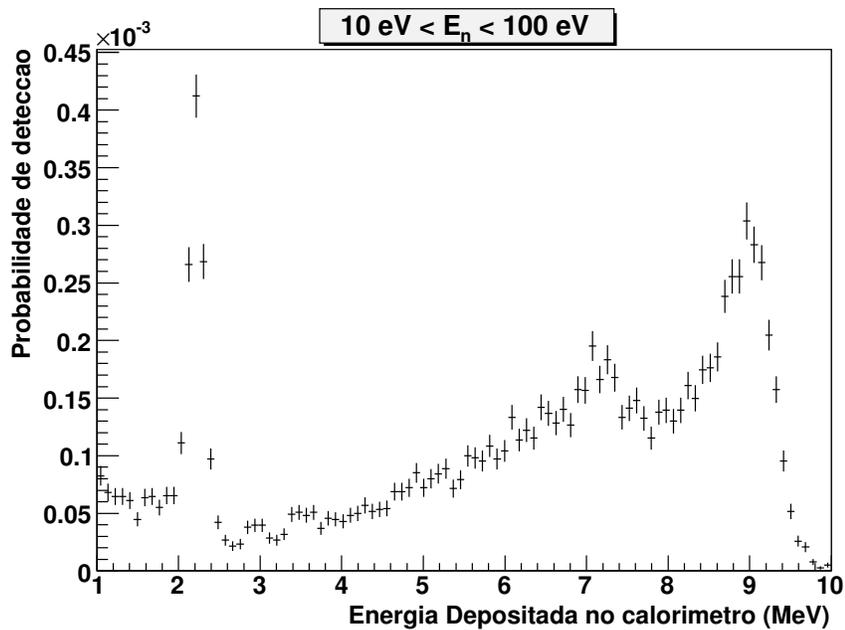


Figura 8.3 – Probabilidade de detecção em função da energia total depositada no TAC para neutrões dispersos numa amostra de ^{235}U localizada no interior do TAC e no porta amostras de titânio. Intervalo de energia cinética do neutrão entre 10 eV a 100 eV.

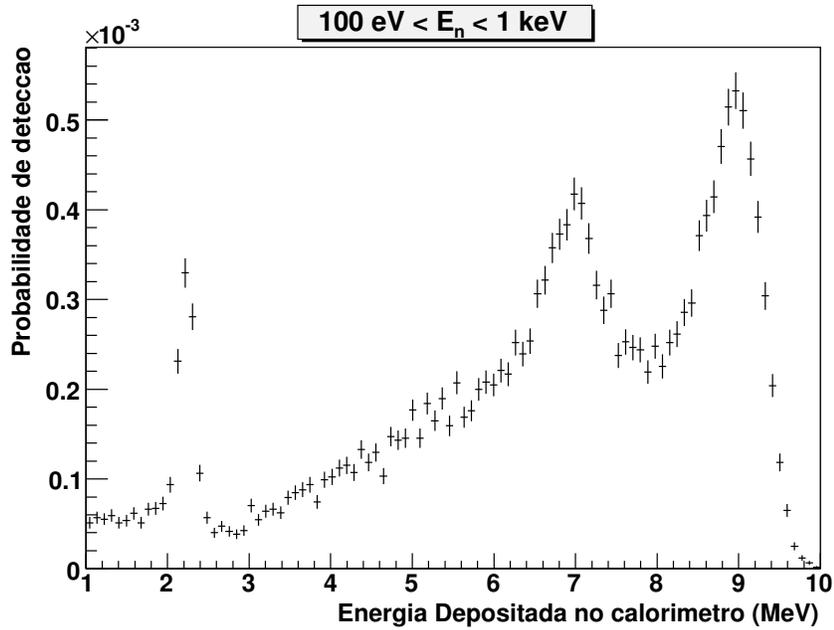


Figura 8.4 – Probabilidade de detecção em função da de energia total depositada no TAC para neutrões dispersos numa amostra de ^{235}U localizada no interior do TAC e no porta amostras de titânio. Intervalo de energia cinética do neutrão entre 100 eV a 1 keV.

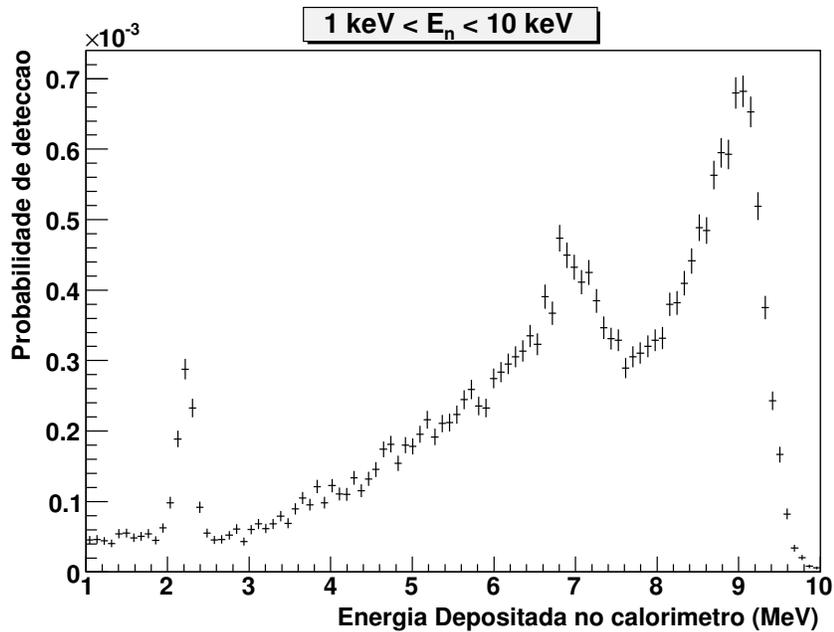


Figura 8.5 – Probabilidade de detecção em função da energia total depositada no TAC para neutrões dispersos numa amostra de ^{235}U localizada no interior do TAC e no porta amostras de titânio. Intervalo de energia cinética do neutrão entre 1 keV a 10 keV.

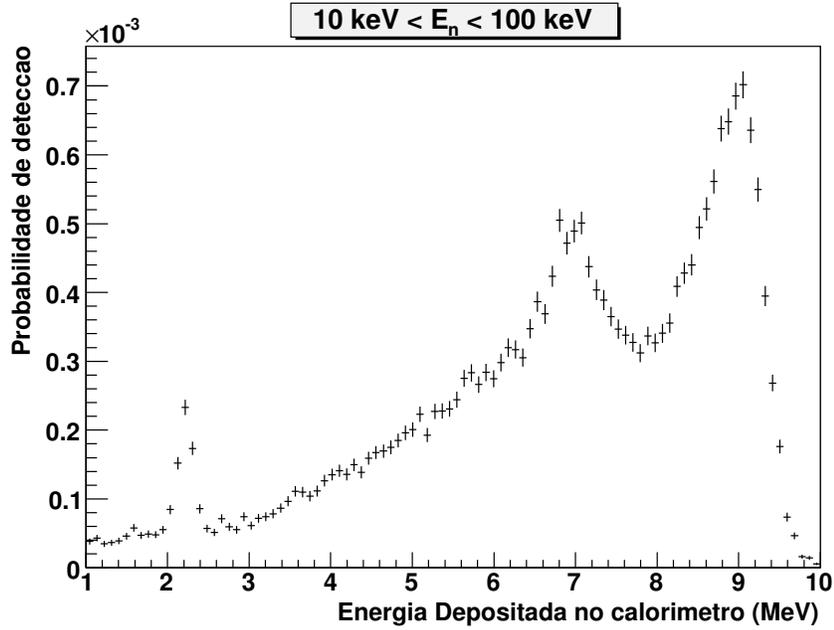


Figura 8.6 – Probabilidade de detecção em função da energia total depositada no TAC para neutrões dispersos numa amostra de ²³⁵U localizada no interior do TAC e no porta amostras de titânio. Intervalo de energia cinética do neutrão entre 10 eV a 100 keV.

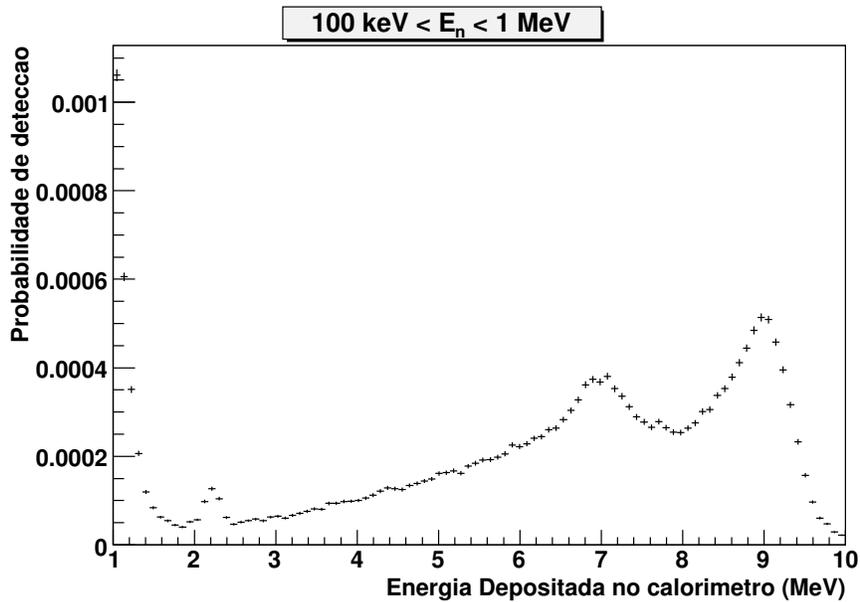


Figura 8.7 – Probabilidade de detecção em função da energia total depositada no TAC para neutrões dispersos numa amostra de ²³⁵U localizada no interior do TAC e no porta amostras de titânio. Intervalo de energia cinética do neutrão entre 100 keV a 1 MeV.

Podem-se observar nas figuras:

- As contribuições típicas dos eventos resultantes da captura neutrónica nos isótopos de bário (correspondentes aos dois picos característicos à direita nos gráficos). A captura neutrónica no isótopo ^{135}Ba origina uma cascata de fótons de energia total de 9,1 MeV enquanto que os isótopos $^{134,136}\text{Ba}$ originam cascatas de energia total 6,9 MeV.
- O pico de 2,2 MeV observado corresponde à soma das energias dos fótons resultantes da cascata subsequente à captura no hidrogénio presente no absorvedor de neutrões esférico colocado no interior do calorímetro e constituído por $\text{C}_{12}\text{H}_{20}\text{O}_4(^6\text{Li})_2$. Este pico de absorção no hidrogénio é mais visível para neutrões de baixas energias e perde importância (relativamente aos outros picos) com o aumento de energia do neutrão.

8.3 Energia total depositada no TAC devida a neutrões dispersos nos elementos do tubo de feixe

As figuras que se seguem representam a energia total depositada no calorímetro na sequência de dispersão de neutrões nas janelas do tubo de feixe. São incluídas nas figuras as contribuições devidas a dispersão nas janelas interiores e exteriores do tubo de feixe de neutrões da configuração usada em 2004 bem como a contribuição devida a dispersão nas janelas da nova configuração do tubo de feixe de neutrões proposta para a próxima campanha experimental que se iniciará em 2008 (sem qualquer sistema absorvedor de neutrões).

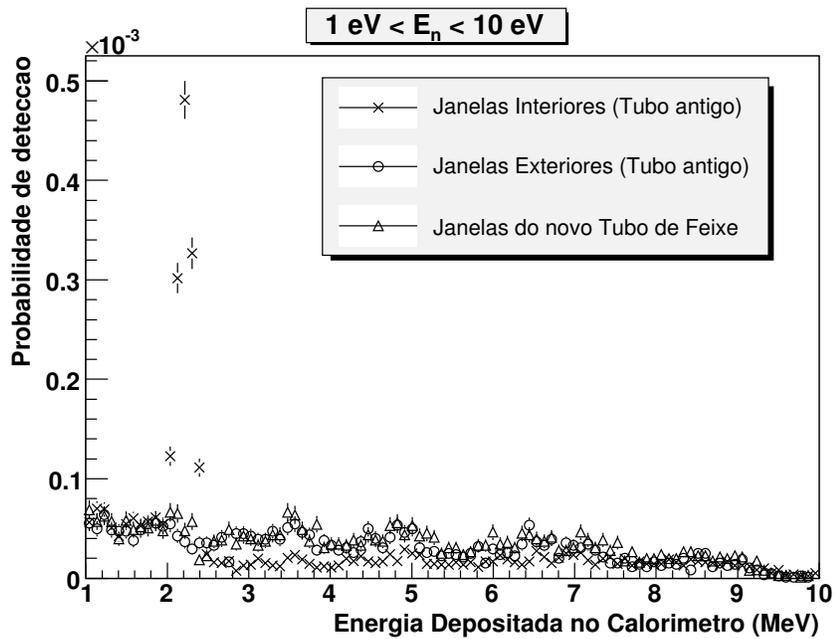


Figura 8.8: Probabilidade de detecção em função da energia total depositada no TAC, correspondente a neutrões dispersos nas janelas do tubo de feixe com energias cinéticas compreendidas entre 1 eV e 10 eV, para a configuração do tubo de feixe utilizada em 2004 e para a nova configuração proposta para entrar em funcionamento em 2008 sem absorvedores adicionais.

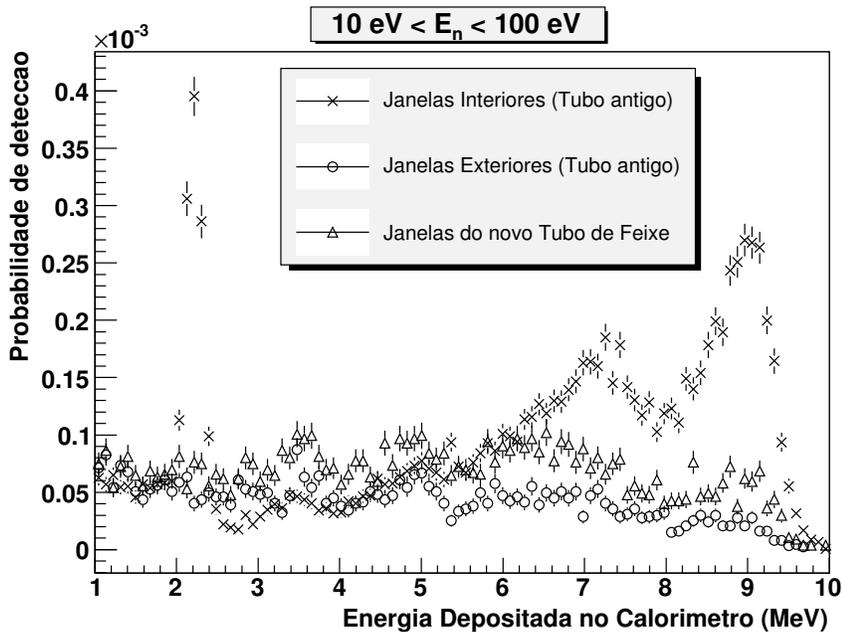


Figura 8.9: Probabilidade de detecção em função da energia total depositada no TAC, correspondente a neutrões dispersos nas janelas do tubo de feixe com energias cinéticas compreendidas entre 10 eV e 100 eV, para a configuração do tubo de feixe utilizada em 2004 e para a nova configuração proposta para entrar em funcionamento em 2008, sem absorvedores adicionais.

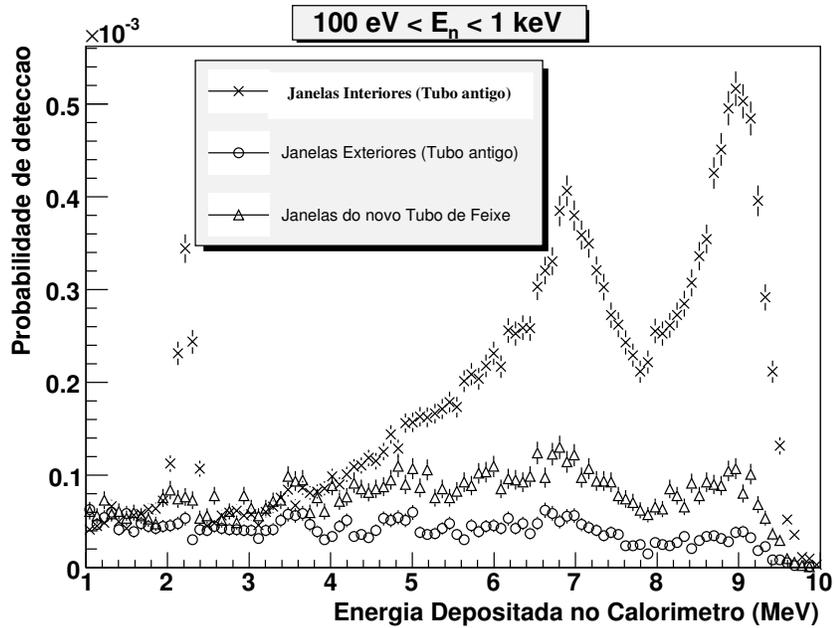


Figura 8.10: Probabilidade de detecção em função da energia total depositada no TAC, correspondente a neutrons dispersos nas janelas do tubo de feixe com energias cinéticas compreendidas entre 100 eV e 1 keV, para a configuração do tubo de feixe utilizada em 2004 e para a nova configuração proposta para entrar em funcionamento em 2008, sem absorvedores adicionais.

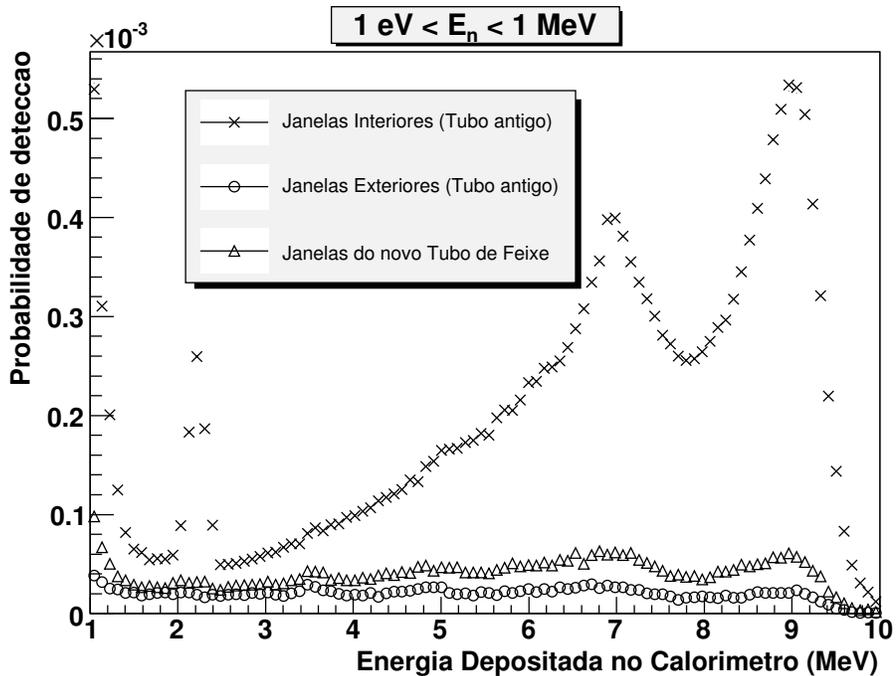


Figura 8.11: Probabilidade de detecção em função da energia total depositada no TAC, correspondente a neutrons dispersos nas janelas do tubo de feixe em todo o intervalo de energias simuladas, entre 1 eV e 1 MeV, para a configuração do tubo de feixe utilizada em 2004 e para a nova configuração proposta para entrar em funcionamento em 2008, sem absorvedores adicionais.

As figuras evidenciam que quando o elemento dispersor se encontra no interior do TAC, como é o caso das janelas interiores do antigo tubo de feixe de neutrões, a probabilidade de detecção de um neutrão disperso é mais elevada. Os picos observados, correspondentes à captura nos isótopos ^{135}Ba , $^{134,136}\text{Ba}$ e ^1H , descritos anteriormente para a amostra de ^{235}U , são também observados para o caso da dispersão nas janelas interiores de ^{27}Al .

Como esperado, na ausência de sistema absorvedor de neutrões no exterior do calorímetro, verifica-se que a probabilidade de detecção de neutrões dispersos nas janelas exteriores da nova configuração do tubo de feixe é superior à probabilidade de detecção de neutrões dispersos nas janelas exteriores do tubo existente em 2004, devido à sua (das janelas) maior proximidade do calorímetro na nova configuração.

A Tabela 8.1 resume os valores calculados da probabilidade de detecção e respectivas incertezas estatísticas, para as duas configurações do tubo de feixe.

Configuração		Probabilidade de detecção em todo o intervalo de energia do neutrão disperso
Tubo de feixe antigo	Janelas Interiores de Alumínio	$(2.0 \pm 0.004) \times 10^{-2}$
	Janelas Exteriores de Alumínio	$(2.0 \pm 0.01) \times 10^{-3}$
Novo tubo de feixe		$(4.0 \pm 0.02) \times 10^{-3}$
Configuração		Probabilidade de detecção no intervalo $1\text{eV} < E_n < 10\text{ eV}$
Tubo de feixe antigo	Janelas Interiores de Alumínio	$(3.3 \pm 0.05) \times 10^{-3}$
	Janelas Exteriores de Alumínio	$(3.0 \pm 0.06) \times 10^{-3}$
Novo tubo de feixe		$(3.5 \pm 0.07) \times 10^{-3}$
Configuração		Probabilidade de detecção no intervalo $10\text{ eV} < E_n < 100\text{ eV}$
Tubo de feixe antigo	Janelas Interiores de Alumínio	$(1.0 \pm 0.009) \times 10^{-2}$
	Janelas Exteriores de Alumínio	$(4.1 \pm 0.07) \times 10^{-3}$
Novo tubo de feixe		$(6.7 \pm 0.09) \times 10^{-3}$
Configuração		Probabilidade de detecção no intervalo $100\text{ eV} < E_n < 1\text{ keV}$
Tubo de feixe antigo	Janelas Interiores de Alumínio	$(1.9 \pm 0.009) \times 10^{-2}$
	Janelas Exteriores de Alumínio	$(3.9 \pm 0.06) \times 10^{-3}$
Novo tubo de feixe		$(7.7 \pm 0.1) \times 10^{-3}$

Tabela 8.1- Probabilidade de detecção para as duas configurações do tubo de feixe, os erros apresentados são de natureza estatística.

A probabilidade de detecção associada à dispersão de um neutrão incidente numa janela interior de ^{27}Al é 5 vezes superior relativamente à mesma grandeza para uma janela do novo tubo de feixe, para todo o intervalo de energia dos neutrões. A incerteza estatística relativa^{§§§§§§} associada a esta razão é da ordem dos 1%.

A razão nas probabilidades de detecção é variável com a energia do neutrão incidente, sendo inferior para energias mais baixas dos neutrões dispersos e crescendo com o aumento da energia do neutrão.

8.4 Energia total depositada no TAC devida a neutrões dispersos no seu interior

A partir dos resultados apresentados nas secções anteriores, pode concluir-se que a probabilidade de detectar no TAC um neutrão disperso numa amostra (ex. ^{235}U) é aproximadamente idêntica (inferior a 3%) à probabilidade de detectar um neutrão disperso em qualquer elemento no interior do TAC (ex. ^{27}Al). No entanto o número de neutrões que irão ser dispersos em cada um destes elementos depende da secção eficaz elástica dos isótopos constituintes em função da energia do neutrão incidente e do número de núcleos presentes no elemento dispersor.

Como já foi descrito anteriormente durante o período de medidas de 2004, o dispositivo de detecção na área experimental consistia para além do tubo de feixe descontínuo também num porta-amostras de titânio que encaixava num dos lados do tubo. A amostra estava contida no interior do porta-amostras de titânio, entre duas lâminas de kapton.

Para determinar a contribuição para o ruído de fundo do porta-amostras de titânio, folhas de alumínio e ar no antigo dispositivo e compará-la com a contribuição correspondente na nova configuração do tubo de feixe com uma folha de alumínio onde se encontra fixada a amostra, estudou-se a dependência da secção eficaz de dispersão elástica com a energia do neutrão incidente para cada um dos materiais constituintes. Calculou-se também o número de átomos presentes em cada um dos elementos

$$\frac{\Delta\left(\frac{y}{x}\right)}{\frac{y}{x}} = \sqrt{\left(\frac{\Delta y}{y}\right)^2 + \left(\frac{\Delta x}{x}\right)^2}$$

dispersores. Seguidamente comparou-se o produto destas grandezas, tal como indicado na equação 8.1.

A dependência de uma secção eficaz elástica exhibe o comportamento típico com ressonâncias para certos valores de energia do neutrão incidente. Até 1 keV a secção eficaz elástica σ_{el} de todos os isótopos constituintes do titânio (73,8% ^{48}Ti , 8% ^{46}Ti , 7,3% ^{47}Ti , 5,5% ^{49}Ti , 5,4% ^{50}Ti) tem um comportamento constante [49], tal como a secção eficaz elástica do ^{27}Al , (embora tenha pequenas variações de valor mudando de biblioteca) o que permite estimar como contribuição para o titânio comparativamente ao alumínio uma razão de:

- $1,6 \pm 0,3$ para energias do neutrão incidente no intervalo $1 \text{ eV} < E_n < 1 \text{ keV}$ (ENDF e JENDL a 300 Kelvin);
- $1,9 \pm 0,2$ para energias do neutrão incidente no intervalo $1 \text{ eV} < E_n < 1 \text{ keV}$ (JEFF a 300 Kelvin);

Adicionando esta contribuição no ruído de fundo devido à dispersão de neutrões à contribuição do excesso de ar em torno do antigo porta amostras (o peso da contribuição calculada incide no isótopo ^{14}N , principal contituente do ar e ^{16}O) obtém-se para o intervalo de energias entre 1 eV e 1 keV a contribuição [49,52]:

- $2,0 \pm 0,3$ (ENDF e JENDL a 300 Kelvin);
- $2,3 \pm 0,2$ (JEFF a 300 Kelvin).

Verifica-se então que no antigo tubo de feixe encontram-se seis vezes mais elementos dispersores: porta amostras de titânio, ar, duas folhas de alumínio em torno da amostra e 2 janelas do tubo de feixe, quando comparado com o novo tubo de feixe.

Quando a comparação é feita entre uma amostra de ^{235}U com as dimensões e massa usadas em n_TOF e uma janela de ^{27}Al com as dimensões das janelas do tubo de feixe de neutrões, o resultado será dependente da energia do neutrão disperso. Em média, no intervalo de energia $1 \text{ eV} < E_n < 1 \text{ MeV}$, considera-se que o número de neutrões dispersos numa amostra é cerca de 100 vezes superior comparativamente ao número de neutrões dispersos numa janela interior do antigo tubo de feixe. Portanto a contribuição da dispersão nos elementos do antigo tubo de feixe é cerca de 6% comparativamente com o efeito de dispersão na amostra.

8.5 Escolha do material para o elemento absorvedor

Os valores da probabilidade de detecção da tabela 8.1 para neutrões dispersos nas janelas exteriores permitem concluir que para a nova configuração do tubo de feixe se verifica um aumento por um factor de 2 da probabilidade de detecção relativamente à configuração existente, devido ao factor proximidade. Este factor justifica a implementação de um dispositivo moderador e absorvedor de neutrões em torno do novo tubo de feixe com vista à mitigação de tal aumento da probabilidade de detecção. Para o estudo do material absorvedor mais adequado, simulou-se um dispositivo constituído por dois cilindros ocios com 50 cm de comprimento e 27.5 cm de raio exterior situados em cada lado do TAC envolvendo o tubo de feixe de neutrões.

Para esta geometria do sistema absorvedor de neutrões, três materiais foram simulados para estudar o seu efeito nos valores de probabilidade de detecção:

- polietileno dopado com 7.5% de Lítio, polietileno dopado com 10% de Boro e polietileno dopado com 5% de Boro.

Os resultados das simulações Monte Carlo efectuadas encontram-se expostos nas figuras seguintes para diferentes intervalos de energia dos neutrões incidentes dispersos.

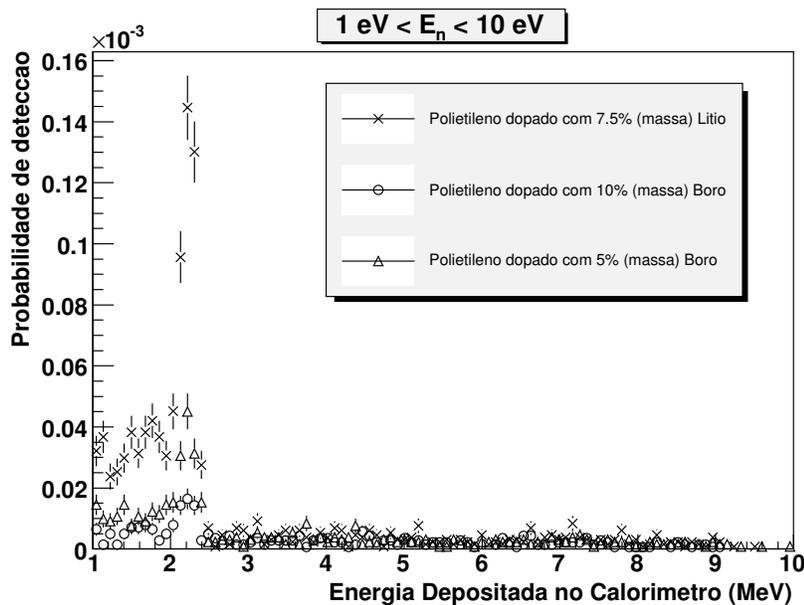


Figura 8.12 – Probabilidade de detecção em função da energia total depositada no TAC, correspondendo a neutrões dispersos nas janelas exteriores do novo tubo de feixe, para neutrões incidentes com energias cinéticas entre 1 eV e 10 eV, para três materiais diferentes que constituem um dispositivo absorvedor de neutrões de forma cilíndrica.

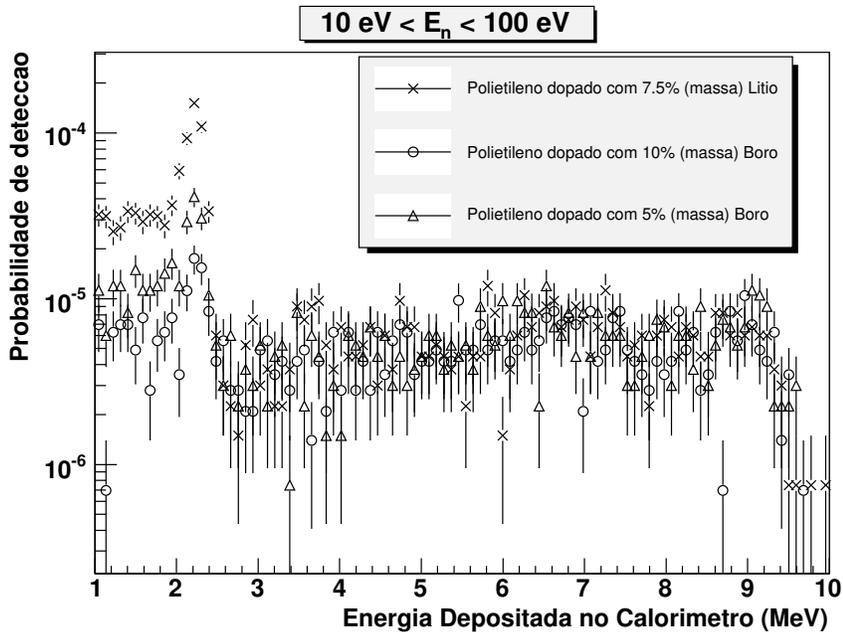


Figura 8.13 – Probabilidade de detecção em função da energia total depositada no TAC, correspondendo a neutrões dispersos nas janelas exteriores do novo tubo de feixe, para neutrões incidentes com energias cinéticas entre 10 eV e 100 eV, para três materiais diferentes que constituem um dispositivo absorvedor de neutrões de forma cilíndrica.

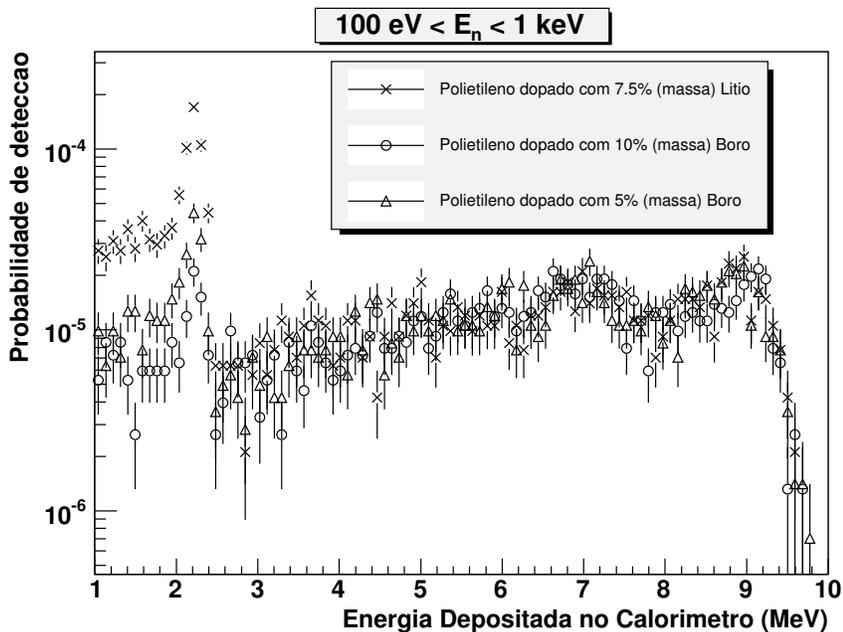


Figura 8.14 – Probabilidade de detecção em função da energia total depositada no TAC, correspondendo a neutrões dispersos nas janelas exteriores do novo tubo de feixe, para neutrões incidentes com energias cinéticas entre 100 eV e 1 keV, para três materiais diferentes que constituem um dispositivo absorvedor de neutrões de forma cilíndrica.

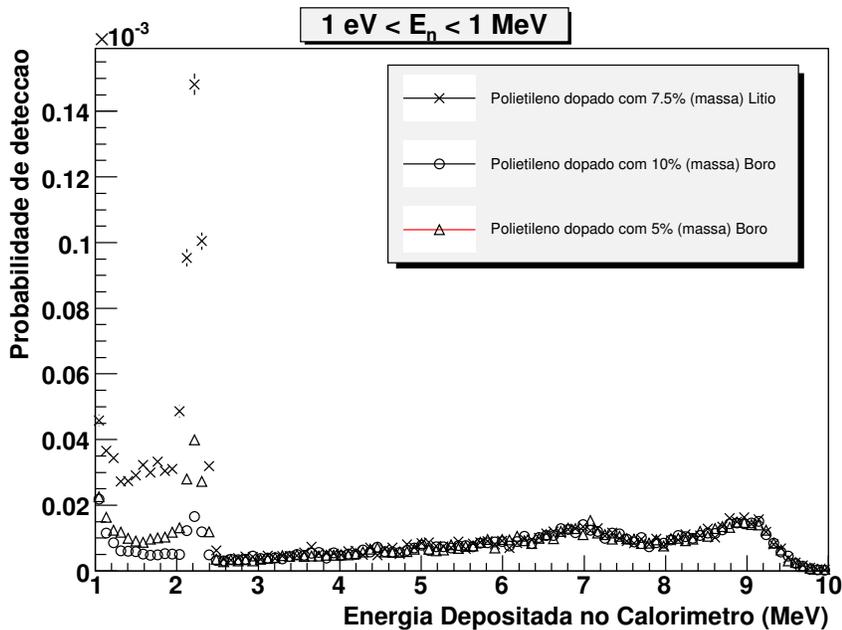


Figura 8.15 a) – Probabilidade de detecção em função da energia total depositada no TAC, correspondendo a neutrões dispersos nas janelas exteriores do novo tubo de feixe, para neutrões incidentes com energias cinéticas entre 1 eV e 1 MeV, para três materiais diferentes que constituem um dispositivo absorvedor de neutrões de forma cilíndrica.

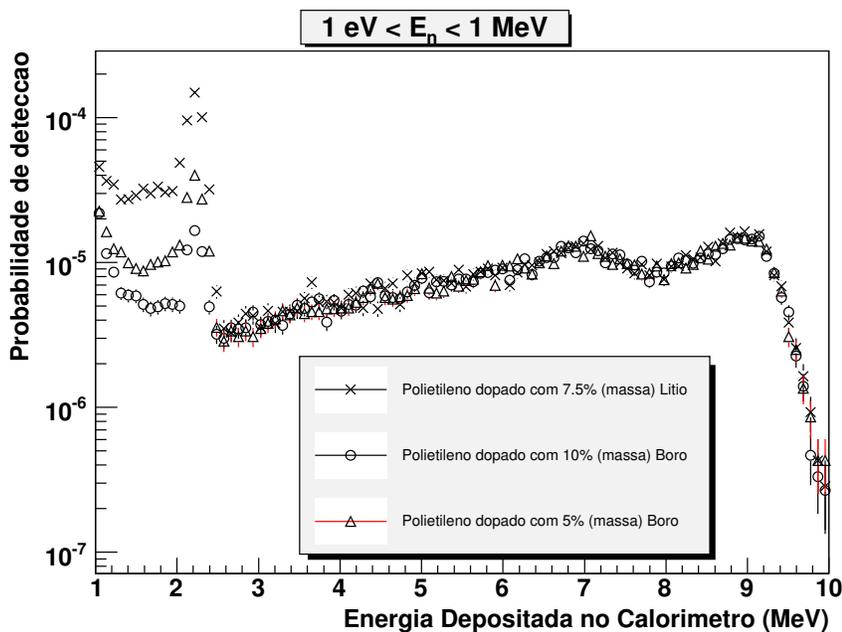


Figura 8.15 b) – Probabilidade de detecção em função da energia total depositada no TAC, correspondendo a neutrões dispersos nas janelas exteriores do novo tubo de feixe, para neutrões incidentes com energias cinéticas entre 1 eV e 1 MeV, para três materiais diferentes que constituem um dispositivo absorvedor de neutrões de forma cilíndrica.

A tabela 8.2 mostra os valores para a probabilidade de detecção decorrente da implementação do absorvedor de neutrões em torno do novo tubo de feixe para os 3 tipos de materiais constituintes referidos.

Configuração	Probabilidade de detecção em todo o intervalo de energia do neutrão disperso
Absorvedor dopado com 7.5% Litio	$(1.5 \pm 0.01) \times 10^{-3}$
Absorvedor dopado com 10% Boro	$(8 \pm 0.07) \times 10^{-4}$
Absorvedor dopado com 5% Boro	$(9 \pm 0.08) \times 10^{-4}$
Configuração	Probabilidade de detecção $1 \text{ eV} < E_n < 10 \text{ eV}$
Absorvedor dopado com 7.5% Litio	$(1.1 \pm 0.029) \times 10^{-3}$
Absorvedor dopado com 10% Boro	$(2.6 \pm 0.14) \times 10^{-4}$
Absorvedor dopado com 5% Boro	$(4.6 \pm 0.19) \times 10^{-4}$
Configuração	Probabilidade de detecção $10 \text{ eV} < E_n < 100 \text{ eV}$
Absorvedor dopado com 7.5% Litio	$(1.2 \pm 0.031) \times 10^{-3}$
Absorvedor dopado com 10% Boro	$(5.1 \pm 0.19) \times 10^{-4}$
Absorvedor dopado com 5% Boro	$(6.8 \pm 0.23) \times 10^{-4}$
Configuração	Probabilidade de detecção $100 \text{ eV} < E_n < 1 \text{ keV}$
Absorvedor dopado com 7.5% Litio	$(1.8 \pm 0.035) \times 10^{-3}$
Absorvedor dopado com 10% Boro	$(1.0 \pm 0.028) \times 10^{-3}$
Absorvedor dopado com 5% Boro	$(1.1 \pm 0.028) \times 10^{-3}$

Tabela 8.2: Probabilidade de detecção para três materiais diferentes do absorvedor de neutrões colocado em torno do novo tubo de feixe, os erros apresentados são de natureza estatística.

Por análise dos valores de probabilidade de detecção expostos na tabela 8.2 pode-se concluir que o material constituinte do sistema absorvedor de neutrões para o

qual a probabilidade de detecção é minimizada, consiste de polietileno dopado com boro. Uma maior concentração de boro na dopagem permite chegar a valores mais baixos deste tipo de ruído de fundo. Em particular a dopagem de 10% (em massa) de boro no polietileno reduz em 50% a probabilidade de detecção de um neutrão disperso relativamente ao absorvedor dopado com 7,5% (em massa) de lítio.

A distribuição comercial de polietileno dopado, consiste em pouco mais do que as três soluções apresentadas. Apesar de a melhor solução em termos de probabilidade de detecção consistir na dopagem com 10% em massa de boro, a diferença das probabilidades de detecção para as 2 soluções é da ordem dos 11%, com uma incerteza estatística na razão de 1% em todo o intervalo de energia do neutrão incidente. Com base em considerações económicas associadas ao custo do material, esta variação não justifica o uso da solução mais dispendiosa que consiste no material dopado com 10% em massa de boro. Em conformidade, optou-se pela decisão de construir o absorvedor de neutrões usando polietileno dopado com 5% em massa de boro.

8.6 Escolha da geometria para o elemento absorvedor

Uma vez tomada a decisão respeitante ao material usado na construção do moderador e absorvedor de neutrões, prosseguiu-se o estudo de simulação por forma a determinar a geometria dos elementos constituintes do sistema absorvedor de neutrões que minimizasse os valores de probabilidade de detecção de neutrões dispersos nas janelas do tubo de feixe e no porta-amostras, para a nova configuração proposta e previamente descrita. As cinco geometrias descritas na tabela 6.1 do capítulo 6 foram consideradas nas simulações Monte Carlo efectuadas. Começou por se fazer a comparação entre geometrias que diferiam muito quanto ao volume de polietileno usado e posteriormente compararam-se soluções optimizadas com pequenos ajustes geométricos.

Os resultados relativos à probabilidade de detecção em função da energia total depositada no calorímetro, para diferentes intervalos de energia do neutrão incidente disperso, encontram-se nas figuras que se seguem.

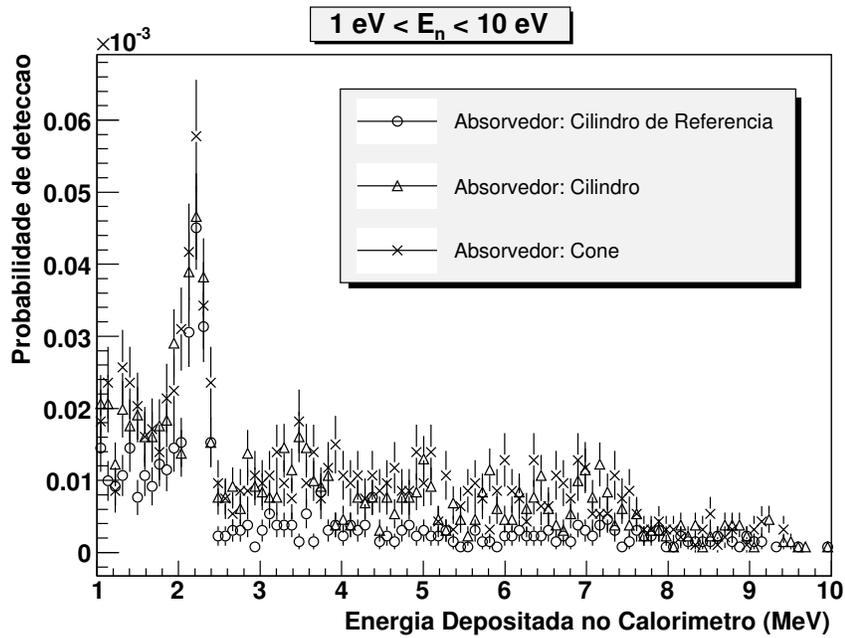


Figura 8.16: Probabilidade de detecção em função da energia total depositada no TAC, correspondendo a neutrões dispersos nas janelas do novo tubo de feixe com energias cinéticas compreendidas entre 1 eV e 10 eV, para três geometrias diferentes (cilindro de referência, cilindro e cone) do absorvedor de neutrões colocado em torno do tubo de feixe.

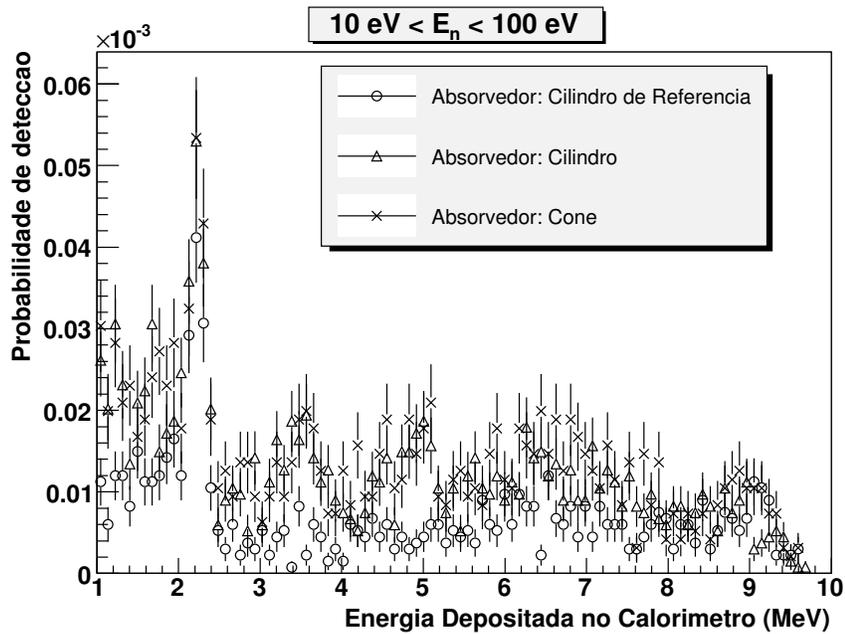


Figura 8.17: Probabilidade de detecção em função da energia total depositada no TAC, correspondendo a neutrões dispersos nas janelas do novo tubo de feixe com energias cinéticas compreendidas entre 10 eV e 100 eV, para três geometrias diferentes (cilindro de referência, cilindro e cone) do absorvedor de neutrões colocado em torno do tubo de feixe.

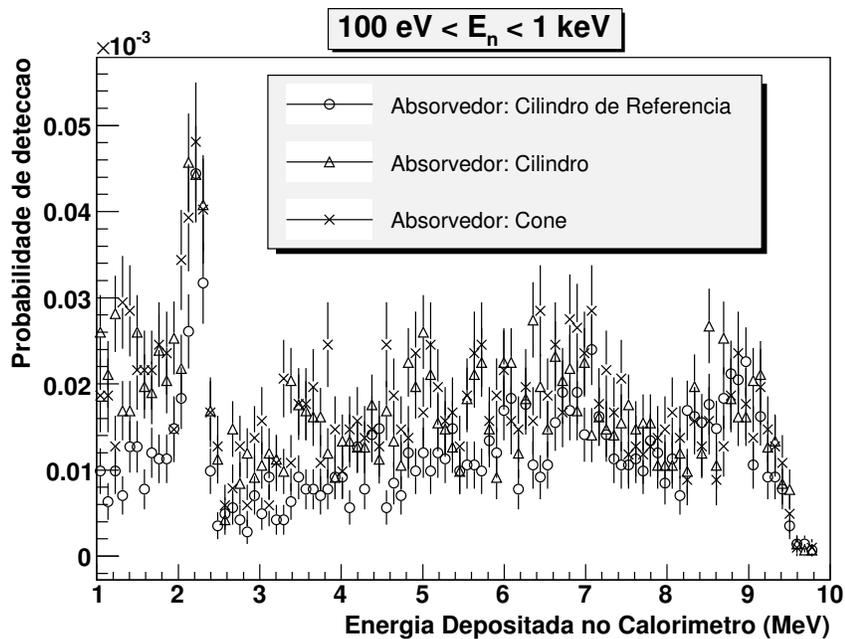


Figura 8.18: Probabilidade de detecção em função da energia total depositada no TAC, correspondendo a nêutrons dispersos nas janelas do novo tubo de feixe com energias cinéticas compreendidas entre 100 eV e 1 keV, para três geometrias diferentes (cilindro de referência, cilindro e cone) do absorvedor de nêutrons colocado em torno do tubo de feixe.

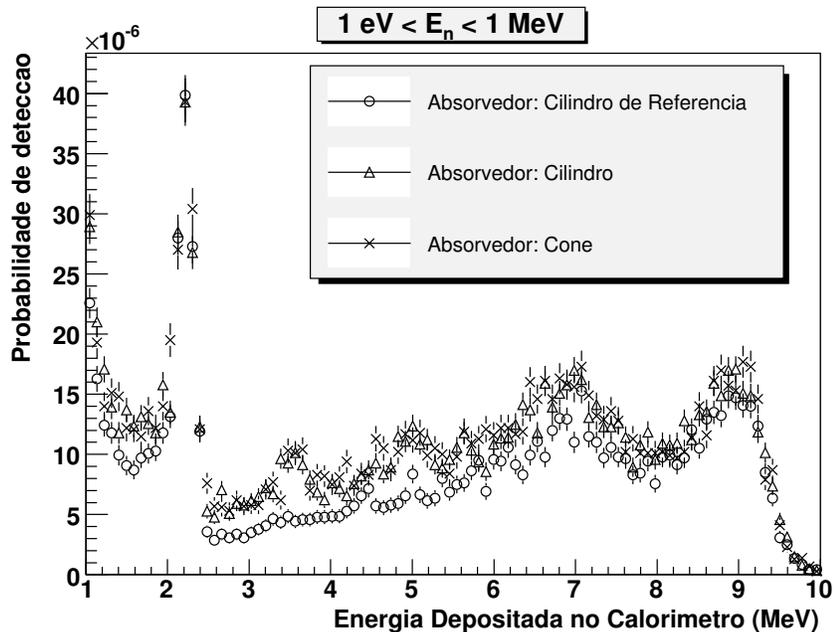


Figura 8.19: Probabilidade de detecção em função da energia total depositada no TAC, correspondendo a nêutrons dispersos nas janelas do novo tubo de feixe com energias cinéticas compreendidas entre 1 eV e 1 MeV, para três geometrias diferentes (cilindro de referência, cilindro e cone) do absorvedor de nêutrons colocado em torno do tubo de feixe.

Os valores para a probabilidade de detecção da Tabela 8.3 (adiante) revelam que o cilindro de referência é, como esperado, a solução para a qual se obtém um menor valor da probabilidade de detecção. No entanto esta solução é como se apresenta no quadro 6.1 do capítulo 6, também aquela a que corresponde um maior volume de material constituinte e tal como anteriormente, considerações economicistas sugerem uma nova busca de geometrias alternativas.

As simulações adicionais realizadas tiveram como objectivo otimizar, através de pequenos ajustes de volume, a geometria cónica do absorvedor de neutrões, pois a esta solução corresponde menos de metade do volume das outras soluções simuladas.

Um novo cilindro de pequena dimensão foi adicionado em cada lado do TAC com vista a absorver de neutrões que são dispersos com pequenos ângulos relativamente à sua trajectória inicial no tubo de feixe. Adicionalmente, foi também estudada a adição do pequeno cilindro e de uma fatia de chumbo, correspondendo à configuração do caso D da figura 6.4 do capítulo 6. Esta fatia de chumbo tem como finalidade absorver parte dos fotões de 480 keV criados pela absorção neutrónica no isótopo ^{10}B do boro natural.

Os resultados correspondentes a estas novas simulações encontram-se apresentados nas figuras que se seguem.

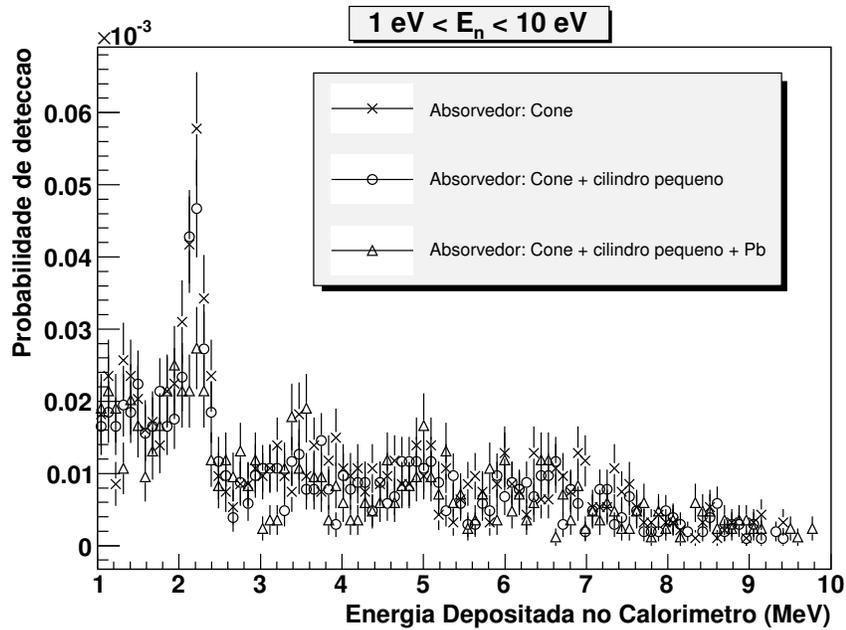


Figura 8.20 : Probabilidade de detecção em função da energia total depositada no TAC, correspondendo a neutrons dispersos nas janelas do no vo tubo de feixe com energias cinéticas entre 1 eV e 10 eV, para três geometrias (cone, cone + pequeno cilindro e cone + pequeno cilindro + fatia de chumbo) do dispositivo absorvedor de neutrons colocado em torno do novo tubo de feixe.

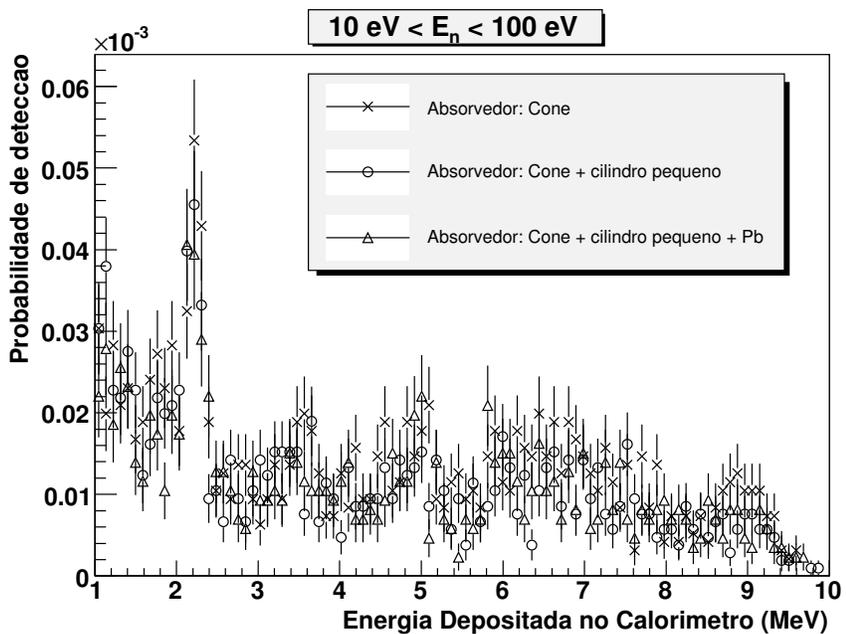


Figura 8.21 : Probabilidade de detecção em função da energia total depositada no TAC, correspondendo a neutrons dispersos nas janelas do no vo tubo de feixe com energias cinéticas entre 10 eV e 100 eV, para três geometrias (cone, cone + pequeno cilindro e cone + pequeno cilindro + fatia de chumbo) do dispositivo absorvedor de neutrons colocado em torno do novo tubo de feixe.

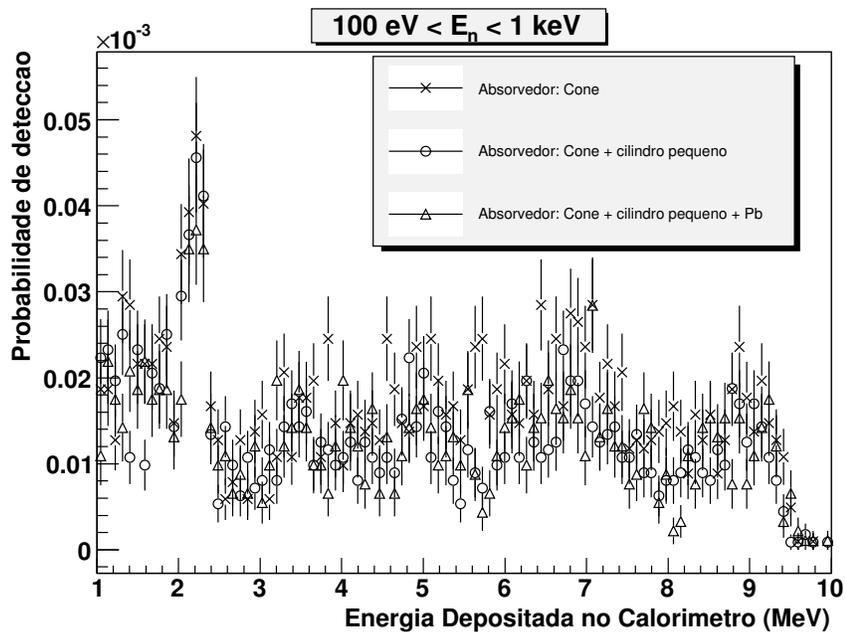


Figura 8.22 : Probabilidade de detecção em função da energia total depositada no TAC, correspondendo a neutrons dispersos nas janelas do no vo tubo de feixe com energias cinéticas entre 100 eV e 1 keV, para três geometrias (cone, cone + pequeno cilindro e cone + pequeno cilindro + fatia de chumbo) do dispositivo absorvedor de neutrons colocado em torno do novo tubo de feixe.

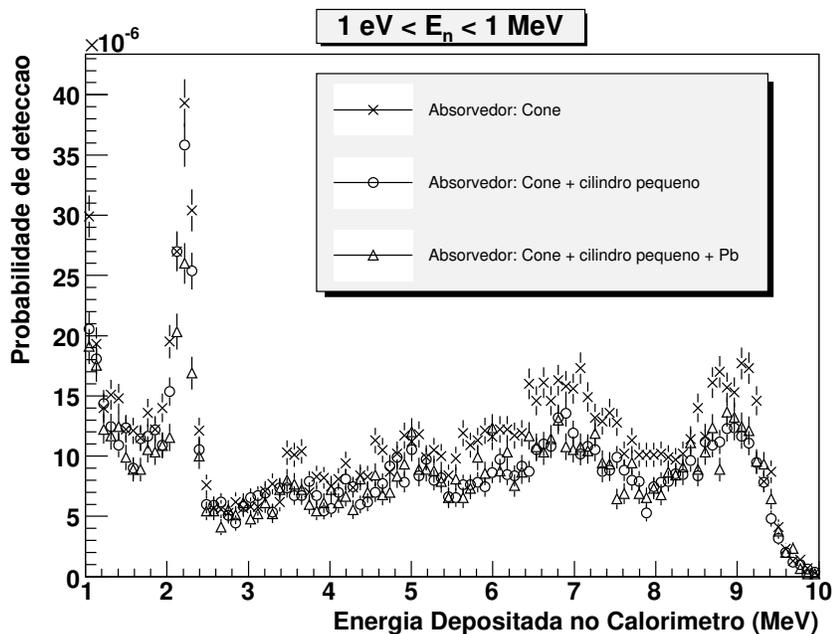


Figura 8.23 : Probabilidade de detecção em função da energia total depositada no TAC, correspondendo a neutrons dispersos nas janelas do no vo tubo de feixe com energias cinéticas entre 1 eV e 1 MeV, para três geometrias (cone, cone + pequeno cilindro e cone + pequeno cilindro + fatia de chumbo) do dispositivo absorvedor de neutrons colocado em torno do novo tubo de feixe.

Dispositivo	Volume de polietileno (dm³)	Probabilidade de detecção 1 eV < En < 1 MeV
Cilindro de referência	118.595 × 2	(9 ± 0.08) × 10 ⁻⁴
Cilindro	71.157 × 2	(1.1 ± 0.009) × 10 ⁻³
Cone	31.698 × 2	(1.2 ± 0.01) × 10 ⁻³
Cone + peq. cilindro	32.82 × 2	(9 ± 0.09) × 10 ⁻⁴
Cone + peq. cilindro + Pb	32.659 × 2	(9 ± 0.1) × 10 ⁻⁴
Dispositivo	Volume de polietileno (dm³)	Probabilidade de detecção 1 eV < En < 10 eV
Cilindro de referência	118.595 × 2	(4.6 ± 0.2) × 10 ⁻⁴
Cilindro	71.157 × 2	(8.5 ± 0.3) × 10 ⁻⁴
Cone	31.698 × 2	(9.8 ± 0.3) × 10 ⁻⁴
Cone + peq. cilindro	32.82 × 2	(8.6 ± 0.3) × 10 ⁻⁴
Cone + peq. cilindro + Pb	32.659 × 2	(7.9 ± 0.3) × 10 ⁻⁴
Dispositivo	Volume de polietileno (dm³)	Probabilidade de detecção 10 eV < En < 100 eV
Cilindro de referência	118.595 × 2	(6.8 ± 0.2) × 10 ⁻⁴
Cilindro	71.157 × 2	(1.2 ± 0.03) × 10 ⁻³
Cone	31.698 × 2	(1.4 ± 0.04) × 10 ⁻³
Cone + peq. cilindro	32.82 × 2	(1.2 ± 0.03) × 10 ⁻³
Cone + peq. cilindro + Pb	32.659 × 2	(1.1 ± 0.04) × 10 ⁻³
Dispositivo	Volume de polietileno (dm³)	Probabilidade de detecção 100 eV < En < 1 keV
Cilindro de referência	118.595 × 2	(1.1 ± 0.03) × 10 ⁻³
Cilindro	71.157 × 2	(1.6 ± 0.03) × 10 ⁻³
Cone	31.698 × 2	(1.7 ± 0.04) × 10 ⁻³
Cone + peq. cilindro	32.82 × 2	(1.3 ± 0.03) × 10 ⁻³
Cone + peq. cilindro + Pb	32.659 × 2	(1.3 ± 0.04) × 10 ⁻³

Tabela 8.3: Probabilidade de detecção para as geometrias consideradas para o absorvedor de neutrões colocado em torno do novo tubo de feixe, os erros apresentados são de natureza estatística.

A Tabela 8.3 resume de forma exaustiva os valores de probabilidade de detecção de um neutrão disperso nas janelas do novo tubo de feixe, para as cinco geometrias finais do absorvedor de neutrões.

A comparação dos valores de probabilidade de detecção, permite verificar que há uma pequena variação, para todos os intervalos de energia do neutrão incidente, entre os resultados atingidos pela geometria cilíndrica e pela geometria cónica, que são as soluções de menor volume. No entanto na geometria cónica, a introdução de um pequeno cilindro para diminuir a contribuição dos neutrões dispersos em pequenos ângulos, torna esta solução como a mais favorável, tanto baseado em critérios economicistas (menor volume de material) como em critérios de redução do ruído de fundo (minimização da probabilidade de detecção no calorímetro de neutrões dispersos no tubo de feixe).

Como já referido anteriormente a solução que minimiza o valor de probabilidade de detecção é o absorvedor com a geometria designada por cilindro de referência. No entanto a introdução do pequeno cilindro na geometria cónica, iguala as probabilidades de detecção para todo o intervalo de energias do neutrão disperso. No intervalo de mais baixa energia do neutrão disperso, a razão entre as probabilidades de detecção para estas duas configurações é de um factor de 2, com uma incerteza estatística associada de 8%.

Verifica-se também que a introdução da lâmina de chumbo não introduz um efeito significativo na redução dos valores de probabilidade de detecção nos intervalos de energia de neutrão incidente considerados.

Conclusões

A minimização da probabilidade de detecção no calorímetro de BaF₂ (TAC), de neutrões dispersos nas janelas do tubo de feixe e no dispositivo porta-amostras, permitirá reduzir o ruído de fundo resultante e conseqüentemente, irá beneficiar as medições de secções eficazes de captura neutrónica em n_TOF.

Nos estudos apresentados foram efectuadas simulações Monte Carlo para as duas configurações do tubo de feixe e dispositivo porta-amostras, a saber, a configuração em operação até 2004 e a nova configuração proposta para o período de tomada de dados a iniciar em 2008. Para a nova configuração proposta foram adicionalmente consideradas cinco configurações com geometrias diferentes de um sistema absorvedor de neutrões dispersos, a colocar em torno do tubo de feixe, e três materiais constituintes correspondentes. Os resultados obtidos foram os seguintes:

- Extrapolando os resultados das simulações para a amostra de ²³⁵U e janelas interiores do antigo tubo de feixe, a contribuição para o ruído de fundo relativa a interacções dos neutrões incidentes com o titânio constituinte do porta-amostras e ar na antiga (em operação até 2004) configuração do tubo de feixe é duas vezes superior comparativamente a uma janela de alumínio situada no interior do TAC. Em conformidade, pode-se inferir que a nova configuração do tubo de feixe e dispositivo porta-amostras irá melhorar a rejeição do ruído de fundo devido a neutrões dispersos nos elementos do tubo por um factor de 6 no intervalo de energia de neutrões incidentes entre 1 eV e 1 keV.
- Para a redução da contribuição para o ruído de fundo devido a dispersão de neutrões incidentes nas janelas exteriores do novo tubo de feixe o material recomendado para um novo dispositivo moderador e absorvedor de neutrões,

considerando também restrições financeiras, é o polietileno dopado com 5 % (em massa) de boro.

- A geometria recomendada para o novo elemento moderador e absorvedor de neutrões a colocar em torno do novo tubo de feixe consiste num volume cónico seguido de um pequeno cilindro adicional que tem como função vetar os neutrões dispersos a pequenos ângulos relativamente à direcção do feixe incidente.
- A contribuição para o ruído de fundo devido a neutrões dispersos nas janelas exteriores do novo tubo de feixe é reduzida por um factor de 3 no intervalo de energia do neutrão incidente entre 1 eV e 1 keV, com a aplicação do novo absorvedor de neutrões em torno do novo tubo de feixe.

Quando se efectua a comparação entre o novo dispositivo da área experimental, que inclui o novo tubo de feixe, porta-amostras e elementos absorvedores de neutrões, com o dispositivo utilizado nas medições efectuadas até 2004, os resultados obtidos neste estudo permitem estimar uma redução por um factor de 6 no ruído de fundo original devido a neutrões dispersos nos elementos do tubo de feixe incluindo o titânio.

No caso particular do titânio, este elemento introduzia uma forte fonte de ruído de fundo nos dados para neutrões incidentes acima dos 5 – 10 keV. Portanto a supressão deste elemento irá permitir que a análise de resultados seja ampliada no espectro de energias do neutrão incidente. A supressão deste tipo de ruído de fundo irá também ter consequências no tamanho e massa das amostras de interesse para medição de secções eficazes de captura neutrónica, permitindo o uso de massas ainda mais reduzidas.

Os estudos efectuados permitiram ainda determinar as probabilidades globais de detecção de um neutrão disperso, no dispositivo inicial do tubo de feixe e dispositivo porta-amostras e na nova configuração proposta para o novo tubo de feixe e dispositivo porta-amostras, como se apresenta na seguinte Tabela:

Configuração do tubo de feixe e porta amostras		Probabilidade de detecção 1 eV < En < 1 MeV
Tubo de feixe antigo sem elementos absorvedores	Janelas Interiores de Alumínio	$(2.0 \pm 0.004) \times 10^{-2}$
	Janelas Exteriores de Alumínio	$(2.0 \pm 0.01) \times 10^{-3}$
		Probabilidade de detecção 1 eV < En < 1 keV
Soma dos efeitos de todos os elementos dispersores	Janelas de Alumínio + Porta amostras e ar em excesso	$(1,2 \pm 0,2) \times 10^{-1}$
Novo tubo de feixe com elemento absorvedor Cone + peq. cilindro	Volume de polietileno de 32.82 $\times 2 \text{ dm}^3$	$(2,0 \pm 0,01) \times 10^{-2}$

Espera-se que este sistema seja implementado no espectrometro TOF do CERN a partir de 2008 e esteja operacional durante todo o conjunto de medições experimentais prevista para o período 2008-2010.

Referências Bibliográficas

- [1] C.Borcea et al., *The Neutron Time of Flight Facility at CERN*, CERN SL-2001-069 EET, Genebra, 2001.
- [2] The n_TOF Collaboration, *Proposal to the INTC Committee – n_TOF-Ph2*, CERN-INTC-2005-021, INTC-P-197, Genebra 2005.
- [3] C. Rubbia et. al., *A European Roadmap for Developing ADS for Nuclear Waste Incineration*, 2001.
- [4] C. Rubbia et. al., *An Energy Amplifier for Cleaner and Inexhaustible Nuclear Energy Production Driven by a Particle Beam Accelerator*”, CERN preprint CERN-AT-93-47, Genebra 1993.
- [5] C. Rubbia et. al., *Conceptual Design of a Fast Neutron Operated High Power Energy Amplifier*, CERN preprint CERN-AT-95-44, Genebra 1995.
- [6] *Geant4: A toolkit for the simulation of the passage of particles through matter*, <http://geant4.web.cern.ch/geant4/>
- [7] Kenneth S. Krane, *Introductory Nuclear Physics*, Jonh Wiley & Sons, USA 1988.
- [8] James W. Truran et al., *Probing the Neutron-Capture Nucleosynthesis History of Galactic Matter*, University of Chicago, 2003.
- [9] NEA, *Accelerator-driven Systems (ADS) and Fast Reactors (FR) in Advanced Nuclear Fuel Cycles – A comparative Study*, 2002.
<http://www.nea.fr/html/ndd/reports/2002>
- [10] P. Armbruster, J. Benlliure, *Basic Nuclear Data at High and Intermediate Energy for ADS*, Nuclear Science in Europe – Impact, Applications, Interactions, 2002.
- [11] César Domingo Pardo, *New radiative neutron capture measurement of ^{207}Pb and ^{209}Bi* , Universidad de Valencia – CSIC, 2004.

- [12] Jean-Louis Basdevant, J. Rich, M. Spiro, *Fundamentals in Nuclear Physics*, Springer, 2004
- [13] *ENDFPLOT: online graph plot for neutron cross sections*
<http://atom.kaeri.re.kr/endlplot.shtml>
- [14] *Neutron radiative Capture*, Vol.3, Editors A. Michaudon, S. Cierjacks e R. E. Chrien, 1984.
- [15] Luis Peralta, *Monte Carlo simulation of neutron thermalization in matter*, European Journal of Physics 23 (2002) 307-314, 2002.
- [16] *Service de Dosimetrie CERN*
<http://service-rp-dosimetry.web.cern.ch/service-rp-dosimetry/>
- [17] *Neutron Dosimeter*
<http://www.landauerinc.com/neutron.htm>
- [18] C. Borcea et al., *The Neutron Time of Flight Facility at CERN*, SL-Note-2000-039 EET, CERN, 2000.
- [19] The n_TOF Collaboration, *Neutron TOF Facility (PS 213) Technical Design Report*, CERN/INTC/2000-004, CERN, 2000.
- [20] The n_TOF Collaboration, *Proposal for a Neutron Time of Flight Facility*, CERN/SPSC 99-8, SPSC/P 310, CERN, Geneva, 1999.
- [21] A. Ferrari et al., *A comprehensive study of the n_TOF Background*, n_TOF Note 211009, SL-EET Note 2001-036, CERN, 2001.
- [22] The n_TOF Collaboration, *Time-energy relation of the n_TOF neutron beam: energy standards revisited*, NIM-A, 2004.
- [23] The n_TOF Collaboration, *Study of the Background in the Measuring Station at the n_TOF Facility at CERN: Sources and Solutions*, SL/Note 2001-046, CERN/INTC 2001-038, INTC-O-007, CERN, 2001.
- [24] The n_TOF Collaboration, *The data acquisition system of the neutron tim-of-flight facility n_TOF at CERN*, NIM-A, 2005.
- [25] K. Wisshak et al., *The Karlsruhe 4 π Barium Fluoride Detector*, Institut für Kernphysik Hauptabteilung Ingenieurtechnik, KfK 4652, 1989.
- [26] D. Cano-Ott et al., *Monte Carlo Simulation of the 4 π Total Absorption Calorimeter at n_TOF*, CIEMAT.
- [27] Michael Heil and the n_TOF Collaboration, *A Total-Absorption Calorimeter for (n, γ) Studies at the n_TOF Facility*, Karlsruhe, Germany

- [28] H. Ma, H. Newman e R. Y. Zhu, *Calibration of Electromagnetic Calorimeters in High Energy Experiments With a Radio Frequency Quadropole Accelerator*, NIM-A, 1989.
- [29] Marvin J. Weber, *Handbook of Optical Materials*, The CRC Press, 2003.
- [30] Hisashi Yoshida et al., *Intensity Enhancement of Auger-Free Luminescence in BaF₂ and CsCl by Acceleration Voltage of Electron-Beam Excitation*, Japanese Journal of Applied Physics, 2000.
- [31] C.L. Woody et al., *Radiation Damage in BaF₂ Crystals*, IEEE Transactions on Nuclear Science, Vol. 39 n° 4, 1992.
- [32] Ren-yuan Zhu, *On quality requirements to the barium fluoride crystals*, NIM-A 340 (1994) 442-457, 1994.
- [33] William R. Leo, *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments*, Springer, 2006.
- [34] *CLHEP – A Class Library for High Energy Physics*,
<http://proj-clhep.web.cern.ch/proj-clhep/>
- [35] *Ranlux*
<http://www.honeylocust.com/RngPack/doc/edu/cornell/lassp/houle/RngPack/Ranlux.html>
- [36] *Geant4 User's Guide – For Application Developers*,
<http://geant4.web.cern.ch/geant4/UserDocumentation/UsersGuides/ForApplicationDeveloper/html/index.html>
- [37] *Physics Reference Manual*,
<http://geant4.web.cern.ch/geant4/UserDocumentation/UsersGuides/PhysicsReferenceManual/html/index.html>
- [38] GEANT4 Collaboration, *GEANT4 a simulation toolkit*, NIM-A, 2003.
- [39] GEANT4 Collaboration, *Geant4 developments and applications*, IEEE Transactions on Nuclear Science, 2006.
- [40] E. González-Romero and the n_TOF collaboration, *Measurement of the neutron capture cross sections of ²³³U, ²³⁷Np, ^{240,242}Pu, ^{241,243}Am and ²⁴⁵Cm with a Total Absorption Calorimeter at n_TOF*, CERN INTC-2003-036, CERN, 2003.
- [41] Carlos Guerrero, *Measurements at n_TOF of the Neutron Capture Cross Section of Minor Actinides relevant to the Nuclear Waste Transmutation: ²³⁷Np and ²⁴⁰Pu*, CIEMAT, 2006.
- [42] Glenn F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, John Wiley & Sons, 2000.

- [43] *Particle Data Group*, <http://pdg.lbl.gov/>
- [44] *Atomic Mass Data Center*, <http://ie.lbl.gov/toimass.html>
- [45] *RIPL Home Page – Reference Input Parameter Library for theoretical calculations of nuclear reactions*, <http://www-nds.iaea.or.at/ripl/>
- [46] http://wwwndc.tokai.jaeri.go.jp/RIPL/RIPL_mass.html
- [47] <http://t2.lanl.gov>
- [48] <http://ie.lbl.gov/ensdf>
- [49] *National Nuclear Data Center*, <http://www.nndc.bnl.gov/>
- [50] *The ROOT system Home Page*, <http://root.cern.ch/>
- [51] *Utilización del Cluster Lince*,
http://www.ciemat.es/recursos/doc/Servicio_tecnico/UsodelClusterLince/19993316_93_1842006131446.pdf
- [52] *Chemistry: WebElements Periodic Table*, <http://www.webelements.com/>