

BR7801680



**ESTUDO DAS REFLEXÕES DE ORDENS SUPERIORES EM
CRISTAIS MONOCROMADORES DE NÉUTRONS**

Roberto Fulfaro

DISSERTAÇÃO E TESE - IEA 001

JANEIRO/1976

**ESTUDO DAS REFLEXÕES DE ORDENS SUPERIORES EM
CRISTAIS MONOCROMADORES DE NÉUTRONS**

Roberto Fulfaro

**Tese para obtenção do Título de "Doutor em
Ciências" – Orientador Prof. Dr. Marcello Damy de
Souza Santos. Apresentada e defendida em 15 de
outubro de 1970 à Universidade Estadual de Campinas.**

CONSELHO DELIBERATIVO

MEMBROS

Klaus Reinach - Presidente
Roberto D'Utra Vaz
Malcio Modesto da Costa
Ivano Humbert Marchesi
Admar Cervellini

PARTICIPANTES

Regina Elisabete Azaveio Beretta
Flávio Gori

SUPERINTENDENTE

Rômulo Rios de Azevedo

INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA
Caixa Postal 11.049 (Pinheiros)
Cidade Universitária "Armando de Salles Oliveira"
SÃO PAULO - BRASIL

NOTA: Este trabalho foi conferido pelo autor depois de composto e sua redação está conforme o original, sem qualquer correção ou mudança.

IÍNDICE

	Página
CAPÍTULO I	
INTRODUÇÃO	1
CAPÍTULO II	
ARRANJO EXPERIMENTAL E MÉTODO DE MEDICA	4
2.1. – Arranjo Experimental	4
2.1.1. – Descrição do Espectrômetro	5
2.1.2. – Cristais Monocromadores	5
2.1.3. – Colimação do Feixe e Resolução	7
2.1.4. – Detector de Nêutrons e Monitor do Feixe	8
2.1.5. – Eficiência do Detector Principal	9
2.2. – Medida da Secção de Choque Total	9
2.2.1. – Características e Preparação de Amostras	11
2.2.2. – Procedimento Experimental e Processamento dos Dados	12
CAPÍTULO III	
CONSIDERAÇÕES TEÓRICAS	13
3.1. – Introdução	13
3.1.1. – Cristais Perfeitos	14
3.1.2. – Cristais Mosaicos	15
3.2. – Feixe de Nêutrons Paralelo e Monoenergético	17
3.2.1. – Potência do Feixe Incidente e Difrato no Cristal	17
3.2.2. – Coeficiente de Absorção Linear	19
3.2.3. – Refletividade Integrada para Cristal que sofre Rotação em torno de um Feixe Paralelo e Monoenergético	21
3.3. – Feixe de Nêutrons Colimado e Polienergético	24
3.3.1. – Efeito da Colimação Finita	24
3.3.2. – Intensidade como Função da Refletividade	26
3.4. – Contaminação de Ordem Superior	29
3.4.1. – Contaminação de Ordem Superior em Medidas de Secção de Choque por Transmissão	30

3.4.2. – Cálculo das Frações de Intensidades de Ordem Superior na Intensidade Refletida pelo Cristal	31
3.5. – Reflexões Parasitas	32

CAPÍTULO IV

RESULTADOS EXPERIMENTAIS	33
4.1. – Medidas em Energias abaixo do Pico do Espectro Térmico	33
4.1.1 – Curva de "Rocking"	33
4.1.2 – Medida da Contagem por Unidade de Tempo e Efeito das Reflexões Parasitas ..	36
4.1.3. – Determinação das Intensidades de Ordem Superior e das Frações f_n	36
4.1.4. – Distribuição Espectral dos Nêutrons Emergentes do Reator	40
4.1.5. – Medida da Secção de Choque Total do Ouro	42
4.1.6 – Filtros de Quartzo	46
4.2. – Medidas em Energias acima do Pico do Espectro Térmico	47
4.2.1. – Introdução	47
4.2.2. – Curva da Ressonância Padrão	50
4.2.3. – Alargamento Doppler	50
4.2.4. – Efeito da Resolução Instrumental	53
4.2.5. – Contaminação de Ordem Superior	54
4.2.6 – Filtro de Telúrio	57

CAPÍTULO V

CONCLUSÕES GERAIS	58
APÊNDICE A	62
APÊNDICE B	66
APÊNDICE C	72
ABSTRACT	73
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	73

ESTUDO DAS REFLEXÕES DE ORDENS SUPERIORES EM CRISTAIS MONOCROMADORES DE NÊUTRONS

Roberto Fulfaro

RESUMO

Com o objetivo de obter, para o espectrômetro de cristal do IEA, o intervalo energético de operação de 1,0 eV à 0,01 eV, foi feito um estudo das reflexões de ordens superiores em cristais monocromadores de nêutrons. Um cristal de Al(III) foi estudado próximo a 1,0 eV e um de Ge(III) na região de energias mais baixas. Para o caso do Ge(III) as contaminações de ordens superiores no feixe refletido foram determinadas usando a secção de choque total do ouro como padrão e calculando a refletividade do cristal para várias ordens de reflexão. O conhecimento da contaminação para cada ordem em função do comprimento de onda do nêutron permite que filtros sejam otimizados para reduzir os nêutrons de ordens superiores.

O cristal de Ge(III) foi usado porque suas reflexões de segunda ordem são teoricamente proibidas, levando vantagem sobre outros cristais, pois medidas até 0,02 eV podem ser feitas diretamente sem filtros. Na região de energia de 0,02 a 0,01 eV, estão presentes contaminações de ordens mais altas do que a segunda, portanto ou são empregados filtros de quartzo ou são aplicadas correções calculadas nos dados experimentais.

O cristal de Al(III) foi usado para estimar o efeito de contaminação de segunda ordem na medida da ressonância do irídio em $E_0 = 0,654$ eV. Nessa região, algumas aproximações podem ser feitas e para a otimização da espessura de filtros não foi necessário o cálculo da refletividade do cristal. Como somente a segunda ordem afeta os resultados nessa região, foi utilizado o telúrio para a filtragem, porque esse elemento possui uma ressonância na região dos nêutrons com energia 4 E.

CAPÍTULO I

INTRODUÇÃO

O estudo da interação de nêutrons térmicos com a matéria é fundamental para a tecnologia de reatores e de grande interesse para a física nuclear e para a física dos estados sólido e líquido; são considerados nêutrons térmicos aqueles com energia inferior a 1 eV, ou seja, de comprimento de onda superior a 0,3 Å.

As mais importantes fontes de nêutrons térmicos são os reatores nucleares, nos quais estes nêutrons são os que, após perder energia durante a moderação, atingem o equilíbrio térmico com os núcleos de meio: apresentam uma distribuição de velocidades próxima a uma Maxwelliana⁽³⁶⁾, abrangendo um intervalo de energia de 10^{-4} eV a 1 eV.

De uma maneira geral, esses nêutrons interagem, com os núcleos de um alvo, por espalhamento e captura radioativa. O conhecimento preciso das secções de choque para essas reações é muito importante nos cálculos relativos a projetos de reatores, uma vez que uma pequena incerteza no valor da secção de choque gera um erro apreciável na reatividade do reator, o que implica numa variação de vários Megawatts-dia/ton na queima do combustível nuclear⁽⁴³⁾.

Os nêutrons com energias compreendidas no intervalo mencionado, são muito usados como

partículas de prova na obtenção de informações sobre as propriedades nucleares dos alvos.

Além disso, esses nêutrons possuindo comprimento de onda da ordem de grandeza das distâncias interatômicas, interagem com um conjunto de átomos ao serem espalhados, podendo haver interferência entre os espalhamentos por núcleos vizinhos. Assim, os nêutrons térmicos tem sido muito utilizados, através da difração, para a determinação de estruturas atômicas⁽³⁾.

Muitos outros efeitos também podem ser estudados com o auxílio dos nêutrons térmicos, tais como: interações magnéticas, espalhamento inelástico em sólidos e líquidos, etc. Nestes diversos tipos de experiências possíveis, a utilização dos nêutrons térmicos, produzidos por um reator nuclear, exige em geral o emprêgo de espectrômetros para selecionar ou analisar os nêutrons pelas suas energias.

Os espectrômetros mais comumente usados são aqueles que utilizam como princípio de operação, técnicas de difração seletiva de nêutrons em cristais, ou então análise por tempo de voo. O assunto desta tese é referente ao primeiro tipo de técnica mencionada, referências quanto ao segundo tipo são fartamente encontradas na literatura^(12,22,24,31).

Vários autores se ocuparam em comparar as vantagens entre os espectrômetros de cristal e os de tempo de voo^(27,54) porém, entre os pontos que favorecem os do primeiro tipo, além da ótima estabilidade de calibração e boa resolução⁽²⁷⁾, pode-se apontar a vantagem de ter um feixe contínuo e intenso de nêutrons monocromáticos, que torna o aparelho particularmente útil para medidas precisas em energias específicas.

O principal problema, na utilização do espectrômetro de cristal, aparece em energias abaixo do pico do espectro Maxwelliano do reator, onde a operação do instrumento torna-se impraticável devido a presença de contaminações de ordens superiores no feixe de nêutrons refletido pelo cristal.

O princípio de operação do espectrômetro de cristal utiliza a difração de nêutrons por um monocristal, que por sua vez é governada pela chamada relação de Bragg⁽³⁾. As contaminações de ordens superiores são inerentes aos processos de difração que produzem as reflexões de Bragg. Quando um feixe colimado de nêutrons polienergéticos incide sobre um conjunto de planos cristalinos paralelos, de distância interplanar d , num ângulo de incidência θ , só serão refletidos os nêutrons de comprimento de onda, que satisfazem a relação:

$$n\lambda = 2d \sin \theta \quad \text{com } n = 1,2,3, \text{ etc.} \quad (1.1)$$

esta é uma condição de máxima interferência construtiva no espalhamento coerente elástico pelos vários átomos do cristal, na direção de reflexão, que forma um ângulo 2θ com a direção do feixe incidente.

Da equação de Bragg (eq.1.1), pode-se observar que o comprimento de onda desejado λ , é dado pela reflexão de primeira ordem ($n = 1$), enquanto que os valores de $n = 2,3, \text{ etc.}$, dão as indesejadas contaminações de ordens superiores. Portanto, o feixe de nêutrons refletidos é constituído por nêutrons com comprimentos de onda $\lambda, \lambda/2, \lambda/3, \text{ etc.}$ e as intensidades relativas dos diferentes comprimentos de onda, que compõem o feixe, dependem do espectro de nêutrons incidentes no cristal e da refletividade dos planos cristalinos para esses comprimentos de onda.

Se o espectro de nêutrons incidente contém mais nêutrons de comprimento de onda pequeno, obviamente a contaminação de ordem superior será séria, e em casos desfavoráveis poderá ser até mesmo maior do que a reflexão de primeira ordem. Como exemplo, considera-se um espectro Maxwelliano no qual o comprimento de onda do pico é 1 \AA ; se o cristal é colocado em posição angular para a reflexão de nêutrons de comprimento de onda de primeira ordem $\lambda = 2 \text{ \AA}$, então $\lambda/2 = 1 \text{ \AA}$, e nesse caso a reflexão de segunda ordem é muito maior do que a de primeira. Portanto, a operação do espectrômetro de cristal no lado dos comprimentos de onda maiores ou energias menores do que a energia do pico do espectro

Maxwelliano, requer cuidados especiais, tais como: a escolha de cristais adequados e filtros eficientes para a eliminação da contaminação de ordem superior.

Nas regiões de comprimentos de onda menores do que o do pico do espectro, no caso particular do espectrômetro de cristal do IEA, quando utilizado com um cristal monocromador comum, e sem lançar mão de nenhum recurso para a eliminação de ordens superiores, consegue-se medir corretamente no intervalo de 0.3Å a 1.2Å. Este fato é constatado pela medida da curva padrão de secção de choque total do ouro, onde a concordância dos pontos experimentais com a curva faz com que a contaminação possa ser considerada desprezível, nesse intervalo de comprimentos de onda⁽⁶⁷⁾. Contudo, essa aproximação não pode ser feita no caso de medida de uma ressonância nuclear nessa região, pois nesse caso uma pequena contaminação de ordem superior, influencia bastante a obtenção dos dados experimentais^(26,29).

O principal objetivo deste trabalho é efetuar um estudo completo do problema das contaminações de ordens superiores, presentes nas reflexões de Bragg do cristal monocromador, e das possibilidades de utilização dos métodos disponíveis para eliminá-las. Isto deve ser feito devido ao grande interesse das secções de choque totais em região de energia abaixo do pico do espectro térmico, e das ressonâncias nucleares em região de energia próxima a 1 eV; e uma vez que o espectrômetro de cristal possui a propriedade de efetuar medidas em cada energia, individualmente, esse instrumento é de grande utilidade na obtenção dos dados experimentais da secção de choque em função da energia do nêutron.

Entre os diversos métodos que podem ser usados para corrigir ou eliminar as contaminações de ordens superiores, pode-se citar:

- a) a aplicação de correções calculadas aos dados experimentais^(5,29)
- b) a seleção de cristais monocromadores adequados, para os quais uma ou mais reflexões de ordem superior são proibidas pelo fator de estrutura^(23,48)
- c) o uso de filtros cristalinos para atenuar os nêutrons numa energia específica⁽²³⁾
- d) o uso de filtros cristalinos para atenuar os nêutrons de energias mais altas^(49,51)
- e) o uso de um seletor mecânico de velocidades de modo a deixar passar somente a primeira ordem^(27,52)

Este último método já foi anteriormente empregado em medidas de secção de choque total, num programa de pesquisas com terras raras⁽⁷⁵⁾, que utilizava o espectrômetro de cristal acoplado a um seletor mecânico de velocidades⁽⁷⁾. O conhecimento exato das secções de choque das terras raras é de grande importância nos cálculos de física de reatores, pois as terras raras estão presentes nos fragmentos de fissão nuclear, e estão entre os elementos de maior secção de choque de absorção para energias abaixo de 1 MeV.

Na ocasião em que foi desenvolvido o projeto, a maioria das terras raras não havia sido medida na região dos nêutrons térmicos, ou então faltava um tratamento mais elaborado dos dados experimentais para uma determinação das secções de choque parciais. O fato do Brasil possuir uma grande fonte de terras raras nas areias monazíticas e uma indústria local capacitada a purificar e separar terras raras individualmente, facilitou bastante a obtenção das amostras.

Através da análise do comportamento da curva de secção de choque total em função da energia do nêutron, foi possível separar as contribuições devidas ao espalhamento e absorção nucleares e ao espalhamento paramagnético. Todos esses trabalhos, sobre essas medidas de secção de choque total, estão citados na publicação da IAEA Nuclear Data Unit, CINDU-8 (Jan 69); e as tabelas com os valores numéricos estão catalogadas nos DASTAR. O método de eliminação das contribuições devidas a

reflexões de ordens superiores utilizado para essas medidas mostrou-se inadequado, pois o sistema monocromador revelou-se de muito baixa intensidade e alta radiação de fundo (Background). Contudo, o estudo de outros métodos para essa eliminação demandaria tempo, com o risco de perder a atualidade do problema, e nessas circunstâncias o sistema monocromador foi mantido até o término das medidas.

O programa de medidas, tendo chegado ao fim, ficou evidenciada a necessidade do estudo detalhado do problema das contaminações, bem como de uma análise dos métodos de eliminação existentes. Nessas condições foi elaborada esta tese, tendo sido feito inicialmente um estudo teórico do problema, e em seguida utilizando os métodos mencionados de a) e d) em combinação, conseguindo obter dados precisos no intervalo de energia de 1 eV a 0.01 eV (0.3Å a 3Å).

Nas medidas em energias abaixo do pico do espectro térmico, o sistema utilizado para a eliminação de ordens superiores emprega filtros de quartzo e utiliza as reflexões dos planos (111) de um cristal de germânio. O Ge possui retículo cristalino do tipo diamante (cúbico de face centrada); e cristais desse tipo, G e (111), oferecem excelentes possibilidades para a monocromatização de nêutrons térmicos, pois o fator de estrutura de segunda ordem é zero para as reflexões (111) do cristal^(48,71). Assim, as reflexões de segunda ordem são proibidas e portanto, não existe a componente $\lambda/2$ refletida no ângulo da reflexão (111).

Devido à forma da curva de transmissão para o quartzo em função da energia do nêutron, este material utilizado como filtro tem a propriedade de suprimir reflexões de ordens superiores maiores do que a segunda ordem. As espessuras dos filtros são determinadas a partir das frações de contaminação de ordem superior na intensidade do feixe refletido; e estas frações, por sua vez, são obtidas através do cálculo da refletividade do cristal para as várias ordens de reflexão, em função da energia do nêutron.

Medidas de secção de choque total do ouro, cuja curva é padrão, indicam que o sistema empregado, com cristal de Ge(111) e filtros de quartzo, é muito eficiente para a eliminação de ordens superiores desde a energia do pico do espectro até 0.01 eV ($\sim 3\text{Å}$).

O caso de medidas em energias acima do pico do espectro térmico é estudado através da medida da ressonância do irídio (em $E_0 = 0.654$ eV), utilizando um cristal de Al(111) como monocromador. Para esse caso, algumas aproximações podem ser feitas, não sendo necessário o cálculo da refletividade do cristal para estimar as espessuras dos filtros. Como nessa região apenas a segunda ordem influencia os resultados, foi utilizado um filtro de telúrio, em pó compactado, para eliminar a contaminação, uma vez que esse elemento possui uma ressonância na região dos nêutrons com energia 4E (ou $\lambda/2$).

São apresentadas nesta tese as características operacionais do espectrômetro de cristal e é descrito o método de medida de secção de choque total. Os cristais monocromadores são geralmente chamados "cristais mosaicos" por apresentarem uma estrutura de mosaico constituída por "blocos de mosaico" (ou blocos mosaicos), que obedecem uma distribuição normal; neste trabalho são feitas considerações teóricas sobre a natureza desses cristais e apresentadas as expressões da refletividade para as várias ordens de reflexão. É ainda determinada a distribuição espectral dos nêutrons emergentes do reator.

CAPÍTULO II

ARRANJO EXPERIMENTAL E MÉTODO DE MEDIDA

2.1 – Arranjo Experimental

A fonte de nêutrons usada nessa pesquisa foi o reator IEA-R1 do Instituto de Energia Atômica de São Paulo^(39,55,65). Este reator é do tipo piscina e tem, como combustível nuclear, urânio

enriquecido a 20% no isótopo U^{235} , e como moderador e refrigerante água leve. Embora sua potência nominal seja de 5MW, durante a realização desse trabalho o reator funcionou a 2MW apresentando um fluxo térmico máximo de 2×10^{13} nêutrons/cm² segundo, no centro do caroço.

O espectrômetro de cristal para nêutrons, foi localizado junto à saída do canal de irradiação, radial nº 10 do reator e que possui as seguintes dimensões: seis polegadas de diâmetro e 2.80 m de comprimento; o esquema geral do arranjo experimental pode ser visto na figura 1.

Após atravessar o primeiro colimador, situado no canal de irradiação, o feixe de nêutrons emergentes incide sobre um monocristal colocado no centro da mesa do espectrômetro. O feixe de nêutrons difratados pelo cristal, ou feixe refletido, é transmitido pela amostra em estudo, atravessa o segundo colimador e é recolhido por um detector de trifluoreto de boro (BF_3), situado na extremidade do braço do aparelho. A distância que os nêutrons percorrem do caroço até o detector é de 4.60 m.

As diferentes energias dos nêutrons são obtidas variando o ângulo do cristal em relação à direção do feixe incidente. A relação de movimento angular entre o braço e a mesa do cristal é fixa e de 2:1, isto é, quando o ângulo de Bragg é (θ), o ângulo do braço é (2θ), afim de que o feixe refletido pelo cristal sempre atinja o detector.

2.1.1 -- Descrição do Espectrômetro

O espectrômetro de cristal foi construído nas oficinas do IEA em 1959, sendo de um modo geral, análogo àqueles descritos na literatura^(10,38,68,76). O aparelho é constituído de uma mesa para apoio do cristal e de um braço para o segundo colimador e para o detector. A mesa é assentada sobre um eixo vertical de aço, que também suporta o braço, colocado perpendicularmente ao referido eixo. Esse eixo vertical principal é apoiado em um pedestal maciço que suporta todo sistema.

O sistema de ajuste do cristal, para disposição do mesmo no feixe emergente do canal de irradiação, possui seis graus de liberdade e está apoiado sobre a mesa do cristal.

A blindagem do detector esta apoiada na extremidade do braço e é constituída de um cilindro – de 20 cm de diâmetro e 71 cm de comprimento – de parafina e ácido bórico. O braço possui 1.20 m de comprimento e, além da blindagem do BF_3 e do segundo colimador, suporta os definidores do feixe incidente na amostra, construídos de uma mistura de araldite e carbetto de boro que é um material altamente absorvedor de nêutrons.

O braço e a mesa podem ser movimentados independentemente ou engrenados na relação 2:1, de modo a manter a relação de Bragg. Os movimentos são comandados a distância por um sistema de controle de servomecanismo (motores Selsyn), e os ângulos podem ser lidos em uma escala vernier com a precisão de 0.01 grau.

Afim de absorver o feixe de nêutrons rápidos e raios γ , que passam direto pelo cristal, utiliza-se um conjunto de blindagens constituído por uma caixa contendo parafina e ácido bórico (beam catcher) e por uma parede de tijolos de concreto de barita. Além disso, blindagens adicionais foram colocadas, envolvendo o espectrômetro, de modo a reduzir o nível de radiação abaixo do estipulado pelas normas internacionais de Proteção Radiológica.

2.1.2 – Cristais Monocromadores

Os cristais utilizados neste trabalho foram adquiridos da firma Semi-Elements Incorporated, de Saxonburg, Pennsylvania

Ge (III) – tem a forma de um disco com 7.62 cm de diâmetro e 1.51 cm de espessura. É

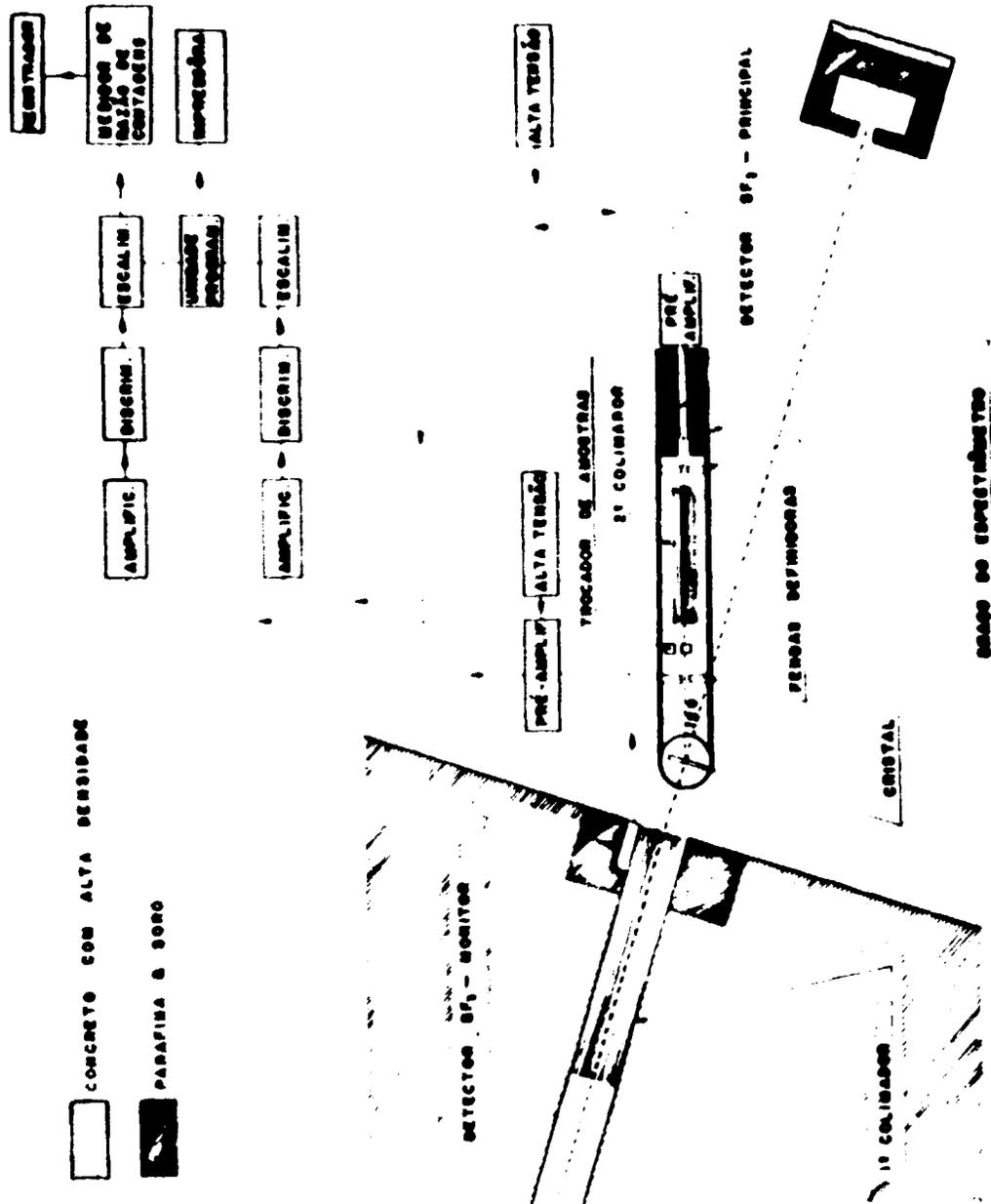


Figura 1 - Diagrama esquemático do espectrômetro de cristal.

orientado com os planos (111) paralelos a face e monocromatiza nêutrons por reflexão nas faces. O Ge possui estrutura cúbica de face centrada, do tipo diamante, com constante da rede $a = 5.647 \text{ \AA}^{(32)}$ e distância interplanar $d_{111} = 3.2603 \text{ \AA}$. Este cristal foi utilizado como monocromador em energias abaixo do pico do espectro térmico (a ser visto no item 4.1), pois foi aproveitada a vantagem do fator de estrutura cristalino ser igual a zero para reflexões de segunda ordem. Foi medida a largura na meia altura da "curva de rocking" do Ge(111) obtendo-se $W = 11.9 \text{ min}$ (a ser visto no item 4.1.1).

Al (111) – tem a forma de uma placa com dimensões $3'' \times 3'' \times 1/2''$ e foi preparado para monocromatizar nêutrons por transmissão, isto é, os planos (111) utilizados formam um ângulo de 20° com as faces menores ($3'' \times 1/2''$). O Al possui estrutura cúbica de face centrada com a constante da rede $a = 4.041 \text{ \AA}$ e distância interplanar $d_{111} = 2.3333 \text{ \AA}$. A largura na meia altura da curva de rocking é $W = 15.5 \text{ min}$. Desde que o feixe emergente do primeiro colimador possui uma determinada largura, em energias mais altas ou ângulos pequenos, o ideal é usar o cristal em transmissão, pois a face maior do cristal fica, praticamente, perpendicular ao feixe, recebendo todos os nêutrons incidentes. O Al (111) foi utilizado em energias acima do pico do espectro térmico (a ser visto no item 4.2.1) na medida da ressonância do Iridio em $E_0 = 0.654 \text{ eV}$. Isto porque este cristal além de ter refletividade maior que o Ge, a distância interplanar sendo menor do que a do Ge, o ângulo de medida com o Al(111) será maior do que o ângulo com o Ge(111), para a medida de um mesmo λ . E isto é interessante uma vez que o detector se afasta do feixe direto evitando a alta radiação de fundo (background) dessa posição.

Além desses cristais, um terceiro cristal de Ge, semelhante ao descrito acima, foi utilizado como amostra – na medida da secção de choque total do cristal (a ser visto no item 3.2.4) para a escolha da temperatura de Debye do Ge.

2.1.3 – Colimação do Feixe e Resolução

Como foi visto no Capítulo I, a difração de nêutrons por um monocristal é governada pela equação de Bragg (eq.1.1). Uma incerteza no ângulo de Bragg resulta em uma incerteza no comprimento de onda do nêutron. A medida do ângulo de Bragg requer a determinação do ângulo "zero" do braço do espectrômetro, definido pela direção do feixe primário que emerge do reator. Esta direção pode ser observada, com precisão, movendo o braço através da direção do feixe primário, mantendo o segundo colimador e o detector alinhados e observando a posição de máxima taxa de contagem. Durante as várias fases da experiência foram efetuadas algumas medidas do ângulo "zero" e as variações observadas são praticamente desprezíveis. Uma verificação do zero pode ser feita considerando o acordo dos pontos experimentais na medida da ressonância conhecida do irídio (figura 21).

A resolução em energia $\Delta E/E$ do feixe de nêutrons, difratados pelo cristal num dado ângulo θ , é obtida da diferenciação da equação de Bragg com relação a θ , e ainda usando a expressão $\lambda = 0.286/\sqrt{E}$, com λ em angstroms e E em eletrôn-volts. Portanto,

$$\frac{\Delta E}{E} = 13.99 \frac{d \sqrt{E}}{\cos \theta} \Delta \theta \quad (2.1)$$

Para uma dada energia e um conjunto de planos do cristal, a resolução do espectrômetro depende da incerteza $\Delta \theta$ no ângulo de Bragg. A expressão para $\Delta \theta$, no caso de dois colimadores com divergências angulares horizontais diferentes, é dado pela eq.(4.19) (será visto no item 4.2.4) que está calculada na referência⁽²⁶⁾ de acordo com a aproximação feita por Saito⁽⁶⁴⁾.

O efeito da divergência angular vertical do feixe na resolução em energia é pequeno e desprezível⁽¹⁶⁾. A divergência angular horizontal dos colimadores é dada pela relação $\alpha = d/l$, onde d é a abertura do colimador e l o comprimento. O primeiro colimador, que está inserido no canal de

irradiação do reator, é constituído por 19 tubos de aço colocados juntos em forma de um feixe; cada tubo tem 100 cm de comprimento, 0.575 cm de diâmetro interno e paredes com espessura 0.11 cm. Uma média ponderada, levando em conta as áreas das aberturas entre os tubos, foi efetuada para a determinação da divergência angular horizontal $\alpha_1 = 0.2526^\circ$. O segundo colimador consiste de 21 lâminas de aço com 42 cm de comprimento colocadas, igualmente espaçadas uma da outra, a uma distância de 0.18 cm; a divergência angular calculada é $\alpha_2 = 0.2454^\circ$.

A expressão para $\Delta\theta$, (eq.4.19) foi calculada de acordo com Sailor, que toma como hipótese que a refletividade é proporcional à espessura do cristal monocromador, desprezando a extinção secundária (será vista no ítem 3.2.2). Contudo, na prática, os cristais monocromadores de nêutrons são efetivamente de espessura infinita e nenhum aumento substancial da refletividade é obtido com o aumento da espessura do cristal; nessa situação a extinção não é desprezível e pelo contrário ela é completa.

Porém, no caso de haver interesse apenas na resolução, Popovici e Gelberg⁽⁵⁸⁾ mostram que quando as divergências angulares α_1 e α_2 dos colimadores são comparáveis, a resolução calculada, desprezando a extinção secundária, se aproxima suficientemente da resolução real. Esta aproximação foi feita para a construção da curva teórica do irídio afetada pela resolução instrumental (a ser vista no ítem 4.2.4).

No caso de haver interesse na refletividade do cristal, os mesmos autores citados mostram que o efeito da extinção deve ser considerado. Será visto no Cap. III, que nesse caso $\Delta\theta$ é uma função complicada que inclui o efeito da divergência angular horizontal do feixe e a estrutura de mosaico do cristal. A forma funcional da distribuição que determina $\Delta\theta$ é dada pelo integrando da eq. (3.31) para o cristal usado em reflexão.

2.1.4 – Detector de Nêutrons e Monitor do Feixe

O feixe de nêutrons difratados pelo cristal é detectado por um contador proporcional a gás BF_3 , enriquecido a 96% no isótopo B^{10} , a uma pressão de 60 cm de Hg. É um modelo (G-10-20) da "N. Wood", cilíndrico com 1" de diâmetro e comprimento ativo de 20". O detector é envolvido por uma folha de cádmio, de 1 mm de espessura, deixando uma abertura na extremidade do tubo para receber o feixe refletido. Além disso, blinda-se o detector com um cilindro de alumínio (20 cm dia. x 71 cm compr.) com 1 mm de espessura, contendo parafina e ácido bórico. Esse cilindro é apoiado sobre o braço do espectrômetro e ajustado de maneira que o eixo longitudinal do detector coincida com a direção da linha central do feixe refletido e assim a blindagem será efetiva para nêutrons com direções outras do que a do feixe de nêutrons difratados.

Com o objetivo de assegurar que o feixe incidente no cristal permaneça constante durante o tempo de contagem para o detector principal, um pequeno detector BF_3 de 1/2" de diâmetro foi utilizado como monitor. Este detector foi envolvido por uma folha de cádmio, com uma abertura lateral, e colocado próximo à saída do primeiro colimador e em posição de medir os nêutrons espalhados do feixe primário, de modo a não interferir com o feixe incidente sobre o cristal. Os tempos de contagem para o detector principal são condicionados a uma contagem predeterminada do canal de monitoração, eliminando dessa forma o efeito de flutuação na potência do reator.

Os preamplificadores, amplificadores, discriminadores, escalímetros, relógios eletrônicos e fontes de alta tensão, para ambos os detectores, são todas unidades transistorizadas RIDL. Ambos os escalímetros de seis décadas são conectados, através de uma unidade programadora RIDL, a uma impressora Hewlett-Packard. Ao atingir a contagem pré-determinada do escalímetro do monitor, a impressora imprime a contagem do detector principal, o tempo de contagem e mais a próxima contagem pré-determinada. O tempo morto do sistema de detecção foi medido e é igual a 2μ seg. O diagrama de bloco do equipamento eletrônico usado para a detecção dos nêutrons, pode ser visto na figura 1.

2.1.5 – Eficiência do Detector Principal

Para um feixe de nêutrons incidentes axialmente sobre um detector de BF_3 , à alta pressão e enriquecido, a eficiência é dada por:⁽²⁵⁾

$$\epsilon = \exp - (n_1 \sigma_1 t_1 + n_2 \sigma_2 t_2) [1 - \exp (-n_2 \sigma_2 t_3)] \quad (2.2)$$

onde $n_1 \sigma_1$ é a secção de choque macroscópica de absorção do material da janela, t_1 é a espessura da janela, n_2 é o número de átomos de B^{10} por cm^3 , σ_2 é a secção de choque do B^{10} , t_2 é o comprimento da região inativa do tubo junto a janela e t_3 é o comprimento ativo do detector.

O detector principal empregado nas experiências possui $t_1 = 0.135$ cm de alumínio, $t_2 = 1.75$ cm e $t_3 = 50.8$ cm. Nesse caso, $n_1 \sigma_1 t_1$, é desprezível comparado com $n_2 \sigma_2 t_2$.

Usando o valor de 3838 barns para σ_2 em 0.0253 eV⁽⁶³⁾, a eficiência do detector como uma função da energia é dada por:

$$\epsilon = \exp (-0.02179 E^{-1/2}) [1 - \exp (-0.63264 E^{-1/2})] \quad (2.3)$$

Um gráfico da eficiência do detector, calculado pela eq. (2.3) para 0.001 eV a 1.0 eV, é mostrado na figura 2. O efeito do comprimento inativo comina o comportamento da eficiência do detector em baixa energia.

2.2 – Medida da Secção de Choque Total

A determinação da secção de choque total, para nêutrons de uma dada energia E, pode ser feita observando a atenuação do feixe de nêutrons por uma amostra de espessura conhecida. A secção de choque total observada é dada pela relação:

$$\sigma_t(E) = \frac{1}{N} \ln \frac{1}{T(E)} \quad (2.4)$$

onde N é o número de átomos/barn da amostra, definido como $N = n x 10^{-24}$; com n representando o número de átomos/ cm^3 e x a espessura da amostra em cm; o fator 10^{-24} é devido a transformação de cm^2 em barn ($1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$).

A relação entre o número de nêutrons que passam através da amostra de espessura x e o número de nêutrons incidentes na amostra, é chamada "transmissão" e é dada pela equação:

$$T = e^{-N\sigma x} \quad (2.5)$$

A medida da transmissão é feita registrando-se as taxas de contagem, I, do detector principal, quando se interpõe a amostra entre o cristal e o detector; em seguida, é feita outra medida da taxa de contagem, I_0 , sem a amostra no feixe. A transmissão é dada pela razão I/I_0 , e com as eqs. (2.4) e (2.5) determina-se σ_t . Este método para a determinação da secção de choque total é denominado "método de

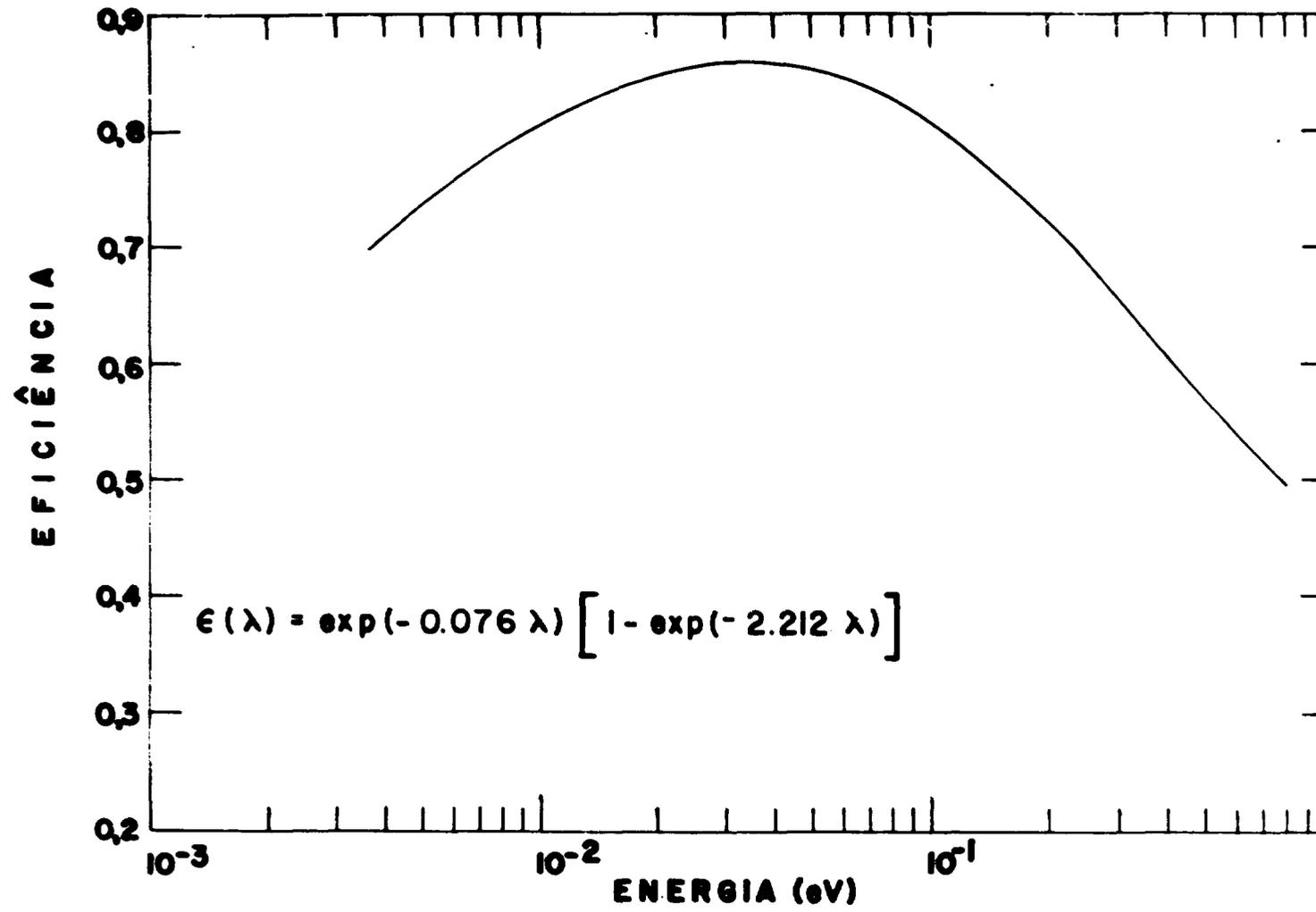


Figura 2 — Eficiência do detector BF₃

transmissão". Embora o princípio de medida seja muito simples, é necessário que seja tomada uma série de precauções para a obtenção de resultados precisos e reprodutíveis.

Além dos problemas da resolução em energia e das contaminações de ordens superiores, que será tratada detalhadamente nos capítulos seguintes, a avaliação dos erros sistemáticos, na determinação de σ_t , requer o conhecimento da radiação de fundo (background) e das características da amostra.

2.2.1 – Características e Preparação das Amostras

No presente trabalho foram utilizadas uma amostra de irídio em pó, acondicionada em uma caixa de alumínio, e uma amostra de ouro metálico em forma de placa.

A amostra de irídio foi adquirida da companhia The British Drug Houses Ltd. (England), e segundo as especificações fornecidas pela firma a pureza é igual ou maior a 99.95%. Para a medida da transmissão, a amostra foi acondicionada em um recipiente de alumínio que possui uma cavidade, com 2.055 cm de diâmetro onde é colocado o pó. Para a realização da experiência necessita-se de duas caixas porta-amostra semelhantes, pois uma delas deve ser utilizada vazia para a medida da taxa de contagem I₀.

As caixas porta-amostra foram feitas de alumínio, por que esse material é relativamente transparente aos nêutrons térmicos; as transmissões para nêutrons térmicos das duas caixas vazias foram medidas, os resultados são comparáveis, e pode-se considerá-las idênticas. A caixa permite acondicionar uma quantidade variável de pó; uma massa de 0.419 g de irídio foi colocada afim de se ter uma transmissão baixa na região de energias estudada, pois dessa forma minimiza-se o erro estatístico⁽⁶²⁾. O erro na determinação da massa é menor do que 0.1%.

Afim de evitar umidade na amostra, o irídio em pó foi secado a vácuo, antes de ser colocado no porta-amostra; além disso, a amostra foi conservada em um secador no intervalo de tempo entre duas medidas.

A colocação do pó no recipiente de alumínio é feita agitando o mesmo manualmente, de modo a se obter a máxima densidade possível da amostra. A uniformidade da compactação do pó é verificada pela observação da variação de transmissão para nêutrons em diversos pontos da amostra; dessas medidas nota-se variações menores que 0.5%.

O número de átomos por barn que entra nas eqs. (2.4) e (2.5) é dado por:

$$N = \frac{\rho N_0 x 10^{-24}}{A} \quad (2.6)$$

onde ρ é a densidade do material em g/cm³, N_0 é o número de Avogadro, A é a massa atômica em gramas, e x a espessura da amostra.

No caso de amostras em pó, a densidade a ser usada não é a densidade tabelada para o material, desde que nessas condições será função da compactação do pó. Nesse caso a densidade é determinada através de medidas de peso da amostra e volume do recipiente. O valor de N para a amostra de irídio, utilizada nesse trabalho, foi calculada pela eq. (2.6) e é igual a $N = 3.97 \times 10^{-4}$ átomos/barn.

A amostra de ouro foi utilizada como padrão nas medidas efetuadas com o cristal de Ge. Tem a forma de uma placa com espessura igual a 0.199 cm. Afim de verificar a pureza da amostra, foi feita uma análise por ativação pela Divisão de Radioquímica do IEA, e foi apontada a presença de 0.20% de Cu e 0.27% de Ag.

Quando há impurezas na amostra, a transmissão medida é dada por:

$$T = \exp - (N\sigma + N_1\sigma_1 + \dots + N_k\sigma_k) \quad (2.7)$$

onde N é o número de átomos/barn do elemento de interesse, N_i o número de átomos/barn das impurezas e σ_i as secções de choque das impurezas.

Pode-se mostrar facilmente que a expressão para a secção de choque total corrigida é dada por:

$$\sigma = \frac{\ln T^{-1}}{N} = \sum_{i=1}^k \frac{N_i\sigma_i}{N} \quad (2.8)$$

onde k é o número de impurezas. Considerando as densidades tabeladas⁽³²⁾ e a eq. (2.6) determinamos os valores

$$N_{Au} = 0.01173 \text{ at/barn} ; N_{Cu} = 3.266 \times 10^{-5}$$

at/barn e $N_{Ag} = 3.152 \times 10^{-5}$ at/barn. O valor da secção de choque do cobre é constante⁽³²⁾ e igual a 9.5 barns e para a prata⁽³²⁾ é dado pela expressão $\sigma_{Ag} = [9.8E^{-1} - 6.4]$ barns.

2.2.2 – Procedimento Experimental e Processamento dos Dados

O procedimento experimental, para a obtenção dos dados que determinam a transmissão em cada ângulo de Bragg (θ) do cristal, é o seguinte: coloca-se, no feixe de nêutrons difratados pelo cristal, a caixa de amostra vazia, idêntica àquela que contém a amostra, e mede-se a taxa de contagem C_0 para o detector do braço do espectrômetro; em seguida mede-se o background B_0 para essa situação. Substitui-se a caixa vazia por aquela que contém a amostra e mede-se novamente a taxa de contagem C_a e o background B_a .

O background é medido deslocando o cristal monocromador 2 graus fora da posição de reflexão de Bragg. A fonte de radiação de fundo no detector principal pode ser dividida em duas classes: a primeira é o background proveniente do cristal composto de nêutrons espalhados incoerentemente e que passam diretamente através do segundo colimador atingindo o detector; a segunda é o background do ambiente, que alcança o detector pelo segundo colimador e por penetração pela blindagem cilíndrica do braço.

Ambas as fontes de background são praticamente constantes com a energia, exceto para energias mais altas, ou seja, ângulos pequenos próximos ao feixe direto (âng. zero), onde o background aumenta sensivelmente com o decrescer de λ (ver figura 11).

A "curva de rocking" para a reflexão (III) do cristal de Ge (que pode ser vista na figura 10) é obtida girando o monocromador mantendo o ângulo do braço fixo e pode-se observar que basta deslocar o cristal 2 graus para a medida do background, uma vez que nessa posição a contagem é constante para qualquer dos lados do pico, constituindo uma pequena fração da intensidade no máximo da curva.

O número de contagens, predeterminado no canal de monitoração, foi escolhido de modo que a contagem acumulada, no canal de contagem do detector principal, contenha um erro estatístico máximo de 1%, afim de minimizar o erro no valor de transmissão. As correções para o tempo morto não foram consideradas, visto que a correção para a contagem observada na posição de máxima intensidade, com ambos os cristais é inferior a 0.4%. Todas as taxas de contagem são normalizadas para um certo número de contagens do monitor.

Com os valores das taxas de contagem, relativas aos feixes, incidente e transmitido pela amostra, e aos backgrounds correspondentes, determina-se a transmissão para um dado ângulo de Bragg.

$$T = \frac{Ca - Ba}{Co - Bo} = \frac{i}{I_0} \quad (2.9)$$

A secção de choque dada pela eq. (2.4), pode ser escrita

$$\sigma_T = \frac{1}{N} \ln \frac{I_0}{I} = \frac{1}{N} \ln \frac{Co - Bo}{Ca - Ba} \quad (2.10)$$

Para o cálculo do erro no valor da secção de choque, dado pela eq. (2.10), considera-se que o N não está afetado de erro⁽⁵⁾, e somente as flutuações estatísticas nas contagens Co, Bo, Ca e Ba contribuem para o erro em σ_T .

Como o erro estatístico nas contagens é dado pela raiz quadrada dos mesmos, usando as regras de propagação de erros, obtém-se o erro em σ_T , pelas seguintes expressões:

$$\Delta\sigma_T = \frac{1}{N} \sqrt{\left(\frac{\Delta I_0}{I_0}\right)^2 + \left(\frac{\Delta I}{I}\right)^2} \quad (2.11)$$

com

$$\Delta I_0 = \sqrt{(\Delta Co)^2 + (\Delta Bo)^2} \quad (2.12)$$

e

$$\Delta I = \sqrt{(\Delta Ca)^2 + (\Delta Ba)^2} \quad (2.13)$$

Os cálculos da secção de choque total σ_T e seu erro estatístico $\Delta\sigma_T$, são efetuados a partir dos valores das taxas de contagem medidas, com o auxílio do computador IBM-1620 do IEA, através do programa "Secção de choque Total" em FORTRAN-II-D. Este programa, que também corrige os efeitos da presença de impurezas na amostra (eq. 2.8), foi elaborado especialmente para este trabalho.

CAPÍTULO III

CONSIDERAÇÕES TEÓRICAS

3.1 - Introdução

Para o cálculo das contaminações de ordens superiores no feixe de nêutrons difratados pelo cristal ou feixe refletido, é necessário o conhecimento da refletividade do cristal para as várias ordens de reflexão. No ítem 2.1.3 foi visto que havendo interesse na refletividade, o efeito de extinção no cristal deve ser considerado e que a largura de resolução será uma função das divergências angulares dos colimadores e da estrutura de mosaico do cristal.

O objetivo principal deste capítulo é de apresentar as expressões envolvidas no cálculo da refletividade e da resolução do instrumento, além de abordar os problemas de contaminação de ordens superiores e das reflexões parasitas, sempre presentes em uma medida da intensidade difratada pelo cristal em função do ângulo de Bragg.

Inicialmente serão feitas algumas considerações sobre a natureza dos cristais monocromadores de nêutrons; além disso, será considerada a refletividade integrada do cristal para o caso em que o mesmo sofre um giro em torno de sua posição de Bragg, em feixe de nêutrons monoenergéticos e paralelo, mantendo fixo o ângulo do detector.

Em seguida será considerado o caso da refletividade integrada para o cristal fixo em sua posição de Bragg e exposto a um feixe de radiação polienergética, com o detector ainda em posição fixa; isto será feito levando em conta a largura de mosaico de cristal e a divergência angular finita do feixe. Este último caso corresponde às condições em que o espectro do reator é medido e também àquelas em que as secções de choque totais são medidas em cada energia.

O caso em que o cristal monocromatiza nêutrons por transmissão, ou seja, quando os nêutrons difratados emergem do cristal pelo lado oposto ao da incidência, já foi tratado por diversos autores^(18,34) e a refletividade pode ser representada por uma simples expressão analítica.

Neste capítulo, consideraremos apenas o caso de reflexão simétrica, no qual os planos difratadores são paralelos à face do cristal, caso este em que a expressão para a refletividade deve ser resolvida numericamente.

3.1.1 – Cristais Perfeitos

Um cristal cuja estrutura é perfeitamente uniforme e regular, em toda sua extensão, é chamado “perfeito”. A maneira pela qual a radiação é refletida por um cristal perfeito, pode ser estudada considerando-se a intensidade de reflexão de um pequeno elemento de volume δV do cristal, com a condição de δV ser tão pequeno, que difrate somente uma pequena percentagem do fluxo de nêutrons incidente (I nêutrons/cm² seg)⁽⁴⁾. Deste modo pode ser mostrado pela teoria da difração⁽⁷⁴⁾ que, girando o cristal em torno da posição de Bragg, mantendo o detector fixo, a reflexão integrada devido ao elemento de volume δV é dada por $I Q \delta V$ nêutrons/seg.

A quantidade cristalográfica Q deduzida por Zachariasen⁽⁷⁴⁾ é dada por:

$$Q = \frac{\lambda^3 N_c^2 F^2}{\text{sen} 2\theta} \quad (3.1)$$

onde N_c é o número de células unitárias por unidade de volume e F é o fator de estrutura dado por:

$$F^2_{hkl} = \left[\sum b e^{-2M} \exp 2\pi i (h x_i + k y_i + l z_i) \right]^2 \quad (3.2)$$

A soma é feita sobre todos os átomos da célula unitária, sendo b a amplitude de espalhamento coerente. O fator de Debye Waller e^{-2M} já discutido e justificado por vários autores^(8,72), leva em conta as vibrações térmicas dos átomos⁽⁴¹⁾. A expressão analítica para M usada nos cálculos é:

$$M = \frac{6h^2}{mk\Theta} \left(\frac{n}{2d} \right)^2 \left[\frac{1}{4} + \left(\frac{T}{\Theta} \right)^2 \cdot \Lambda \left(\frac{\Theta}{T} \right) \right] \quad (3.3)$$

com

$$\Lambda(z) = \int_0^z \frac{x}{e^x - 1} dx \quad (3.4)$$

onde Θ é a temperatura de Debye do cristal, h e k são as constantes de Planck e Boltzmann respectivamente; m é a massa nuclear, d a distância interplanar, n o número de ordem e T a temperatura do cristal em graus Kelvin. A função $\Lambda(z)$ foi apresentada por Debye e está reproduzida no trabalho de Blake⁽⁸⁾

Considerando todo volume de um cristal perfeito, o feixe de nêutrons, que vai incidindo no ângulo de Bragg, terá sua amplitude reduzida por captura nuclear, por espalhamentos outros do que o de Bragg e também pelo fato de que certa intensidade está sendo difratada escapando do cristal no feixe refletido. Portanto, as partes mais profundas do cristal contribuem menos do que as da superfície, não só pela absorção, mas porque nêutrons, que estavam incidindo com a energia correta para a difração, foram removidos antes de alcançá-los (figura 3).

Nessas condições, a simples expressão QV não se aplicará sobre todo o volume, pois a potência do feixe incidente diminui apreciavelmente com a penetração. Esta redução da intensidade incidente é o fenômeno da "extinção". Em um cristal perfeito, a extinção de uma frente de ondas, se propagando, pode ser considerada como componentes, repetidamente refletidas na mesma direção com fases opostas. Extinção dessa forma, devida a uma estrutura perfeitamente ordenada de unidades espalhadoras, é chamada "primária".

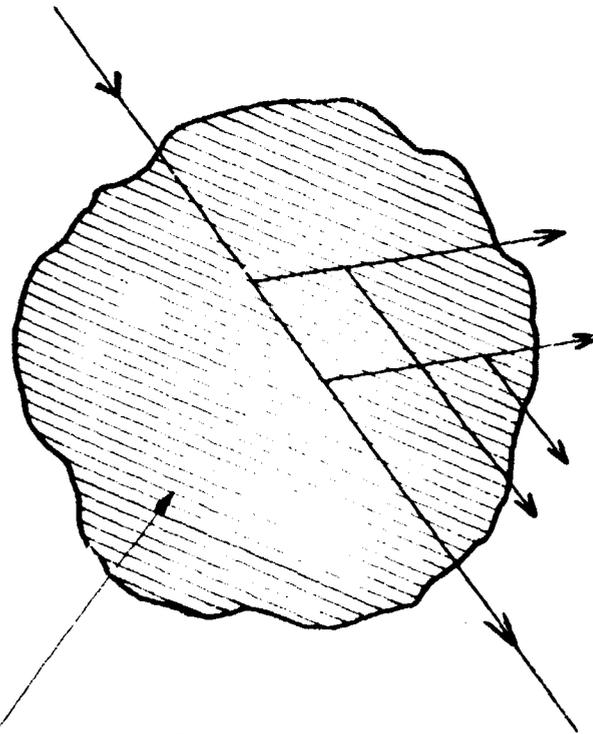
3.1.2 – Cristais Mosaicos

Contudo, a maioria dos cristais possui irregularidades em seu arranjo atômico, na forma de distorções e deslocamentos na estrutura. Estas irregularidades tendem a destruir a coerência, ou relações de fase fixas, entre as componentes do feixe espalhado pelas diferentes partes do cristal. O cristal é dividido efetivamente em pequenas regiões cuja extensão é da ordem de 5000 Å, as quais são suficientemente perfeitas para refletir o feixe coerentemente; mas entre estas regiões não há coerência. Estas regiões individualmente perfeitas são conhecidas como "blocos mosaicos" e permanecem unidas com orientações ao acaso.

A passagem de um feixe de nêutrons através de um cristal mosaico é bem diferente do que através de um cristal perfeito. O intervalo angular de reflexão para um cristal perfeito é somente poucos segundos do arco⁽⁴⁾, enquanto que a desorientação angular dos blocos mosaicos adjacentes é medida em minutos de arco. Conseqüentemente, o feixe penetra profundamente em um cristal mosaico antes de alcançar blocos mosaicos com orientação idêntica aqueles próximos a superfície. Portanto, se dois blocos mosaicos estão em posição para a reflexão de Bragg, porém um próximo à superfície e outro em uma camada inferior do cristal, estes blocos são irradiados diferentemente, pois a intensidade é diminuída do primeiro para o segundo bloco, devido à difração no primeiro. A atenuação do feixe, devido ao espalhamento de Bragg por blocos mosaicos identicamente orientados, é conhecida por "extinção secundária". (figura 4).

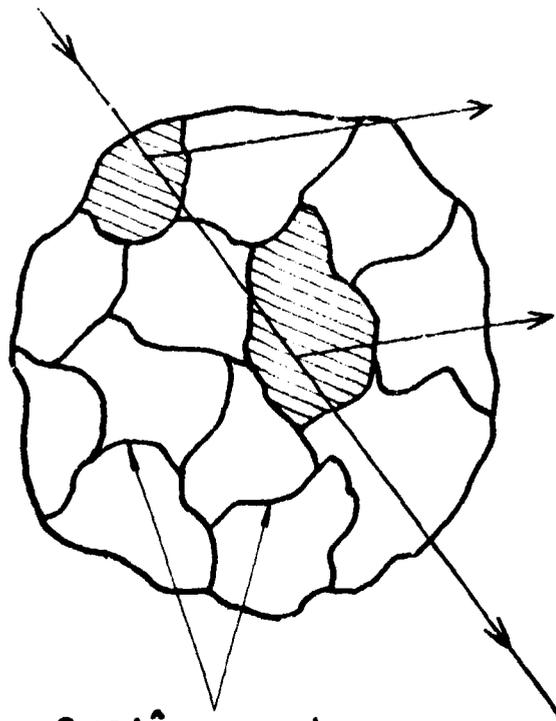
Na extinção primária, as amplitudes das ondas espalhadas devem ser somadas para obter o espalhamento de todo cristal; e na extinção secundária, uma vez que não há coerência entre os blocos mosaicos, as intensidades são somadas.

Sendo os blocos mosaicos grandes, ocorrem ambos os tipos de extinção, porém se os blocos forem suficientemente pequenos, de modo que a extinção primária seja desprezível, o cristal é chamado "idealmente imperfeito". De uma maneira geral, é nessa categoria que se acham os cristais



Cristal perfeito

Figura 3 – Extinção primária, causando atenuação no feixe em um cristal perfeito ou em um bloco mosaico isolado.



**Contorno dos
blocos mosaicos**

Figura 4 – Extinção secundária, causando atenuação por reflexão em dois blocos mosaicos com a mesma orientação.

monocromadores de nêutrons e a redução de intensidade no seu interior é controlada pela distribuição angular $W(\Delta)$ dos blocos mosaicos, que normalmente possui a forma de uma Gaussiana.

$$W(\Delta) = \left(\frac{1}{\eta \sqrt{2\pi}} \right) \exp \left(-\frac{\Delta^2}{2\eta^2} \right) \quad (3.5)$$

onde $\eta = \beta/2 \sqrt{2 \ln 2}$, onde β é chamado "largura do mosaico" do cristal e representa a largura na meia altura da distribuição $W(\Delta)$. A função W é definida de modo que $W(\Delta) d\Delta$ represente a fração dos blocos mosaicos que possuem suas normais entre os ângulos Δ e $\Delta + d\Delta$, em relação à superfície do cristal. A validade dessa hipótese é discutida por James⁽⁴¹⁾.

3.2 – Feixe de Nêutrons Paralelo e Monoenergético

3.2.1 – Potência do Feixe Incidente e Difrato no Cristal

Os blocos mosaicos, possuindo orientação ao acaso, espalham nêutrons independentemente um do outro, não havendo relações de fase definidas entre os espalhamentos de nêutrons dos diferentes blocos. Conseqüentemente, pode-se tratar diretamente com a potência do feixe incidente $P_0(t)$ e a potência do feixe difratado $P_H(t)$, ambas numa espessura t do cristal.

A variação da intensidade depende da profundidade de penetração, que por sua vez é uma função das combinações dos tipos de extinção e da absorção. Quando a atenuação da intensidade ou perda de potência dentro de um bloco mosaico é pequena, o cristal é "idealmente imperfeito" e a variação real dentro do cristal pode ser aproximada por uma curva monótona⁽¹⁸⁾, para a qual uma equação diferencial pode ser proposta e resolvida.

As equações diferenciais acopladas, que descrevem o comportamento de $P_0(t)$ e $P_H(t)$ ao atravessar uma camada dt de um cristal mosaico – de espessura total t_0 –, foram inicialmente apresentadas por Zachariasen⁽⁷⁴⁾ e James⁽⁴¹⁾ para raios X e depois reestudadas por Bacon e Lowde⁽⁴⁾ no caso de difração com nêutrons.

Consideremos o caso de reflexão simétrica em um cristal mosaico em forma de uma placa de espessura t_0 (figura 5). Seja um feixe paralelo de nêutrons monoenergéticos, incidentes sobre os planos refletor paralelos à face do cristal; definindo γ_0 e γ_H como os cossenos diretores, em relação à normal à superfície do cristal, dos feixes incidente e difratado respectivamente, nota-se que quando a reflexão é simétrica $\gamma_0 = \gamma_H$.

Através de uma camada de espessura dt do cristal, o caminho percorrido pelos feixes incidente e difratado é dt/γ_0 e ambos perdem potência devido à difração e a absorção nessa distância. Contudo, a potência perdida por um feixe, por causa da difração, será ganha pelo outro feixe.

A fração dos blocos mosaicos em posição de difratar o feixe é $W(\Delta) d\Delta$, o que significa que a refletividade por unidade de caminho é dada por⁽¹⁸⁾:

$$S(\Delta)d\Delta = QW(\Delta)d\Delta \quad (3.6)$$

Se o coeficiente de absorção linear é μ , a variação de $P_0(\Delta, t)$ e de $P_H(\Delta, t)$ ao transpor uma camada dt na profundidade t , para o caso de reflexão simétrica, será dada pelas equações⁽⁷⁴⁾:

$$dP_o(\Delta, t) = \left(-\mu \frac{P_o(\Delta, t)}{\gamma_o} - S \frac{P_o(\Delta, t)}{\gamma_o} + S \frac{P_H(\Delta, t)}{\gamma_o} \right) dt \quad (3.7)$$

$$dP_H(\Delta, t) = \left(\mu \frac{P_H(\Delta, t)}{\gamma_o} + S \frac{P_H(\Delta, t)}{\gamma_o} - S \frac{P_o(\Delta, t)}{\gamma_o} \right) dt \quad (3.8)$$

Os dois primeiros termos do segundo membro de cada equação representam o decréscimo de potência devido à absorção e à difração. O terceiro termo representa o aumento de potência devido a um feixe duplamente difratado.

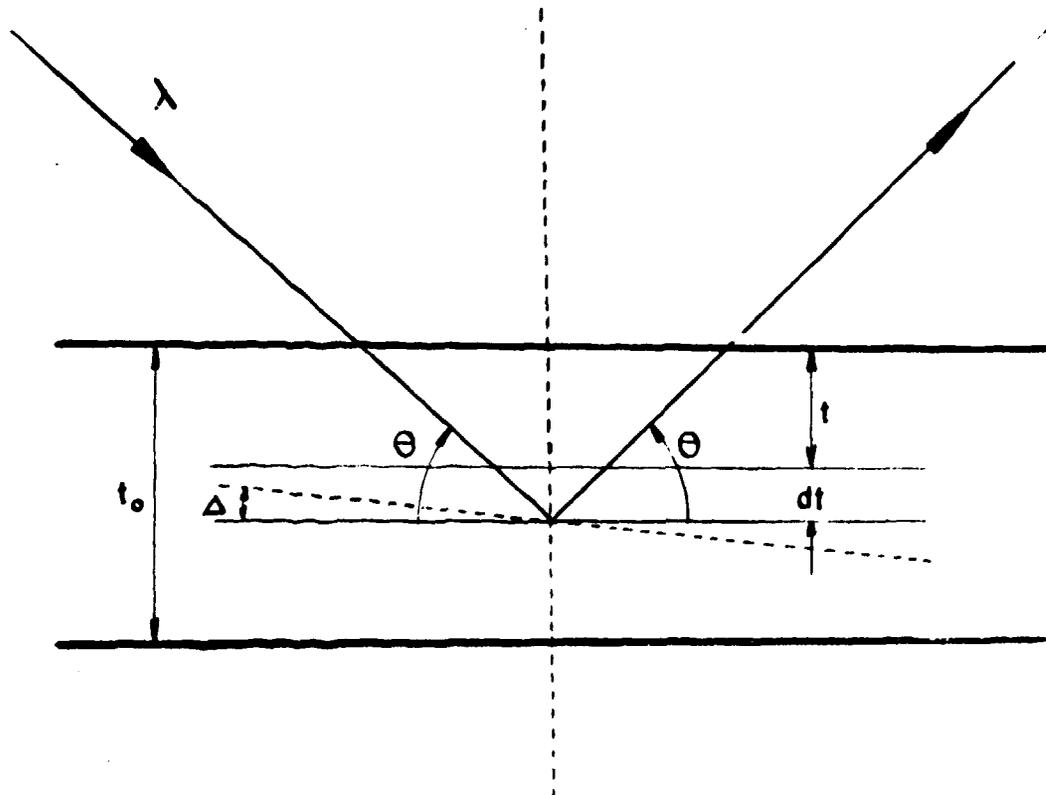


Figura 5 - Reflexão simétrica por uma placa plana $\gamma_o = \gamma_t \sin \theta$; onde Δ é a orientação média dos planos cristalinos.

3.2.2 – Coeficiente de Absorção Linear

Assumindo que o cristal está em uma posição que evita a reflexão de Bragg, e que um feixe de radiação monocromática passa através de uma espessura t do cristal, pode-se definir o coeficiente de absorção linear pela relação:

$$I = I_0 e^{-\mu t} \quad (3.9)$$

onde I_0 e I são as intensidades incidentes e emergentes respectivamente.

Consideremos o primeiro termo do segundo membro das eqs. (3.7) e (3.8). O coeficiente de absorção efetivo deve incluir todas as outras interações – com exceção do espalhamento de Bragg – que poderiam retirar nêutrons do feixe incidente ou difratado⁽⁴²⁾. Portanto, o μ é a secção de choque macroscópica total do cristal a menos do espalhamento coerente elástico.

$$\mu = \Sigma \text{ absorção} + \Sigma \text{ espalhamento} \quad (3.10)$$

O termo Σ absorção é igual a $N\sigma_a$, onde N é o número de átomos/cm³ do cristal e σ_a é a secção de choque microscópica de captura e tem dependência proporcional a $E^{-1/2}$, em relação a energia do nêutron incidente.

Desde que o tipo de espalhamento de Bragg é o coerente elástico, no termo Σ espalh. deve constar todos os outros tipos de secções de choque macroscópicas de espalhamentos disponíveis, ou seja:

$E_{\text{elast.}}^{\text{inco}}$ -- incoerente elástica

$E_{\text{inel.}}^{\text{coer.}}$ -- coerente inelástica

$E_{\text{inel.}}^{\text{inc.}}$ -- incoerente inelástica.

Pode-se reescrever a eq. (3.10) na forma

$$\mu = N\sigma_a + E_{\text{inel.}}^{\text{coer.}} + E_{\text{elast.}}^{\text{inco}} + E_{\text{inel.}}^{\text{inco}} \quad (3.11)$$

Embora ambas: $E_{\text{elast.}}^{\text{inco}}$ e $E_{\text{inel.}}^{\text{inco}}$ sejam fortemente dependentes da energia, sua soma é relativamente constante⁽⁵⁰⁾; e sobre o intervalo de energia de 0.001 a 1.0 eV, uma aproximação razoável pode ser feita^(46,70)

$$E_{\text{total}}^{\text{inco}} = N\sigma_i = E_{\text{elast.}}^{\text{inco}} + E_{\text{inel.}}^{\text{inco}} \quad (3.12)$$

onde σ_i é a secção de choque de espalhamento incoerente para um núcleo isolado. A aproximação (eq. 3.12) é muito boa quando usada na eq. (3.11), porque σ_i é geralmente muito pequena para a maioria dos elementos que formam os cristais monocromadores de nêutrons⁽⁶⁰⁾, sendo praticamente zero para o Al, e para o Ge é muito pequena, quando comparada com a secção de choque de absorção na região próxima ao extremo inferior do intervalo de energia (~ 0.001 eV). No extremo de energias mais altas (~ 1.0 eV) a E_{inel}^{coer} se torna muito grande quando comparada a $N\sigma_i$.

Pode-se representar E_{inel}^{coer} pela chamada "aproximação de Placzek"^(56,57) que mostra boa concordância com resultados experimentais no intervalo de energia de 0.001 a 1.0 eV⁽⁷⁰⁾, desde que a temperatura de Debye seja escolhida convenientemente⁽⁴⁶⁾. Nesta aproximação, aproveita-se a semelhança de comportamento, em relação a λ , da secção de choque coerente inelástica e da incoerente inelástica⁽⁷⁰⁾ e substitui-se o σ_i por σ_c para calcular o E_{inel}^{coer} , onde σ_c é a secção de choque coerente do elemento e é calculada pela expressão $\sigma_c = 4\pi b^2$, onde b é a amplitude de espalhamento coerente.

$$E_{inel}^{coer} = \left(\frac{\sigma_c}{\sigma_i}\right) E_{inel}^{inco} \quad (3.13)$$

A eq. (3.13) pode ser escrita na forma

$$E_{inel}^{coer} = \frac{\sigma_c}{\sigma_i} (E_{total}^{inco} - E_{elast}^{inco}) \quad (3.14)$$

Usando a eq. (3.12) e a expressão para E_{elast}^{inco} já adotada em vários trabalhos^(15,46,70), obtém-se:

$$E_{inel}^{coer} = N\sigma_c \left[1 - (1 - e^{-\zeta}) / \zeta \right] \quad (3.15)$$

onde

$$\zeta = \left(\frac{24 E m'}{k \Theta m}\right) \left[\frac{1}{4} + \left(\frac{T}{\Theta}\right)^2 \cdot \Delta \left(\frac{\Theta}{T}\right) \right] \quad (3.16)$$

Todos os valores já foram definidos anteriormente, a menos de E e m' , que são a energia e a massa do nêutron respectivamente.

A eq. (3.11) pode ser escrita na forma:

$$\mu = N \left\{ \sigma_a + \sigma_i + \sigma_c \left[1 - (1 - e^{-\zeta}) / \zeta \right] \right\} \quad (3.17)$$

Para que a eq. (3.17) represente a secção de choque macroscópica do cristal, a menos da secção de choque coerente elástica usada para a difração de Bragg, deve-se adotar convenientemente o valor da temperatura de Debye do cristal⁽⁴⁶⁾. No caso do Ge, existem vários valores tabelados⁽³³⁾ e é necessário adotar um critério para a escolha do valor conveniente.

A secção de choque coerente elástica contribui para a secção de choque total de um monocristal em determinadas energias, na forma de picos correspondentes à difração de Bragg de

determinados planos cristalinos. Afora esses picos o comportamento da curva é dado pela composição dos outros tipos de secção de choque^(42,46,70). Retomando a eq. (3.17) e dividindo por N, tem-se a equação da secção de choque microscópica total do cristal σ , a menos do espalhamento coerente elástico.

$$\sigma = \sigma_a + \sigma_i + \sigma_c [1 - (1 - e^{-\xi}) / \xi]$$

A eq. (3.18) foi calculada para as várias temperaturas de Debye do Ge, e foi feita a comparação com os pontos experimentais da secção de choque total do cristal (figura 6), os quais foram medidos pelo procedimento experimental descrito no Cap. II, ou seja pelo, método de transmissão, com o feixe incidido perpendicularmente aos planos (III).

A curva que melhor se ajusta aos pontos é aquela calculada com $\Theta = 370^\circ \text{K}$; e este foi o valor adotado para a temperatura de Debye do Ge.

O gráfico da figura 7 mostra o valor de μ para o Ge, calculado pela eq. (3.17), no intervalo de comprimento de onda de 0.1 a 3.5 Å (8.2 a 0.001 eV). Esse cálculo foi feito com dados: $T_3 = 295^\circ \text{K}$, $m = 12.049 \times 10^{-23} \text{ g}$ e $N = 4.44 \times 10^{22} \text{ átomos/cm}^3$. Os valores das secções de choque microscópicas são tabelados⁽⁶⁰⁾ e a função $f_1(\frac{\Theta}{T})$ foi calculada pelo computador do IEA, através do programa GALEG, em FORTRAN II. O valor de $\mu = 0.18 \text{ cm}^{-1}$ para $\lambda = 1 \text{ Å}$ coincide com o calculado por Popovici (Po68) para este mesmo comprimento de onda.

3.2.3 – Refletividade Integrada para Cristal que Sofre Rotação em Torno de Um Feixe Paralelo e Monoenergético

O sistema de eqs. (3.7) e (3.8) está resolvido em detalhes no apêndice A. A solução do sistema contém duas constantes arbitrárias que são determinadas pelas condições de contorno.

Uma condição de contorno é obtida assumindo conhecida a potência do feixe incidente na face do cristal.

$$P_o(t) = P_o(0) \quad \text{em } t = 0 \quad (3.18)$$

Obtém-se a segunda condição de contorno considerando que o feixe difratado é produzido dentro da placa cristalina e, por conseguinte, deve emergir por uma superfície da placa e anular-se na outra superfície.

$$P_H(t) = 0 \quad \text{em } t = t_o \quad (3.19)$$

para o caso do cristal que monocromatiza nêutrons por reflexão.

O maior interesse do cálculo é a determinação do comportamento da razão entre as potências dos feixes difratado e incidente na face do cristal, isto é $P_H(o)/P_o(o)$, com função de Δ .

Esta razão denomina-se $P(\Theta, \Delta)$ e representa a refletividade dos blocos mosaicos com deslocamento angular Δ , relativamente à orientação média, para nêutrons monoenergéticos caracterizados pelo ângulo de Bragg Θ .

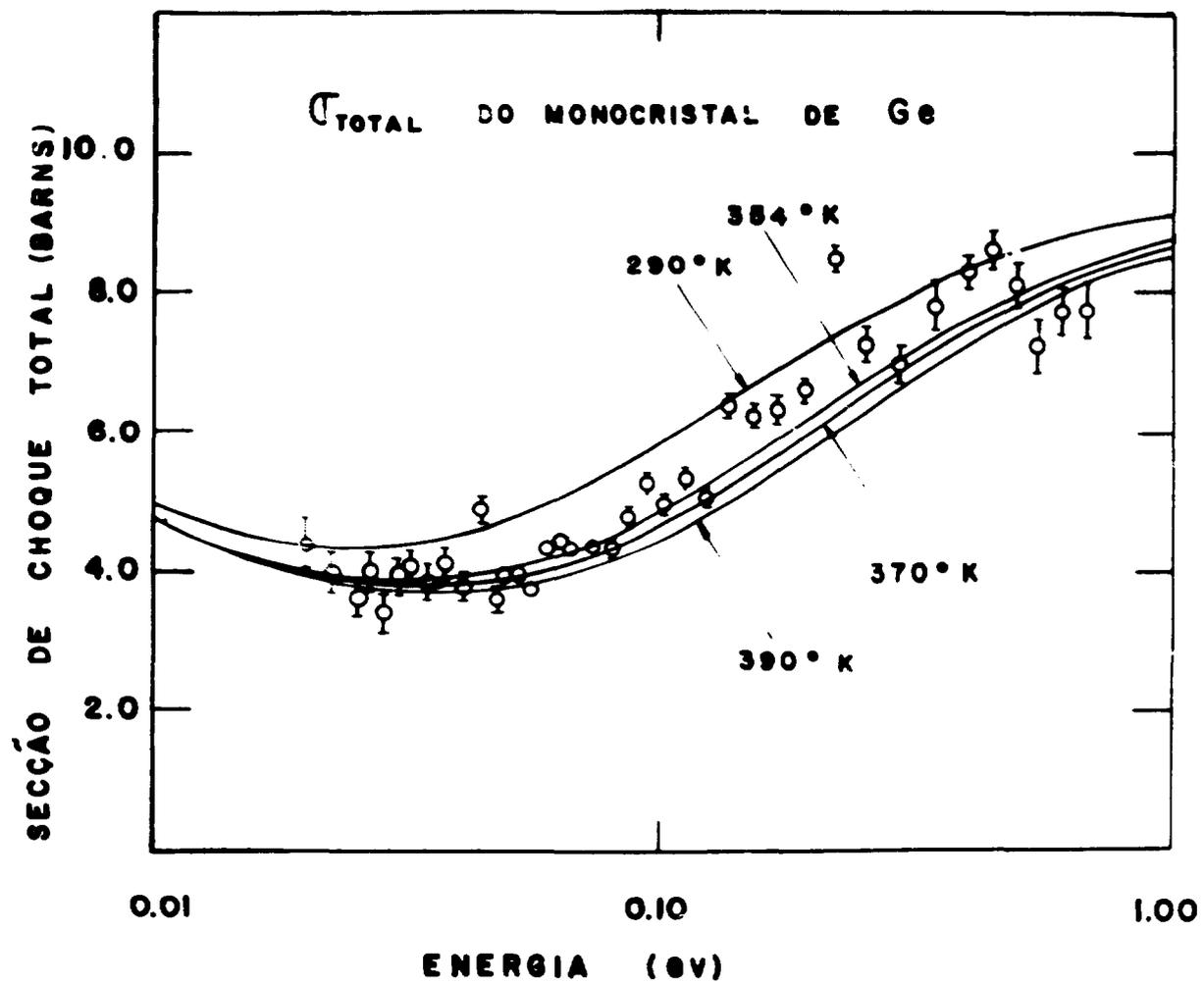


Figura 6 — Secção de choque total de um monocristal de germânio; medida por transmissão através do cristal, com o feixe incidindo perpendicularmente à face.

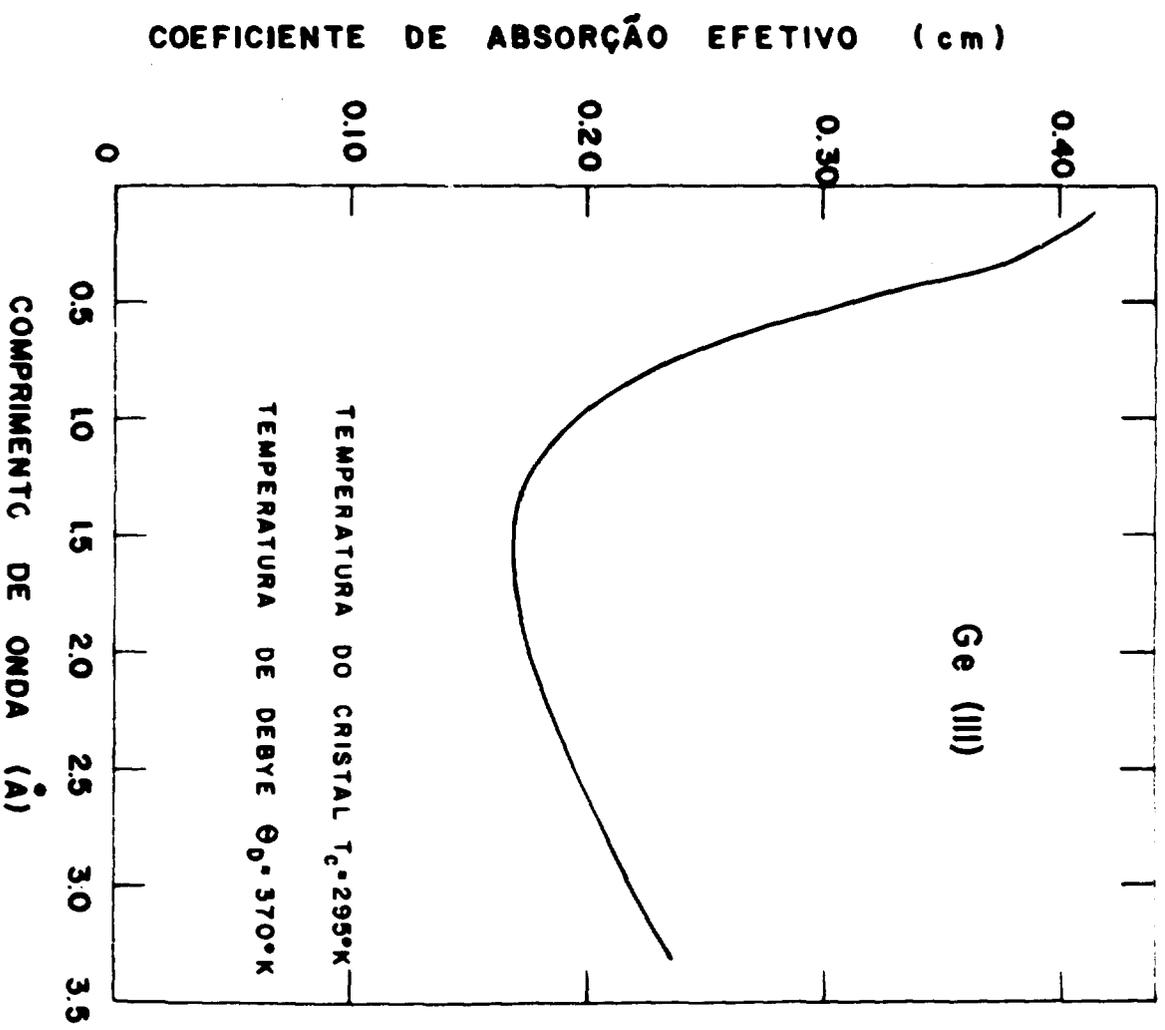


Figura 7 - Coeficiente de absorção efetivo do cristal de Ge, na aproximação incoerente de Placzek.

As constantes da solução do sistema de equações (3.7) e (3.8) foram determinadas no Apêndice A, a partir das condições de contorno (3.18) e (3.19), obtendo-se a expressão da refletividade.

$$P(\Theta, \Delta) = \frac{P_H(\Delta, 0)}{P_O(\Delta, 0)} = \frac{a}{(1+a) + \sqrt{1+2a} \coth [A\sqrt{1+2a}]} \quad (3.20)$$

com $a = S/\mu$ e $A = \mu t_o/\gamma_o$, onde todos os termos já foram definidos anteriormente.

A integral da relação $P(\Theta, \Delta)$, sobre todos os valores de Δ , é chamada refletividade integrada de um cristal idealmente imperfeito em reflexão e foi definida por Bacon e Lowde⁽⁴⁾ como:

$$R^\Theta = \int P(\Theta, \Delta) d\Delta \quad (3.21)$$

O R^Θ dado pela eq. (3.21), corresponde ao caso em que o ângulo de incidência entre o cristal e um feixe monocromático e paralelo, é variado efetuando um giro do cristal em torno do feixe; note-se que para esse caso não foi considerado o efeito de colimação finita do feixe.

3.3 – Feixe de Nêutrons Colimado e Polienergético

A medida da intensidade, refletida pelo cristal em cada energia, é efetuada com o espectrômetro de cristal na seguinte condição experimental: o feixe de nêutrons polienergético proveniente do reator, depois de passar pelo primeiro colimador, incide sobre o cristal mantido fixo no ângulo de Bragg Θ_B em relação ao feixe incidente; o feixe refletido pelo cristal passa pelo segundo colimador e atinge o detector também fixo, no ângulo $2\Theta_B$.

Inicialmente será visto como a colimação influencia a refletividade do cristal fixo num feixe de radiação polienergética; em seguida será mostrado como a intensidade, em cada ângulo, varia em função da refletividade.

3.3.1 – Efeito da Colimação Finita

A figura 8 mostra uma situação em que o feixe de nêutrons, proveniente do canal de irradiação, incide sobre um cristal.

O caminho I indica o feixe de nêutrons de comprimento de onda λ_B (correspondentes ao ângulo de Bragg fixo Θ_B) que são difratados por blocos mosaicos com a orientação média. O caminho II indica um feixe refletido por blocos mosaicos deslocados de um ângulo Δ em relação à orientação média; esses nêutrons possuem comprimento de onda λ (correspondente ao ângulo de Bragg Θ). O â n g u l o entre I e II, antes da reflexão é δ , e depois da reflexão, é φ , onde:

$$\delta = (\Theta - \Theta_B) - \Delta \quad \text{e} \quad \varphi = \delta + 2\Delta = (\Theta - \Theta_B) + \Delta \quad (3.22)$$

Se o feixe incidente passa através do primeiro colimador, cuja função transmissão é representada por $I_i(\delta)$, e o feixe difratado tem que passar através do segundo colimador, cuja função é dado por $I_d(\varphi)$; então a função resolução será dada pela integral:

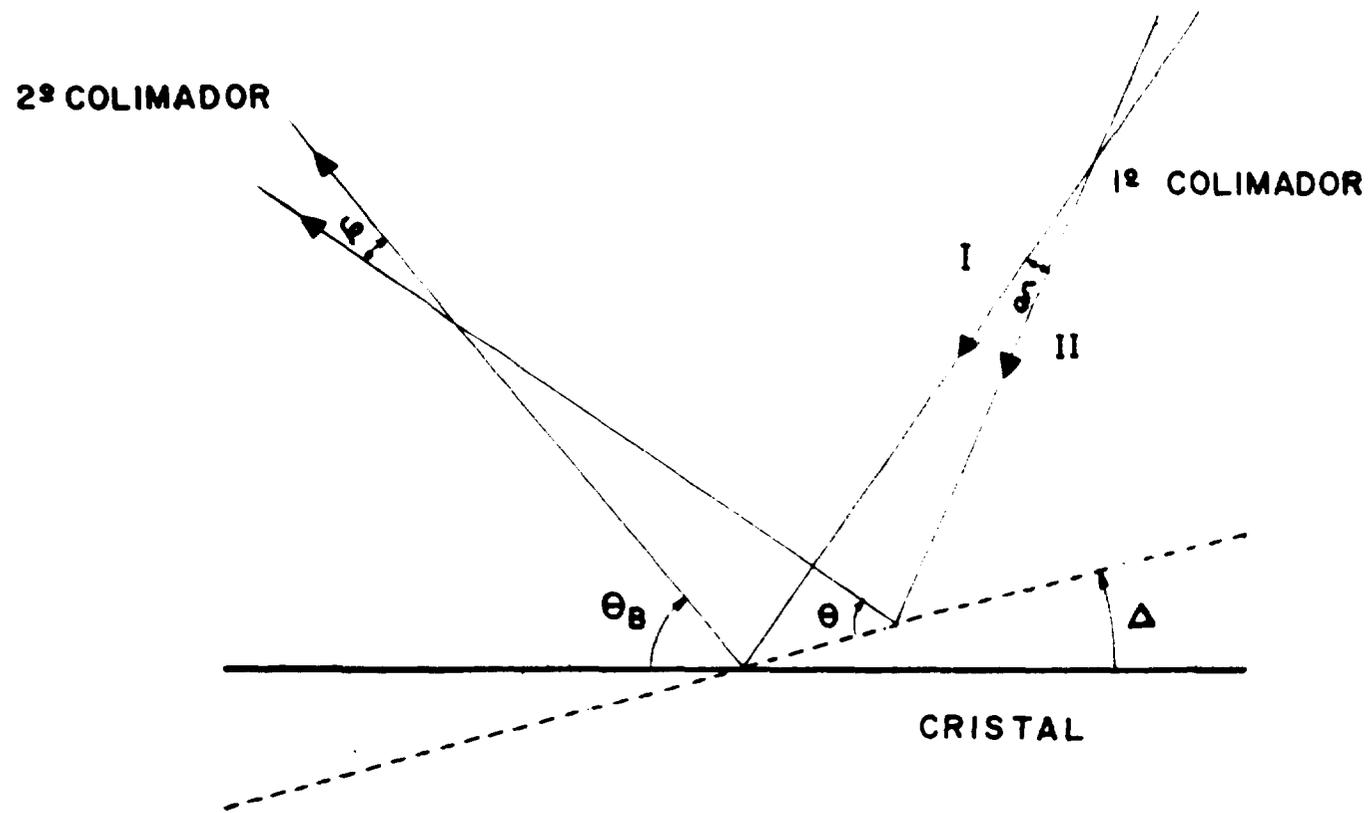


Figura 8 – Geometria para o cálculo do efeito da colimação finita.

$$R(\Theta - \Theta_B) = \text{cte} \int I_1(\delta) P(\Theta, \Delta) I_d(\varphi) d\Delta \quad (3.23)$$

Esta expressão (3.23) é completamente equivalente às relações deduzidas por Dietrich e Als-Nielsen⁽¹⁸⁾.

Para facilidade de cálculo considera-se o caso em que ambos os colimadores possuem divergências angulares iguais, mas mostra-se que os resultados podem ser aproveitados para o caso de colimadores diferentes, fazendo uso de uma relação simples.

Uma boa aproximação para a função transmissão do colimador é considerá-la como uma distribuição Gaussiana⁽⁸⁴⁾, com largura na meia altura igual à divergência angular do colimador. Para o primeiro colimador a função é dada por:

$$I_1(\delta) = \frac{1}{\alpha' \sqrt{2\pi}} \exp \left[-\frac{\delta^2}{2\alpha'^2} \right] \quad (3.24)$$

e para o segundo colimador

$$I_d(\varphi) = \frac{1}{\alpha' \sqrt{2\pi}} \exp \left[-\frac{\varphi^2}{2\alpha'^2} \right] \quad (3.25)$$

com $\alpha' = \alpha/2 \sqrt{2 \ln 2}$ onde δ e φ representam a divergência angular da passagem central através do colimador. No caso de colimadores com divergências angulares diferentes, isto é, $\alpha_1 \neq \alpha_2$, Popovici⁽⁵⁹⁾ mostra que basta substituir α por $\alpha_0/\sqrt{2}$, onde $\alpha_0 = \sqrt{\alpha_1^2 + \alpha_2^2}$, e pode-se utilizar os mesmos resultados calculados para o caso de colimadores iguais.

A constante da eq. (3.23) leva em conta a normalização das funções transmissão dos colimadores e só é necessário calculá-la quando há interesse na determinação de intensidades absolutas, que não é o caso do presente trabalho.

O produto das funções (3.24) e (3.25) é dado por:

$$I_1(\delta) I_d(\varphi) = \frac{1}{2\pi\alpha'^2} \exp \left[-\frac{(\Theta - \Theta_B)^2 + \Delta^2}{\alpha'^2} \right] \quad (3.26)$$

Substituindo na eq. (3.23) obtém-se:

$$R(\Theta - \Theta_B) = \text{cte} \times e^{-(\Theta - \Theta_B)^2/\alpha'^2} \int e^{-\Delta^2/\alpha'^2} P(\Theta, \Delta) d\Delta \quad (3.27)$$

A integral da eq. (3.27) é chamada refletividade integrada R^Θ .

3.3.2 – Intensidade como Função de Refletividade

A intensidade depois do segundo colimador para um determinado ângulo de Bragg Θ_B do cristal, $I(\Theta_B)$, é obtida multiplicando a eq. (3.27) pela distribuição de comprimento de onda

incidente $f(\lambda)$ e integrando sobre Θ . Devido ao fato do pico de Bragg ser da ordem de minutos⁽³⁾, a exponencial $\exp -(\Theta - \Theta_B/\alpha')^2$ é normalmente muito estreita, de modo que a distribuição pode ser considerada constante nesse intervalo e é aproximada para $f(\lambda_B)$ assim como a refletividade R^Θ por R^{Θ_B} . Nessas condições a intensidade $I(\Theta_B)$ é proporcional à refletividade.

$$I(\Theta_B) \propto R^{\Theta_B} \quad (3.28)$$

Antes de escrever a expressão final para R^Θ , é conveniente reescrever a eq. (3.20), utilizando as eqs. (3.5) e (3.6)

$$P(\Theta, \Delta) = \frac{D e^{-\Delta^2/2\eta^2}}{(1 + D e^{-\Delta^2/2\eta^2}) + (1 + 2D e^{-\Delta^2/2\eta^2})^{1/2} \coth [A(1 + D e^{-\Delta^2/2\eta^2})^{1/2}]} \quad (3.29)$$

onde $a = D e^{-\Delta^2/2\eta^2}$

e

$$D = \frac{Q}{\sqrt{2\pi} \eta}$$

ou ainda substituindo o valor de Q dado pela eq. (3.1), e mais $n\lambda = 2d \sin \Theta$, escreve-se:

$$D = \frac{4 N_c^2 F^2 d^3 \sin^2 \Theta}{\sqrt{2\pi} \eta n^3 \cos \Theta} \quad (3.30)$$

Desde que o ângulo Θ_B está fixo e por conseguinte o comprimento de onda, o valor de D dado pela eq. (3.30) varia apenas com a ordem de reflexão n .

A expressão para a refletividade integrada pode ser escrita a partir da eq. (3.29):

$$R^\Theta = \int \frac{D e^{-(1/\alpha'^2 + 1/2\eta^2)\Delta^2} d\Delta}{(1 + D e^{-\Delta^2/2\eta^2}) + (1 + 2D e^{-\Delta^2/2\eta^2})^{1/2} \coth [A(1 + D e^{-\Delta^2/2\eta^2})^{1/2}]} \quad (3.31)$$

O R^Θ é interpretado fisicamente como intervalo angular sobre o qual a reflexão pode ser considerada completa.

Para o cálculo da refletividade integrada $R^{\Theta n}$, para as várias ordens de reflexão, foi feito um programa em FORTRAN que calcula a eq. (3.31) com o auxílio do computador do IEA. O programa, que se chama REFLET1 e está ligado no Apêndice C desse trabalho, pode ser usado para qualquer cristal monocromador usado em reflexão, bem como para qualquer conjunto de planos cristalinos, espessura de cristal, largura de mosaico e divergência angular de colimador. A figura 9 mostra a refletividade integrada dos planos (111) do cristal de Ge usado em reflexão, para os valores de $n = 1, 3, 4$ e 5; a refletividade de segunda ordem não foi calculada pois é proibida para o Ge (111). O fator de estrutura cristalino, no caso

de cristal cubico de face centrada, do tipo diamante, é dado por: $F^2_{(hkl)} \equiv 0$ para $(h+k+l) = 4m+2$; $F^2_{(hkl)} \equiv 32b^2$ para $(h+k+l) = 4m+1$; $F^2_{(hkl)} \equiv 64b^2$ para $(h+k+l) = 4m$, (onde $m=0,1,2,\dots$ etc). No cálculo das curvas da figura 9, foram utilizadas estas regras para o cálculo de F^2 e mais os valores de $b = 0.84 \times 10^{-8}$ cm⁽³⁾ e $N_c = 5.55 \times 10^{22}$ cm⁻³.

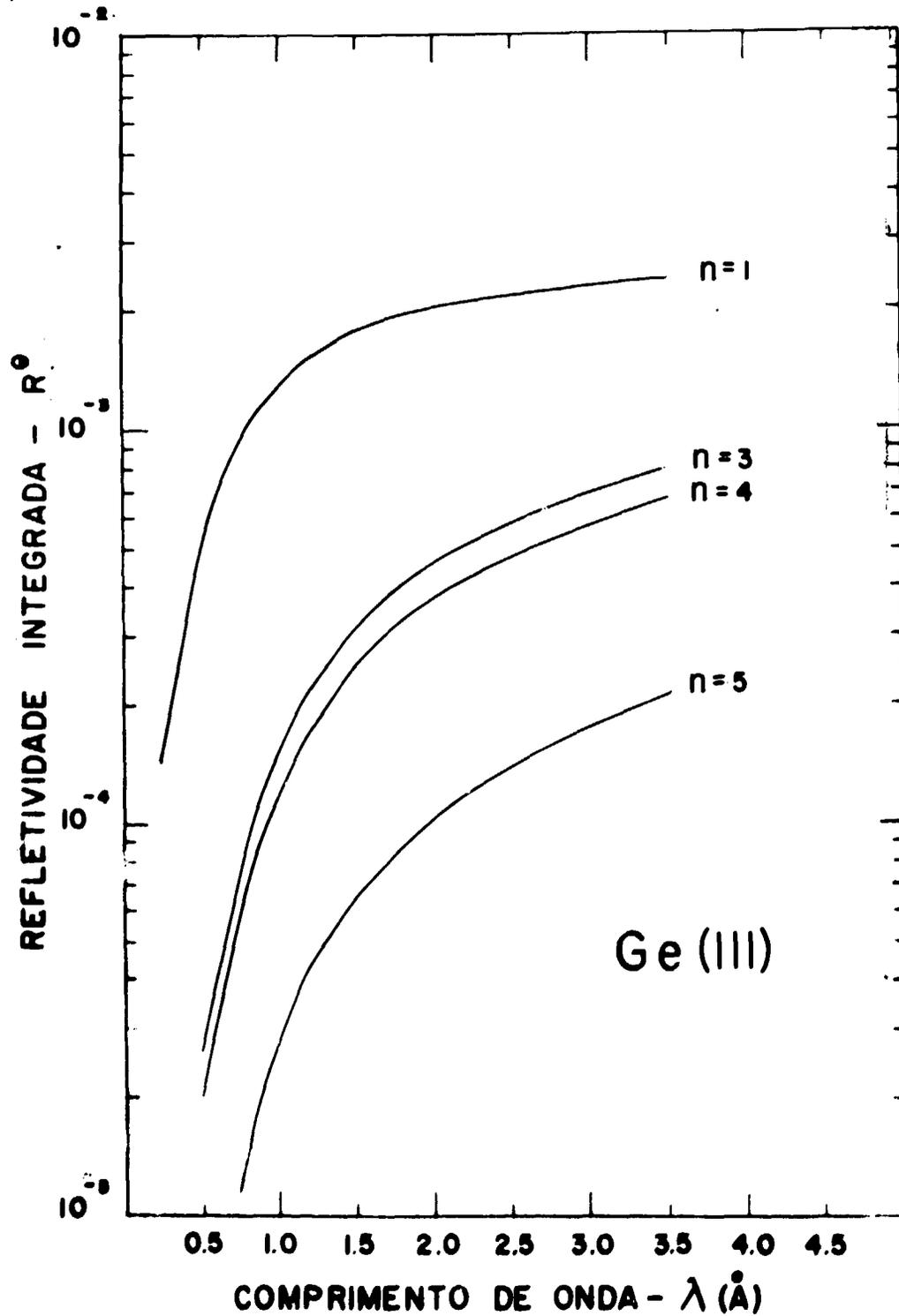


Figura 9 — Refletividade integrada dos planos (111) de um cristal de Ge, usado em reflexão simétrica, para os valores de $n = 1,3,4,5$; largura de mosaico $\beta = 5.4$ min., $t_c = 1.51$ cm e $T = 295^\circ K$

Ao se efetuar a derivada da equação de Bragg, um intervalo angular $\Delta\theta$ é relacionado a um intervalo de comprimento de onda $\Delta\lambda$.

$$\Delta\lambda = 2d \cos \theta \Delta\theta/n \quad (3.32)$$

Como já foi mencionado, no caso em estudo, a distribuição espectral pode ser considerada constante dentro de um intervalo $\Delta\lambda$, e nessas condições pode-se escrever⁽³⁾ a refletividade integrada R^λ , para o caso de cristal fixo em feixe polienergético, como:

$$R^\lambda = R^\theta(2d \cos \theta/n) \quad (3.33)$$

O R^λ pode ser interpretado como o intervalo dos comprimentos de onda sobre o qual a reflexão é completa. No R^λ , estão incluídas a refletividade do cristal ou a eficiência de reflexão em um dado comprimento de onda, e a função resolução do instrumento, que é o intervalo de comprimento de onda sobre o qual a reflexão ocorre.

Portanto, se $\phi(\lambda)$ é o fluxo de nêutrons por unidade de intervalo de comprimento de onda, estão o número de nêutrons que abandona o segundo colimador por unidade de área e atinge o detector por segundo é $\phi(\lambda) R^\lambda$. Nessas condições a contagem por unidade de tempo observada experimentalmente em cada λ é dada por:

$$I(\lambda) = \phi(\lambda) R^\lambda \epsilon(\lambda) \quad (3.34)$$

onde $\epsilon(\lambda)$ é a eficiência do detector dada pela eq. (2.3) do Cap. II. A equação (3.34) é equivalente à equação deduzida por Dietrich, para a contagem observada, dada na referência⁽¹⁹⁾.

3.4 – Contaminação de Ordem Superior

A contaminação de ordem superior está sempre presente nos processos de difração, que produzem as reflexões de Bragg, desde que todos os nêutrons que satisfazem a equação $n\lambda = 2d \sin \theta$, estão em condições de serem refletidos. O comprimento de onda desejado λ é obtido pela reflexão de primeira ordem para $n = 1$, enquanto que os valores de $n = 2, 3, \dots$ acarretam a indesejada contaminação no feixe refletido.

Essa contaminação é particularmente grave em energias abaixo do pico do espectro térmico, desde que o fluxo em $\lambda/2$ ou $\lambda/3$ pode ser comparável, ou mesmo, consideravelmente maior do que o fluxo no comprimento de onda primário λ . Portanto, quando a contagem por unidade de tempo é medida na região de comprimentos de onda mais altos, deve-se acrescentar termos adicionais ao segundo membro da eq. (3.34). A contagem por unidade de tempo observada experimentalmente será:

$$I(\lambda) = \sum_{n=1}^m \phi(\lambda/n) R^{\lambda n} \epsilon(\lambda/n) \quad (3.35)$$

onde o valor m , limite superior da somatória, dependerá da parte do espectro em que está sendo feita a medida.

As reflexões de ordem superior, relativamente à reflexão de primeira ordem, são reduzidas por

meio de diversos mecanismos. Ao observar a figura 7 nota-se que o coeficiente de absorção efetivo tende a discriminar contra nêutrons de comprimento de onda menor, em favor daqueles de comprimento de onda maior. Além disso, há os mecanismos de redução de R^{\ominus} como função de n , ou seja: o fator Q dado pela eq. (3.1) é reduzido com n^3 pois é função de λ^3 e também pelo fator de Debye Waller contido no fator de estrutura; finalmente na eq. (3.33) um fator adicional $1/n$ é introduzido na transformação de R^{\ominus} em R^{λ} .

3.4.1 – Contaminação de Ordem Superior em Medidas de Secção de Choque por Transmissão

O método de transmissão através de uma amostra já foi descrito no ítem 2.3 do Cap. II. Quando a medida é feita em energias abaixo do pico do espectro térmico, onde a contaminação de várias ordens está presente, a transmissão observada experimentalmente, num determinado comprimento de onda, é dada por:

$$T_{obs} = \frac{i}{I} \quad (3.36)$$

Onde a intensidade incidente I dada pela eq. (3.35) é a soma das intensidades de várias ordens:

$$I = \sum_{n=1}^m I_n \quad (3.37)$$

Analogamente para a intensidade i , transmitida pela amostra:

$$i = \sum_{n=1}^m i_n \quad (3.38)$$

A transmissão para cada valor de n , isto é, em cada comprimento de onda múltiplo de λ é dada por

$$T_n = \frac{i_n}{I_n} = e^{-N\sigma_n} \quad (3.39)$$

usando a eq. (2.5) do Cap II, e onde σ_n é a secção de choque no comprimento de onda λ/n .

Das eqs. (3.36) e (3.39) escreve-se

$$T_{obs} = \sum_{n=1}^m \frac{i_n}{I} T_n \quad (3.40)$$

$$\text{Define-se } f_n = \frac{i_n}{I} \quad (3.41)$$

O f_n representa as frações das intensidades de ordem superior na intensidade incidente I na amostra. Reescreve-se a eq. (3.40) na forma:

$$T_{obs} = \sum_{n=1}^m f_n T_n \quad (3.42)$$

Se na região de energias medida a contaminação é desprezível, pode-se considerar só a reflexão de primeira ordem na intensidade incidente ($I \equiv I_1$ ou $f_n = 1$); nessas condições a transmissão observada T_{obs} coincide com a transmissão não contaminada T_1 , e a secção de choque é determinada diretamente da medida, pela eq. (2.4) dada no Cap. II.

$$\sigma_1 = \frac{\ln T_1^{-1}}{N} \quad (3.43)$$

Se as transmissões de ordem superior T_n podem ser medidas diretamente em regiões de comprimento de onda baixos, onde a contaminação é desprezível (mencionado no Cap. I), e se os valores de f_n são conhecidos, então para o caso de medir-se a transmissão observada em regiões de energia onde a intensidade incidente I é contaminada, pode-se obter o T_1 pela relação:

$$T_1 = f_1^{-1} (T_{obs} - \sum_{n=2}^m f_n T_n) \quad (3.44)$$

Das eqs. (3.43) e (3.44) determina-se a secção de choque correta σ_1 .

Ou então, utilizando-se uma curva de secção de choque σ bem conhecida como padrão, de modo a ser possível o cálculo das transmissões T_n , e ainda conhecendo-se as frações f_n , pode-se prever qual a secção de choque experimental contaminada que se observará. Será dada pela relação:

$$\sigma_m = \frac{1}{N} \ln \left(\sum_{n=1}^m f_n T_n \right)^{-1} \quad (3.45)$$

Portanto, o conhecimento das frações f_n é fundamental para a correção da secção de choque medida por transmissão, em regiões de energia onde a intensidade do feixe incidente na amostra é contaminada por ordens superiores.

3.4.2 - Cálculo das Frações de Intensidades de Ordem Superior na Intensidade Refletida Pelo Cristal

Nesse trabalho serão consideradas somente as cinco primeiras ordens, sendo $m = 5$ o limite superior da somatória na eq. (3.35). Esta equação representa a contagem por unidade de tempo observada experimentalmente e pode ser escrita na forma

$$I(\lambda) = I_1(\lambda) + \sum_{n=2}^5 I_n(\lambda) \quad (3.46)$$

onde

$$I_n(\lambda) = \phi(\lambda/n) R^{\lambda n} \epsilon(\lambda/n) \quad (3.47)$$

O $R^{\lambda n}$ é dado pela eq. (3.33) e representa a refletividade de ordem n no comprimento de onda λ ; o $\epsilon(\lambda/n)$ é dado pela eq. (2.3) no Cap. II e representa a eficiência do detector para nêutrons com comprimento de onda λ/n .

Considerando que o limite superior do intervalo de comprimentos de onda, neste trabalho, é 2 \AA , e que na somatória da eq. (3.46) o $n \geq 2$, pode-se notar que todos os λ/n , do intervalo considerado,

pertencem à região de comprimentos de onda baixos, onde a contaminação de ordem é desprezível (visto no Cap. I). Portanto, nessa região de λ/n a contagem por unidade de tempo, corresponde à intensidade refletida I_{exp} , é somente de primeira ordem ($n=1$), e nessas condições, pode-se determinar todos os fluxos $\phi(\lambda/n)$ através da eq. (3.47); e escreve-se:

$$\phi(\lambda/n) = \frac{I_{exp}(\lambda/n)}{R^{(\lambda/n)}_1 \epsilon(\lambda/n)} \quad (3.48)$$

Na eq. (3.48), o $R^{(\lambda/n)}_1$ representa a refletividade de primeira ordem no comprimento de onda λ/n .

Das eqs. (3.47) e (3.48) obtém-se

$$I_n(\lambda) = I_{exp}(\lambda/n) \frac{R^{\lambda_n}}{R^{(\lambda/n)}_1} \quad (3.49)$$

Com esta eq. (3.49) pode-se calcular todos os $I_n(\lambda)$ para $n=2, \dots, 5$. Com essas intensidades determinadas e ainda tendo sido efetuada a medida da taxa de contagem relativa à intensidade incidente contaminada $I(\lambda)$, obtém-se os f_n por meio da eq. (3.41).

Para a determinação de f_1 além da eq. (3.41) deve-se recorrer à eq. (3.46) e escrever

$$I_1(\lambda) = I(\lambda) - \sum_{n=2}^5 I_{exp}(\lambda/n) \frac{R^{\lambda_n}}{R^{(\lambda/n)}_1} \quad (3.50)$$

Isto deve ser feito porque, para $n=1$, o λ pertence à região onde há contaminação, não sendo possível uma determinação direta do fluxo pela eq. (3.48)

Portanto, para a determinação dos f_n em função de λ , é necessária a medida da contagem por unidade de tempo em função de λ , para todo intervalo de comprimento de onda considerado (0.28 à 3.0 Å). A medida é utilizada em λ baixo para calcular a eq. (3.48) e em comprimento de onda alto para se ter o valor de $I(\lambda)$ experimental.

3.5 – Reflexões Parasitas

Nas medidas da contagem por unidade de tempo do feixe refletido pelo cristal, ou taxa de contagem em função de λ , o problema das chamadas reflexões parasitas está sempre presente.

As reflexões parasitas de Bragg são flutuações na taxa de contagem, em forma de picos invertidos, que aparecem devido à presença de nêutrons difratados por planos cristalinos diferentes daquele que está sendo usado para a obtenção do feixe monocromático. Ou ainda, uma reflexão parasita ocorre quando um segundo conjunto de planos difratadores também satisfaz simultaneamente as condições de Bragg, para um dado comprimento de onda. Em termos de retículo recíproco, esta situação significa que, dois pontos do retículo estão sobre a esfera de reflexão⁽⁴¹⁾.

Esta é a exigência para a reflexão dupla de Bragg, que pode decrescer ou aumentar a intensidade na direção do feixe, sendo que este último só acontece em casos especiais⁽²⁰⁾, tal como refletividade dos planos parasitas maior do que a do plano monocromador.

O problema das reflexões parasitas já foi bem estudado^(21,51,53,66), devido à influência dessas reflexões na medida do espectro do reator com espectrômetro de cristal. Uma das maneiras de contornar esse problema é efetuar uma rotação do cristal sobre o eixo perpendicular aos planos refletos primários^(20,42), evitando desse modo que outro ponto do retículo recíproco coincida com a esfera de reflexão. Após o giro sobre este ângulo azimutal, um novo ponto experimental da taxa de contagem é obtido, ponto este que dá seqüência contínua ao ponto contíguo ao pico invertido que existia sobre a curva. Este problema será abordado com mais detalhes no Cap. IV.

CAPÍTULO IV

RESULTADOS EXPERIMENTAIS

4.1 – Medidas em Energias Abaixo do Pico do Espectro Térmico

Na região de energias abaixo do pico do espectro térmico, ou região dos comprimentos de onda maiores, a intensidade de reflexão de primeira ordem pode ser menor do que as intensidades das reflexões de ordem superior ($f_n > f_1$ para $n=2,3, \dots$ etc). Isto porque o número de nêutrons com comprimentos de onda $\lambda/2$, $\lambda/3$, etc, no espectro incidente, pode ser maior do que o número de nêutrons com comprimento de onda λ .

Afim de diminuir a alta contaminação de ordem superior dessa região, utilizamos um cristal de germânio como monocromador de nêutrons, pois o Ge(III) possui a propriedade de ter suas reflexões de segunda ordem proibidas quando utilizado nos planos (III) (visto no Cap. I).

4.1.1 – Curva de “Rocking”

Se o braço do espectrômetro for mantido fixo e efetuar-se, uma rotação do cristal, através de sua posição angular de reflexão de Bragg, obter-se-a a curva de “rocking” do cristal.

Uma das utilidades desta curva é a de permitir a colocação do cristal na posição de máxima intensidade difratada, para um dado ângulo de Bragg Θ ; a outra é a de obter a largura de mosaico do cristal, a partir da largura total na metade do máximo da curva.

A curva de rocking do cristal de Ge, usado em reflexão, pode ser vista na figura 10; a largura na meia altura é $W = 11.9$ min. para a curva corrigida para o background.

Como já foi mencionado no Cap. II (Ítem 2.1.3), havendo interesse apenas na largura de resolução, uma boa aproximação é desprezar a extinção secundária; nessas condições poderá ser visto no Apêndice B, que a expressão que descreve a curva de rocking de um cristal mosaico, pode ser aproximada para uma distribuição normal⁽⁵⁹⁾, com desvio padrão dado por: $W' = \sqrt{(\alpha'/2)^2 + \eta^2}$ onde $\alpha' = \alpha_0/2 \sqrt{2 \ln 2}$ e $\eta = \beta/2 \sqrt{2 \ln 2}$, com α_0 e β já definidos anteriormente.

A largura do mosaico β é determinada a partir da medida da largura W – que é igual à $2W' \sqrt{2 \ln 2}$ – e do valor de $\alpha_0 = 0.3471^\circ$ – calculado através dos valores de α_1 e α_2 dados no Ítem 2.13, do Cap. II. Da medida da curva de rocking do Ge(III) foi determinado $\beta = 5.4$ min; sendo este um dado experimental necessário para o cálculo da refletividade integrada do Ge, pela eq. (3.31).

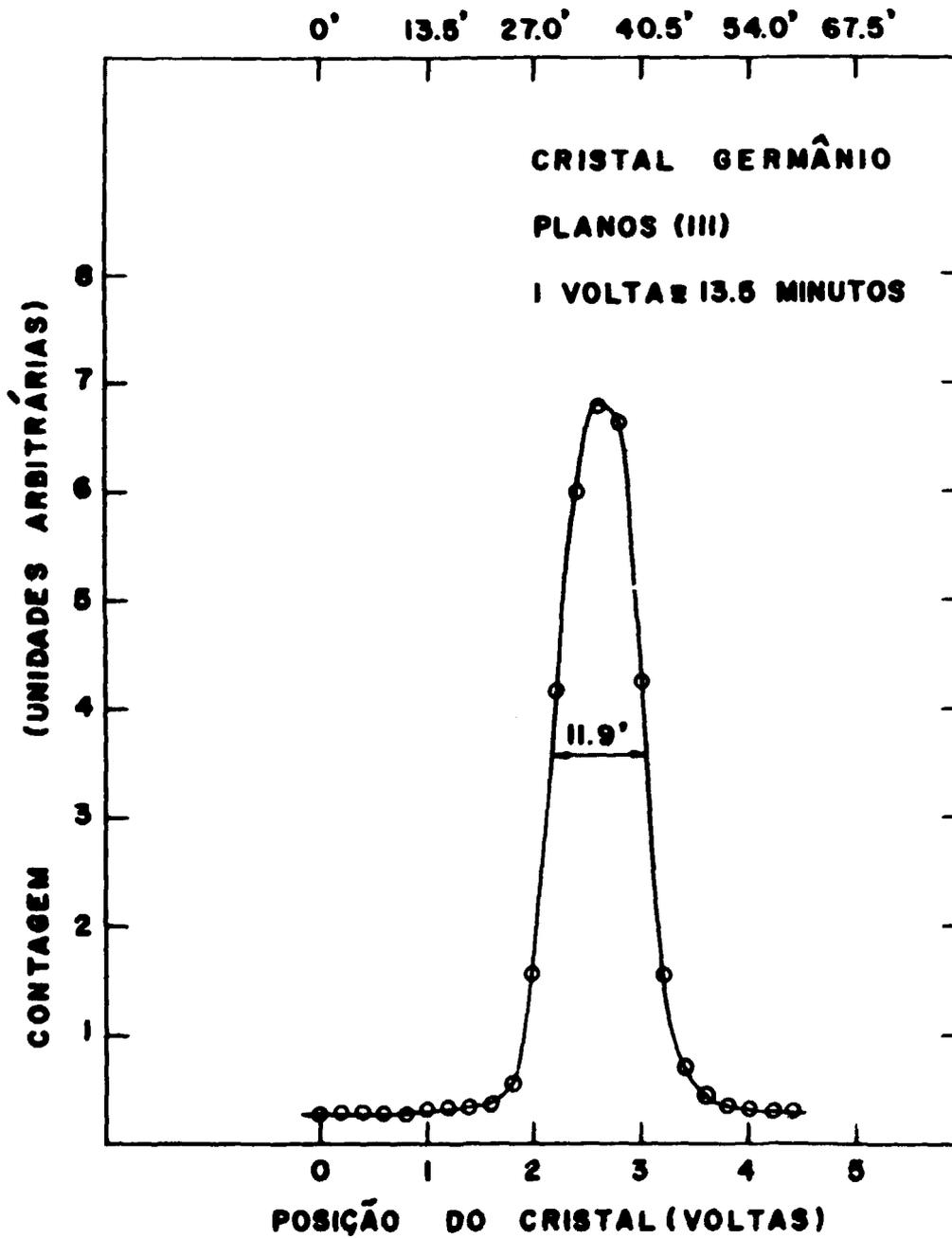


Figura 10 - Curva de "rocking" para o cristal de Ge (III), em reflexão simétrica. A contagem no pico é da ordem de 1.2×10^4 cont./min.

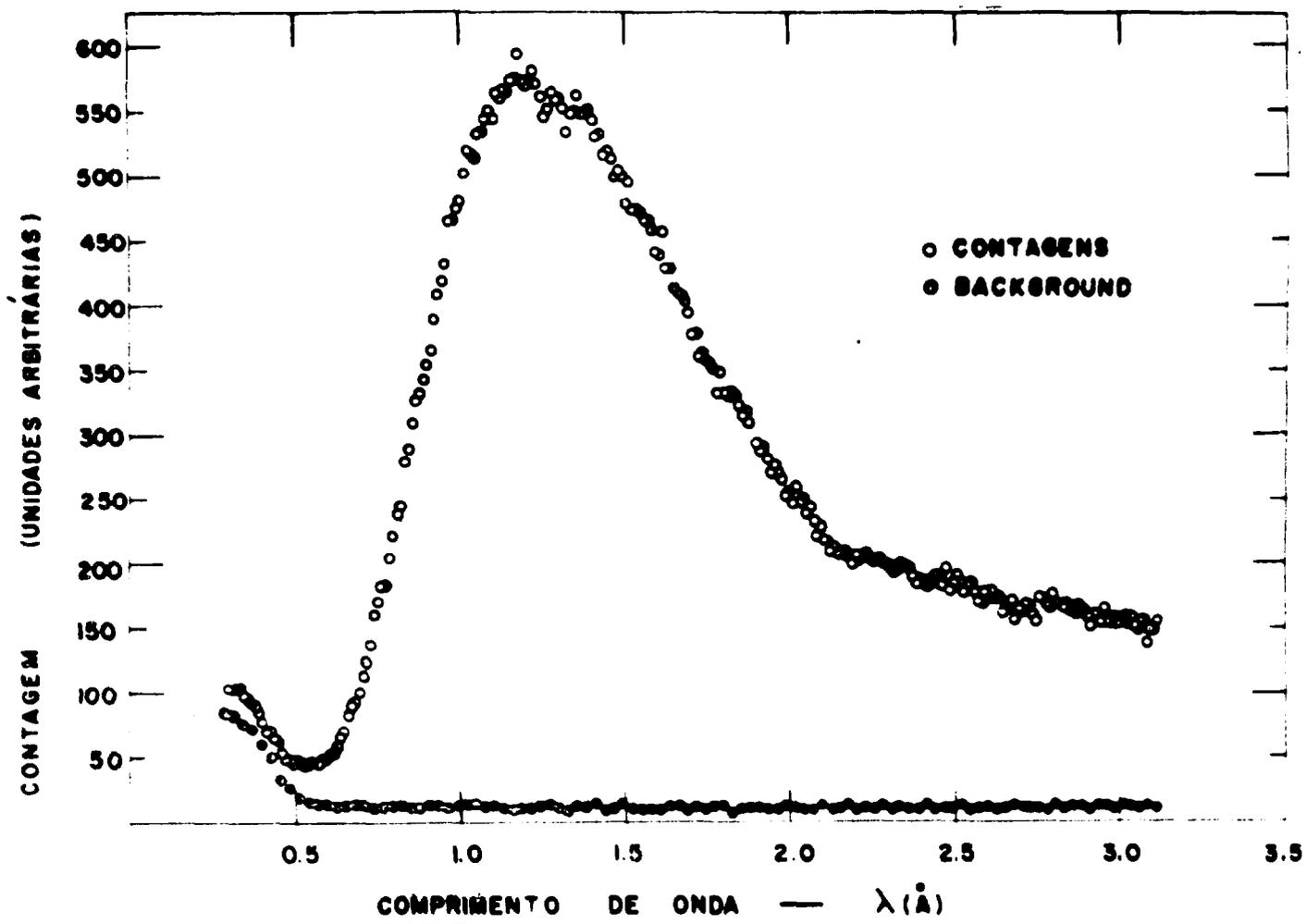


Figura 11 — Contagem por unidade de tempo medida com Ge (III) em reflexão; pontos experimentais afetados por reflexões parasitas. Dados não corrigidos para o background.

4.1.2 – Medida da Contagem por Unidade de Tempo e Efeito das Reflexões Parasitas

Na figura 11 podem ser observados os pontos experimentais da contagem por unidade de tempo, em função do comprimento de onda do nêutron, obtidos através da reflexão dos planos (III) do cristal de Ge. Os tempos de contagem para essas medidas estão condicionados a um determinado número de contagens do monitor, afim de se evitar flutuações na potência do reator. Na curva pode-se notar os picos invertidos, devido às reflexões parasitas, anteriormente descritas. Da figura é difícil determinar quais os pontos experimentais no intervalo de 1.2 Å a 1.4 Å, que estão livres destas perturbações.

Contudo, como os planos parasitas que produzem as depressões da figura 11, não são paralelos aos planos primários de Bragg (planos (III) paralelos à face), os ângulos de Bragg, onde ocorrem as reflexões parasitas, podem ser mudados através de uma rotação do cristal sobre um eixo perpendicular à face, e assim muda-se as intensidades relativas às reflexões parasitas. Este fato permite obter pontos experimentais suficientemente livres de reflexões parasitas, de modo que uma curva da taxa de contagem não perturbada pode ser obtida⁽⁴²⁾.

Para a determinação de uma seqüência contínua dos pontos experimentais, na região onde estes sofrem mais o efeito dessas perturbações, foram feitas medidas da taxa de contagem em três posições azimutais, variando da ordem de 5° entre um ângulo ω e outro. Em cada posição angular ω , foi efetuada uma curva de rocking para colocar o cristal em posição de máxima intensidade, e nas três curvas a variação da posição dos picos foi menor do que 1 min. de arco.

A figura 12 mostra os pontos experimentais obtidos para cada posição do ângulo azimutal ω , no intervalo de 1.2 Å a 1.4 Å. Consideradas individualmente, estas curvas apresentam picos invertidos característicos, mas uma curva que melhor se ajuste aos pontos experimentais médios, pode ser composta e considerada relativamente livre de perturbações.

A curva da taxa de contagem não perturbada, determinada por este procedimento e corrigida para a radiação de fundo, está representada pela curva I, da figura 13, para o intervalo de comprimento de onda de 0.3 Å a 3.0 Å. O background foi medido tirando o cristal da ordem de dois graus de sua posição de Bragg (visto no ítem 2.2.2).

4.1.3 – Determinação das Intensidades de Ordem Superior e das Frações f_n .

Como foi visto no Cap. I, na região de comprimentos de onda pequenos, as contribuições na intensidade medida, devidas às reflexões de ordens superiores, podem ser consideradas desprezíveis; nessas condições, para a curva I da figura 13, na região inferior do intervalo 0,3 Å a 3 Å, uma boa aproximação da eq. (3.37) é fazer $I(\lambda) \equiv I_1(\lambda)$. Portanto, pode-se utilizar as eqs. (3.47) e (3.48), apresentadas no ítem 3.4.2, para o cálculo das intensidades de ordem superior na região contaminada, ou seja, os $I_n(\lambda)$ para $n \geq 2$; e também calcular a intensidade de primeira ordem $I_1(\lambda)$ pela eq. (3.50).

De fato, para as reflexões dos planos (III) do Ge, a intensidade de ordem de reflexão seguinte ao $I_2(\lambda) \equiv 0$, isto é, o $I_3(\lambda)$ calculado, mesmo em 1.0 Å é menor do que 0.5% da intensidade observada e não excede a 1% de $I(\lambda)$ até o comprimento de onda de 2.15 Å. Em 3.0 Å, que é o extremo superior do intervalo de comprimentos de onda considerado, a eq. (3.48) ainda pode ser usada, pois $\lambda/3 = 1.0$ Å pertence à região considerada não contaminada.

Nessas condições, foram calculadas individualmente as intensidades para as ordens de reflexões possíveis do cristal de Ge (III), e colocadas em gráfico, juntamente com a curva I na figura 13, em função do comprimento de onda do nêutron. Além disso, pode ser vista através dos f_n mostrados na figura 14 em função de λ , a comparação entre essas intensidades calculadas e a intensidade total medida. Os valores de f_n , definidos pela eq. (3.41) serão úteis na correção da secção de choque contaminada, e na determinação das espessuras dos filtros de quartzo; estes últimos – a serem vistos no ítem 4.1.6 – são utilizados como parte de um sistema para medir secção de choque diretamente, sem contaminação.

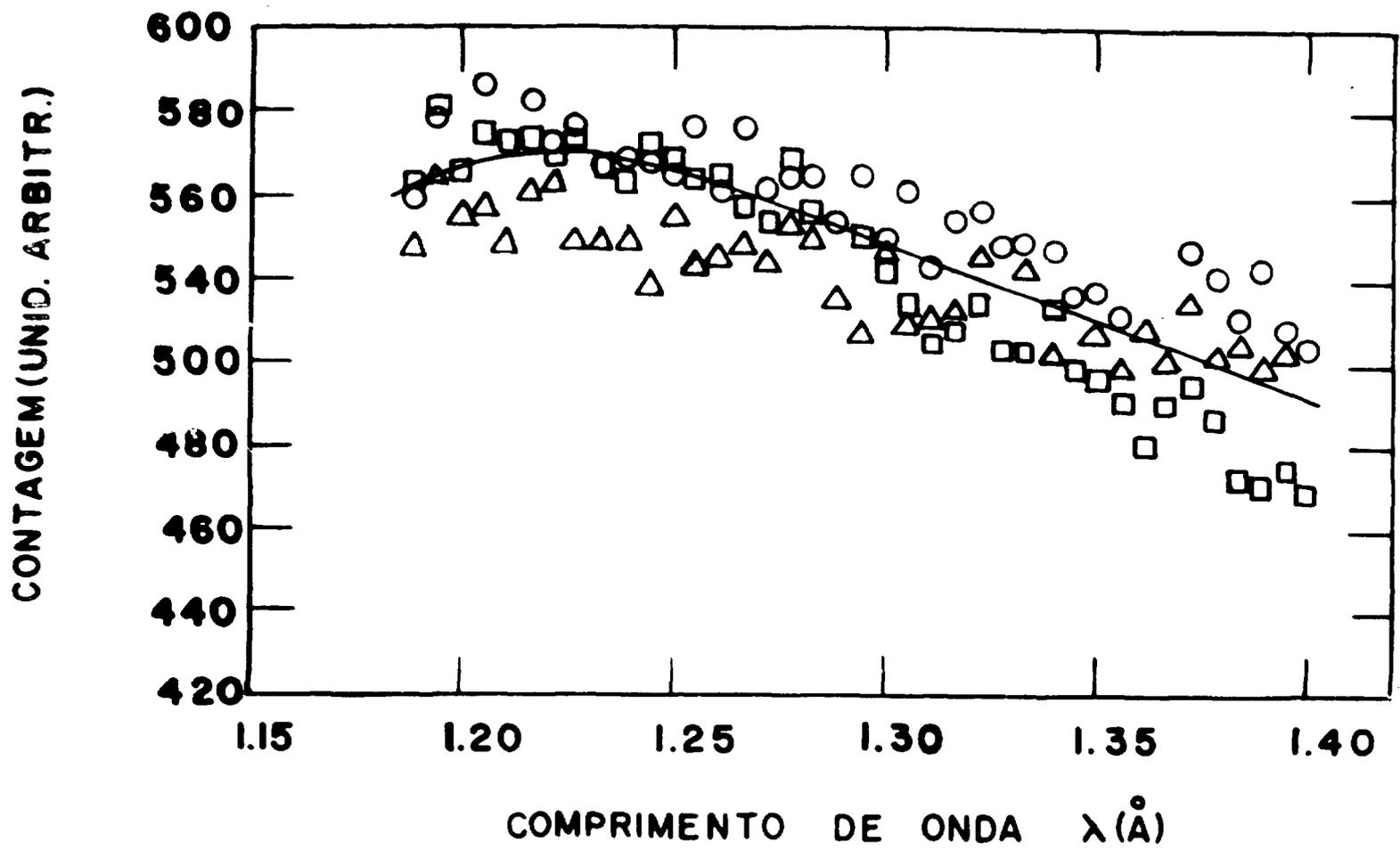


Figura 12 — Detalhe da curva de contagem por unidade de tempo para o Ge (III), medida para três posições diferentes do ângulo azimutal ω . Em cada posição angular os pontos experimentais são representados por um tipo de símbolo.

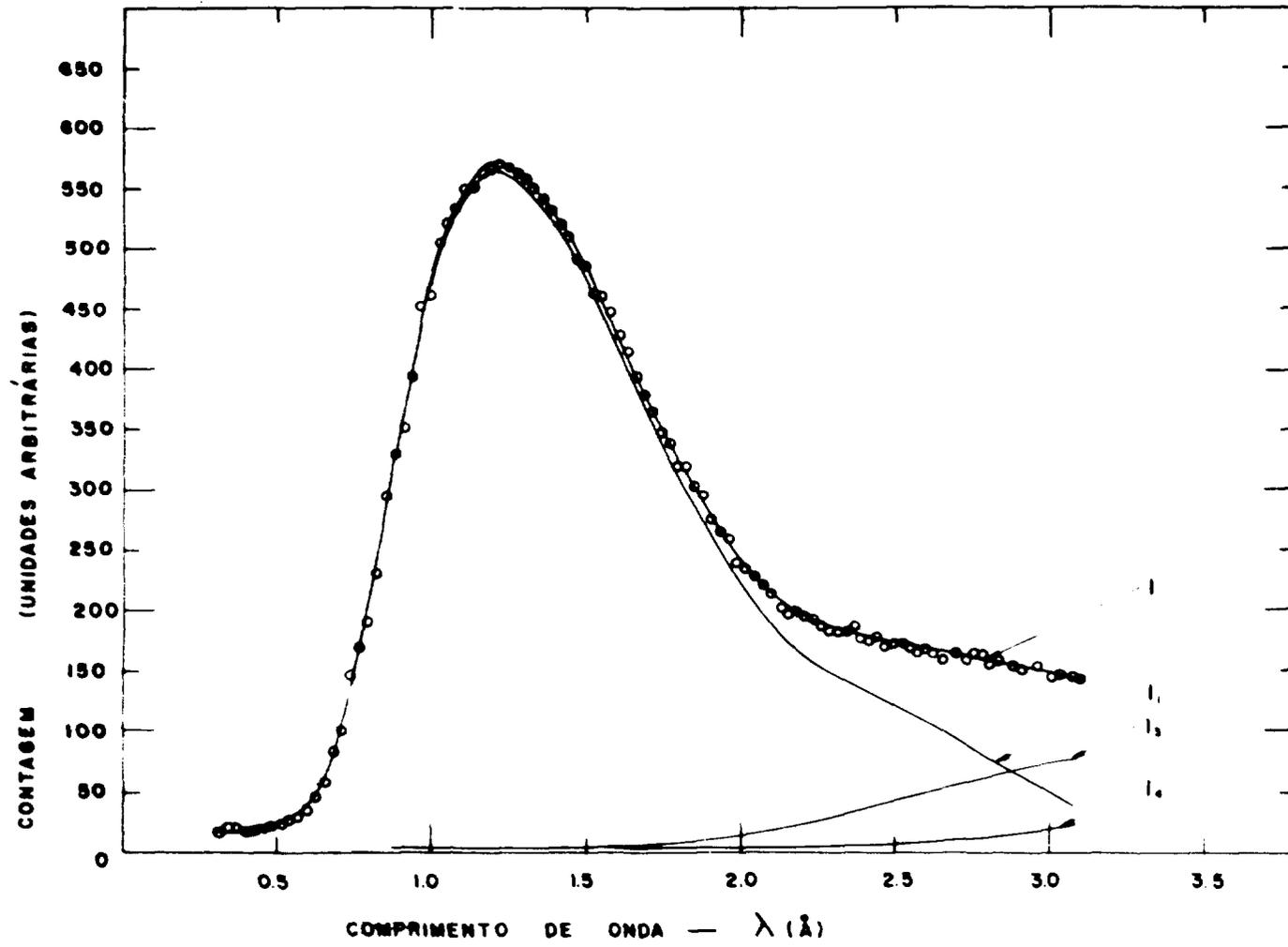


Figura 13 — Contagem por unidade de tempo, para Ge (III), corrigida para reflexões parasitas e "background".

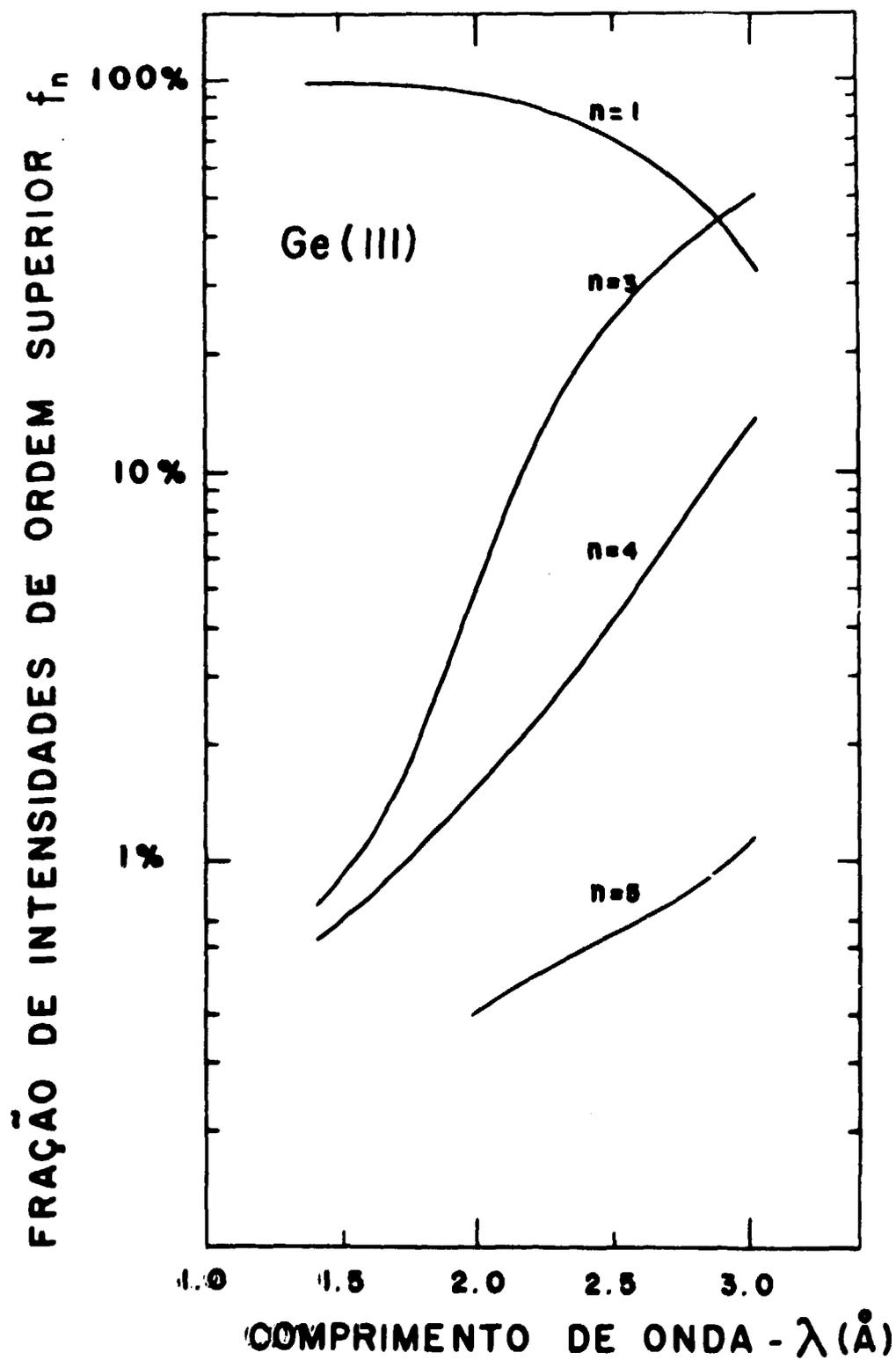


Figura 14 - Relação entre a intensidade de ordem superior e a intensidade total refletida pelo cristal de Ge (III). Calculadas para $n = 1, 3, 4, 5$.

4.1.4 – Distribuição Espectral dos Nêutrons Emergentes do Reator

O fluxo de nêutrons por unidade de intervalo de comprimento de onda foi calculado a partir da intensidade de primeira ordem (figura 13), pela equação $\phi(\lambda) = I_1(\lambda) / R^\lambda \epsilon(\lambda)$; e os pontos experimentais estão colocados no gráfico da figura 15, em função do comprimento de onda do nêutron.

Como já foi mencionado no Cap. I o fluxo de nêutrons térmicos, que emerge do reator, é descrito por uma função próxima a uma Maxwelliana^(36,40), na forma:

$$\phi(\lambda) = 2N(E/kT)^2 [\exp(-E/kT)] / \lambda \quad (4.1)$$

onde $\phi(\lambda)d\lambda$ é o número de nêutrons que emerge por segundo no intervalo de comprimento de onda entre λ e $\lambda + d\lambda$; N é o fluxo total de nêutrons de todas as energias; E é a energia correspondente ao comprimento de onda λ ; k é a constante de Boltzmann e T (°K) é a temperatura característica da distribuição.

O espectro de nêutrons térmicos, que emerge de um canal de irradiação do reator, não é exatamente descrito por uma distribuição Maxwelliana na forma da eq. (4.1), correspondendo à temperatura do moderador; a temperatura efetiva do espectro é mais alta e corresponde a uma distribuição deslocada para uma energia mais alta. Entre as várias causas que contribuem para esse deslocamento podem ser citadas: a presença, no meio moderador, de átomos absorvedores caracterizados por uma seção de choque de absorção do tipo 1/v; uma moderação incompleta na quantidade de moderador disponível entre os elementos combustíveis e o início do canal de irradiação; e uma quantidade restante de nêutrons, ainda sendo moderada, que contribui para o espectro 1/E. Estes efeitos não mudam drasticamente a forma do espectro, mas forçam um deslocamento no sentido de energias mais altas⁽¹⁷⁾.

Portanto, foi ajustada uma equação do tipo da eq. (4.1), ou seja, $\phi(\lambda) = K\lambda^{-M} \exp[-(\lambda_0/\lambda)^2]$, aos pontos experimentais do espectro compreendidos entre 0.7 Å e 2.9 Å; os parâmetros foram ajustados por mínimos quadrados, com auxílio do computador do IEA, e a expressão resultante é dada por:

$$\phi(\lambda) = 101.883 \lambda^{-4.61} \exp[-(1.644/\lambda)^2] \quad (4.2)$$

Como pode ser visto na figura 15, o espectro disponível para as experiências, no canal de irradiação nº 10 do reator, é descrito perfeitamente pela curva resultante do cálculo da eq. (4.2), para o intervalo de comprimentos de onda considerado. Nesta mesma figura pode ser visto abaixo de 0.5 Å, o comportamento do espectro em relação a λ , devido aos nêutrons ainda em processo de moderação.

As incertezas experimentais nas taxas de contagem, conduzem a uma incerteza máxima de 0.02 Å no comprimento de onda mais provável; portanto, ao valor do $\lambda_0 = 1.644 \pm 0.02$ Å corresponde uma temperatura efetiva de 351 ± 8 °K para a distribuição dada pela eq. (4.2). Este valor concorda com a temperatura obtida, com o espectrômetro de tempo de voo do IEA, na medida da distribuição espectral dos nêutrons emergentes do canal de irradiação, transversal nº 13, do reator⁽³⁰⁾.

A temperatura média do moderador do reator IEA-R1 é da ordem de 306°K, portanto a diferença entre as temperaturas é de 45°K; esse valor é da mesma ordem de grandeza das diferenças encontradas em medidas efetuadas em outros reatores^(20,35,42).

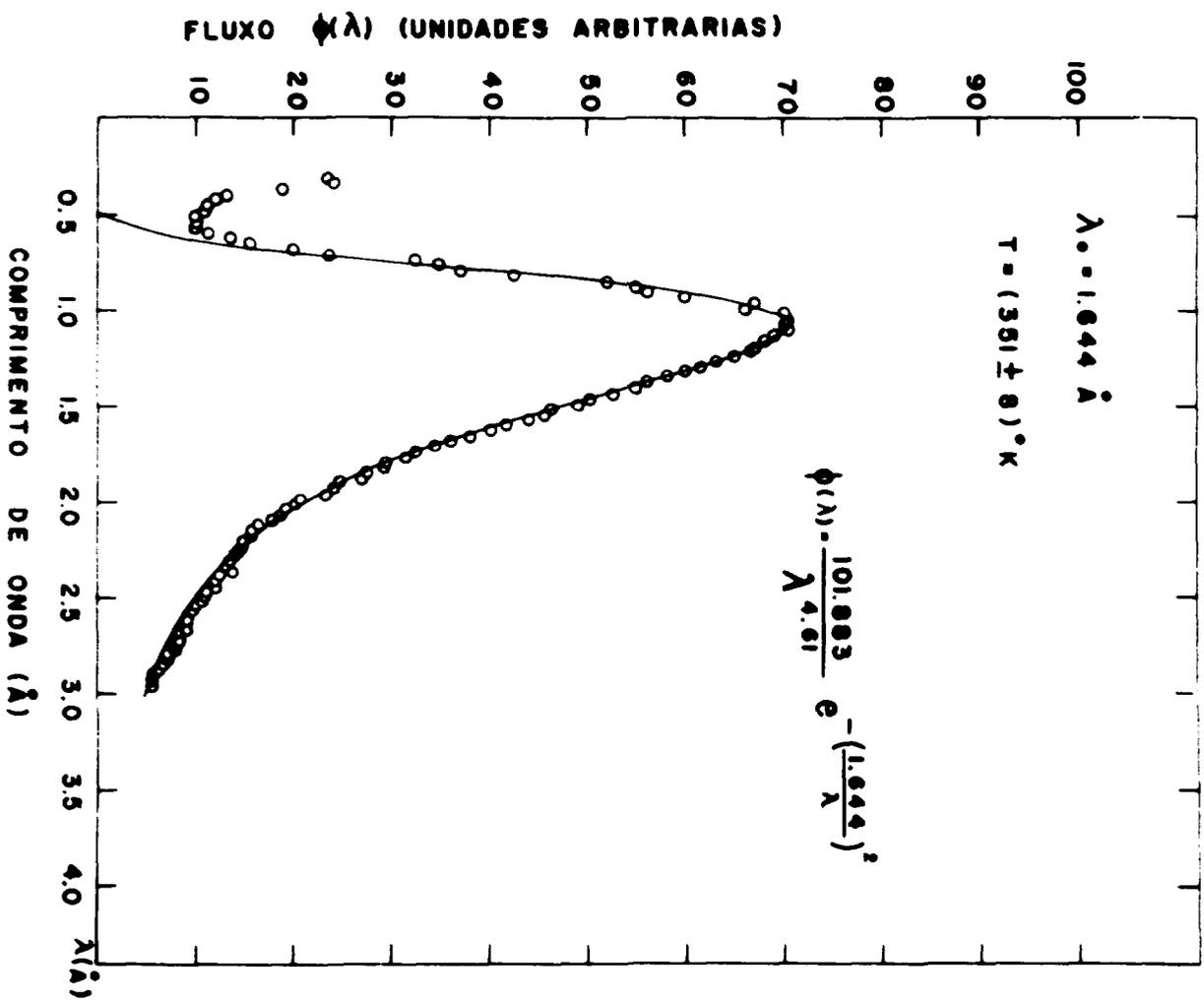


Figura 16 — Distribuição espectral dos nêutrons emergentes do canal de irradiação nº 10, do reator IEA-R1.

4.1.5 – Medida da Secção de Choque Total do Ouro

Como foi visto no ítem 3.4.1, a secção de choque contaminada σ_m observada, quando é medida uma curva padrão σ , é dada pela eq. (3.45). Esta equação foi calculada para a curva padrão do ouro, tendo sido utilizados os valores das frações de ordens superiores f_n , já determinadas para o cristal de Ge (III). O objetivo desse cálculo é verificar a boa estimativa de f_n , examinando a concordância entre os pontos experimentais da secção de choque total e a curva calculada de σ_m .

O ouro é geralmente escolhido como padrão, devido ao comportamento de sua secção de choque total, que varia linearmente com o comprimento de onda do nêutron. Além disso, a preferência por esse metal se deve, também a facilidade com que lâminas de espessura bem definidas podem ser obtidas e ao alto grau de pureza com que esse material pode ser encontrado.

Devido ao freqüente uso da curva de secção de choque total do ouro nas experiências com nêutrons, vários pesquisadores já a mediram com precisão^(2,28,31), na região de energia dos nêutrons térmicos.

A curva padrão do ouro, utilizada neste trabalho, foi construída com base na referência⁽²⁸⁾, através da expressão $\sigma_T(\lambda) = [54.59\lambda - 0.94 + (1.7/\lambda) + 7.3]$ barns. Os dois primeiros termos representam a secção de choque em comprimentos de onda altos, isto é, afastados da região de ressonâncias, e o termo $1.7/\lambda$ leva em conta a contribuição da ressonância do ouro na energia 4.906 eV; o último termo é devido à secção de choque de espalhamento coerente. A expressão acima foi calculada no intervalo de comprimentos de onda de 0.5 Å a 3.0 Å, e está representada pela curva A na figura 16.

A curva B da figura 16 representa a secção de choque total observada σ_m , calculada através da eq. (3.45) para a amostra de ouro, cujas características já foram descritas no ítem 2.2.1 do Cap. II.

Utilizando o cristal de Ge (III) como monocromador e efetuando medidas de transmissão através dessa mesma amostra de ouro, foi determinada experimentalmente a secção de choque total do ouro. Esses pontos experimentais, colocados na figura, coincidem, dentro dos erros experimentais, com a curva calculada B, indicando uma boa estimativa dos valores utilizados no cálculo.

Nessa mesma figura 16, pode ser visto que para comprimentos de onda pequenos, abaixo de 1.5 Å, os pontos experimentais, concordam com a curva padrão A. Isto indica que a contaminação é praticamente desprezível nessa região, quando se mede uma curva de secção de choque, cujo comportamento é linear com λ (visto no Cap. I).

Com o objetivo de verificar a sensibilidade do método utilizado para o cálculo das contaminações de ordens superiores, foi colocada na figura 17 uma curva de porcentagem total de contaminação calculada para o ouro, $(\sigma_{\text{padrão}} - \sigma_m) / \sigma_{\text{padrão}}$; e além disso, colocados os pontos da porcentagem total determinados experimentalmente $(\sigma_{\text{padrão}} - \sigma_{\text{exp}}) / \sigma_{\text{padrão}}$. Da figura, nota-se que é possível efetuar uma estimativa precisa da contaminação total, desde 2% em 1.5 Å até 43% em 2.9 Å.

Todos esses resultados, confirmam uma precisa determinação das frações f_n , para as reflexões dos planos (III) do cristal de Ge; e como foi visto no ítem 3.3.1 do Cap. III, nessas condições é possível corrigir os pontos experimentais contaminados do ouro através das eqs. (3.43) e (3.44). Assim, o σ_{exp} é transformado no σ_1 , a partir de N e f_n conhecidos. Esses pontos σ_1 , que são os valores da secção de choque total que se mediria se não houvesse contaminação de ordem, estão colocados em gráfico, de 1.5 Å a 3.0 Å, na figura 18, onde podem ser vistos coincidindo com a curva padrão do ouro; as pequenas flutuações nos pontos de σ_1 , que também são notadas nos pontos da referência⁽³¹⁾, podem ser atribuídas a prováveis efeitos cristalinos da amostra.

Portanto, a aplicação de correções calculadas aos dados experimentais, que é um dos métodos mencionados no Cap. I, mostrou-se eficiente na correção dos pontos experimentais da secção de choque total do ouro.

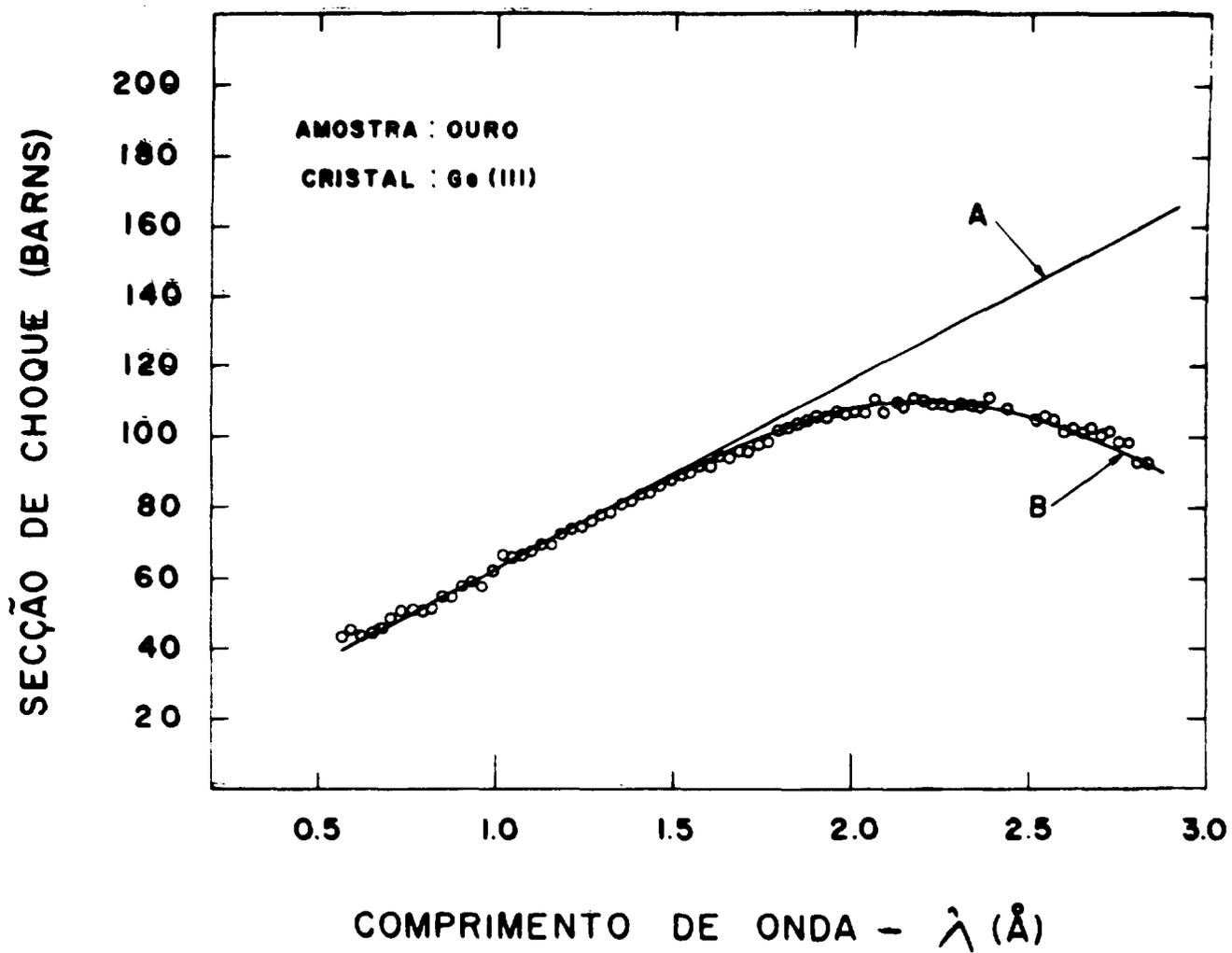


Figura 16 — Seção de choque total do ouro. Curva A é a curva padrão calculada pela referência⁽²⁸⁾. Curva B é a seção de choque calculada através das frações f_n . Nos pontos experimentais, os erros são menores do que os círculos.

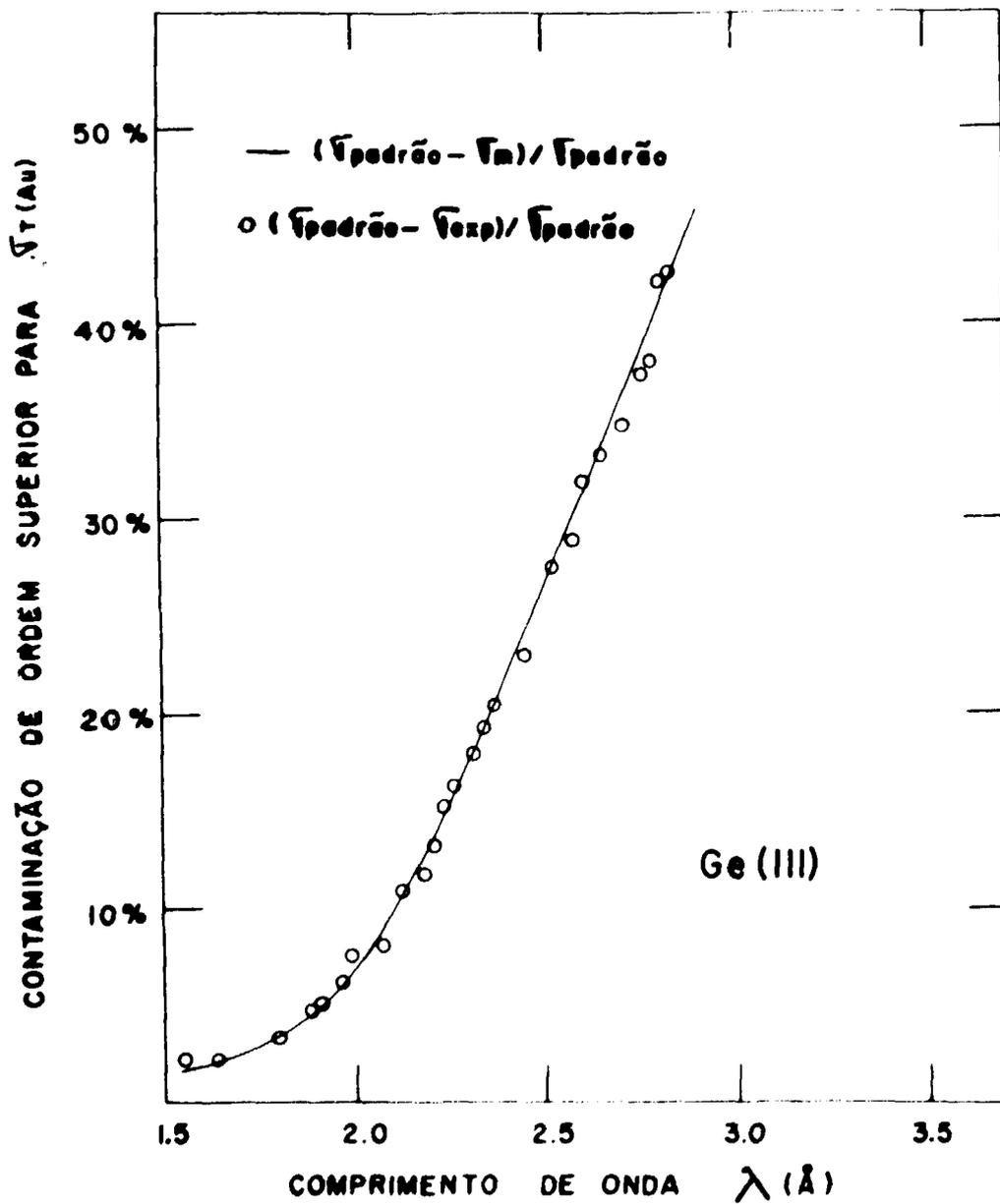


Figura 17 - Porcentagem total de contaminação de ordem superior, na secção de choque total do ouro, com o cristal de Ge (III).

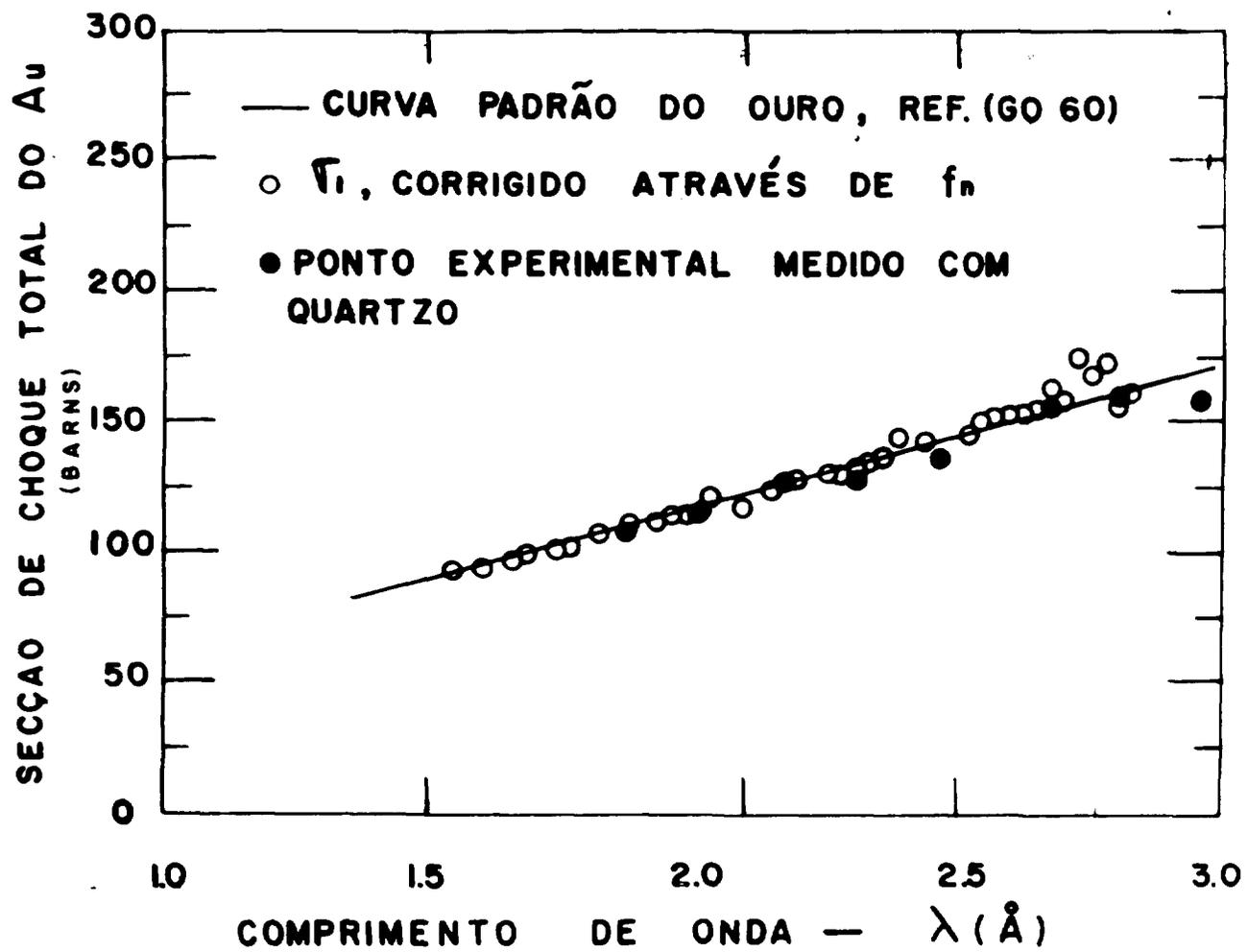


Figura 18 — Seção de choque total de ouro, com pontos corrigidos através de cálculos; e pontos experimentais obtidos pela utilização de filtros de quartzo.

Outro método a ser utilizado é o do uso de filtros de quartzo, que será visto no próximo ítem deste capítulo. Entretanto, na figura 18, podem ser vistos pontos experimentais medidos diretamente sem contaminação de ordens superiores, eliminadas por meio de filtros de quartzo, cujas espessuras foram optimizadas em função dos f_n estimados para o cristal de Ge (III).

4.1.6 – Filtros de Quartzo

Um filtro, para eliminar contaminações de ordem superior, deve ter as seguintes propriedades: alta transmissão para nêutrons com o comprimento de onda desejado λ , e baixa transmissão para os nêutrons indesejáveis de ordens superiores, com comprimentos de onda $\lambda/3$, $\lambda/4$, $\lambda/5$, etc. Diversos autores^(1,13,51), já apontaram que os monocristais de quartzo possuem essa propriedade, uma vez que sua secção de choque total aumenta rapidamente no intervalo de 2.0 Å a 0.2 Å, permanecendo baixa para nêutrons com comprimentos de onda maiores do que 2.0 Å.

Como pode ser visto na figura 17, a contaminação na secção de choque total do ouro, medida com o Ge (III), é influente no intervalo de 1.5 Å a 3.0 Å; portanto até 3.0 Å, que é o limite superior das medidas efetuadas com o Ge (III), filtros convenientes de quartzo podem ser usados, pois os comprimentos de onda de ordens superiores λ/n sempre caem na região onde a secção de choque do quartzo é mais alta do que em λ .

A intensidade de uma ordem qualquer de reflexão, transmitida por um filtro, é dada pela expressão:

$$I'_n = I_n t_n$$

onde I_n é a intensidade incidente e t_n é a transmissão do filtro.

Portanto, a intensidade do feixe total filtrado, será dada por:

$$I' = I'_1 + I'_3 + I'_4 + I'_5 \quad (4.3)$$

Reescrevendo a equação acima fica-se com:

$$\frac{I'}{I_1} = 1 + \sum_{n=3}^5 \frac{I'_n}{I_1} = 1 + \sum_{n=3}^5 C_n \quad (4.4)$$

onde C_n representa a relação entre cada intensidade filtrada, de ordem superior, e a intensidade filtrada de primeira ordem.

$$C_n = \frac{I'_n}{I_1} = \frac{I_n t_n}{I_1 t_1} = \frac{f_n t_n}{f_1 t_1} \quad (4.5)$$

Da eq. (4.4), nota-se que o filtro é tanto mais eficiente, quanto mais I'/I_1 for próximo da unidade, ou seja, quanto mais a somatória dos C_n for próxima do zero.

As relações f_n/f_1 , para o cálculo dos C_n em um dado comprimento de onda, são obtidas dos resultados colocados em gráfico na figura 14 e as transmissões t_n são dadas pela equação abaixo.

$$t_n = \exp - (N\sigma e) \quad (4.6)$$

onde N é o número de moléculas por cm^3 , e é a espessura, e σ é a secção de choque total do filtro.

Para o quartzo, $N = 2.672 \times 10^{22}$ molec/ cm^3 ; e o comportamento da secção de choque total, em função de λ , é muito bem conhecido e é dado na referência⁽¹⁾

Portanto, a eficiência do filtro será uma função da espessura. Nessas condições foram calculados os C_n (para $n = 3, 4, 5$) para alguns valores de λ , no intervalo de 1.5 Å a 3.0 Å, em função da espessura de quartzo; as curvas resultantes podem ser vistas na figura 19.

Para cada λ , onde foi feito o cálculo, a espessura ótima para o filtro de quartzo foi escolhida de modo que o valor de C_3 seja, no máximo 0.02 (ou seja, o I_3 da ordem de 2% do I_1) e que os valores de C_4 e C_5 possam ser considerados desprezíveis, ou seja I_4 e I_5 menores do que 0.3% do valor de I_1 . As espessuras determinadas por esse critério estão colocadas em gráfico em função de comprimento de onda, na figura 20.

Os blocos de monocristal de quartzo, utilizados como filtros, possuem forma cilíndrica, sendo todos iguais, com 5 cm de diâmetro e 5 cm de espessura. Esses blocos são colocados em série, e o nº de unidades depende da espessura requerida, podendo formar uma espessura total de até 40 cm. A série de blocos é inserida no canal de irradiação, para que os nêutrons espalhados sejam absorvidos pela própria blindagem do reator.

Medidas da secção de choque total do ouro, foram efetuadas com feixe de nêutrons filtrado, onde as espessuras de quartzo foram escolhidas de acordo com a curva da figura 20. Os pontos experimentais foram colocados na figura 18, e há concordância com a curva padrão do ouro, indicando uma boa otimização dos filtros, a partir dos f_n calculados para o cristal de Ge (III).

4.2 – Medidas em Energias Acima do Pico do Espectro Térmico

4.2.1 – Introdução

Na figura 16 do ítem 4.1.5, pode ser visto que a contaminação de ordem na região de comprimentos de onda pequenos é desprezível para uma secção de choque que varie linearmente com λ . Contudo, para a medida de uma ressonância nuclear, nessa região, o problema torna-se particularmente importante⁽²⁹⁾, e o objetivo principal dessa secção (4.2), é estimar essas influências para posteriormente eliminá-las por meio de filtros. Porém, nessa região de comprimentos de onda pequenos, não é necessário o cálculo da refletividade do cristal para estimar as frações de contaminação de ordem superior ao feixe, uma vez que algumas aproximações podem ser feitas, aproveitando a variação quase linear da refletividade (figura 9), e do espectro (figura 15), em relação a λ .

Para esse estudo, foi feita a medida da ressonância do Irídio em $E_0 = 0.654$ eV (ou 0.353 Å), utilizando um cristal de Al (III), já descrito no ítem 2.12 do Cap. II, como monocromador. A escolha do Ir, como padrão, se deve, não só à facilidade com que amostras de alta pureza (99.99%) podem ser obtidas, como também, à precisão com que os parâmetros dessa ressonância já foram determinados – e podem ser encontrados na referência⁽³⁷⁾ – permitindo a construção de uma curva teórica padrão.

Preliminarmente ao problema da contaminação de ordens, deve-se considerar o efeito do movimento térmico dos átomos da amostra, bem como o efeito da resolução instrumental, na curva teórica da ressonância; esta última, é obtida a partir dos parâmetros conhecidos.

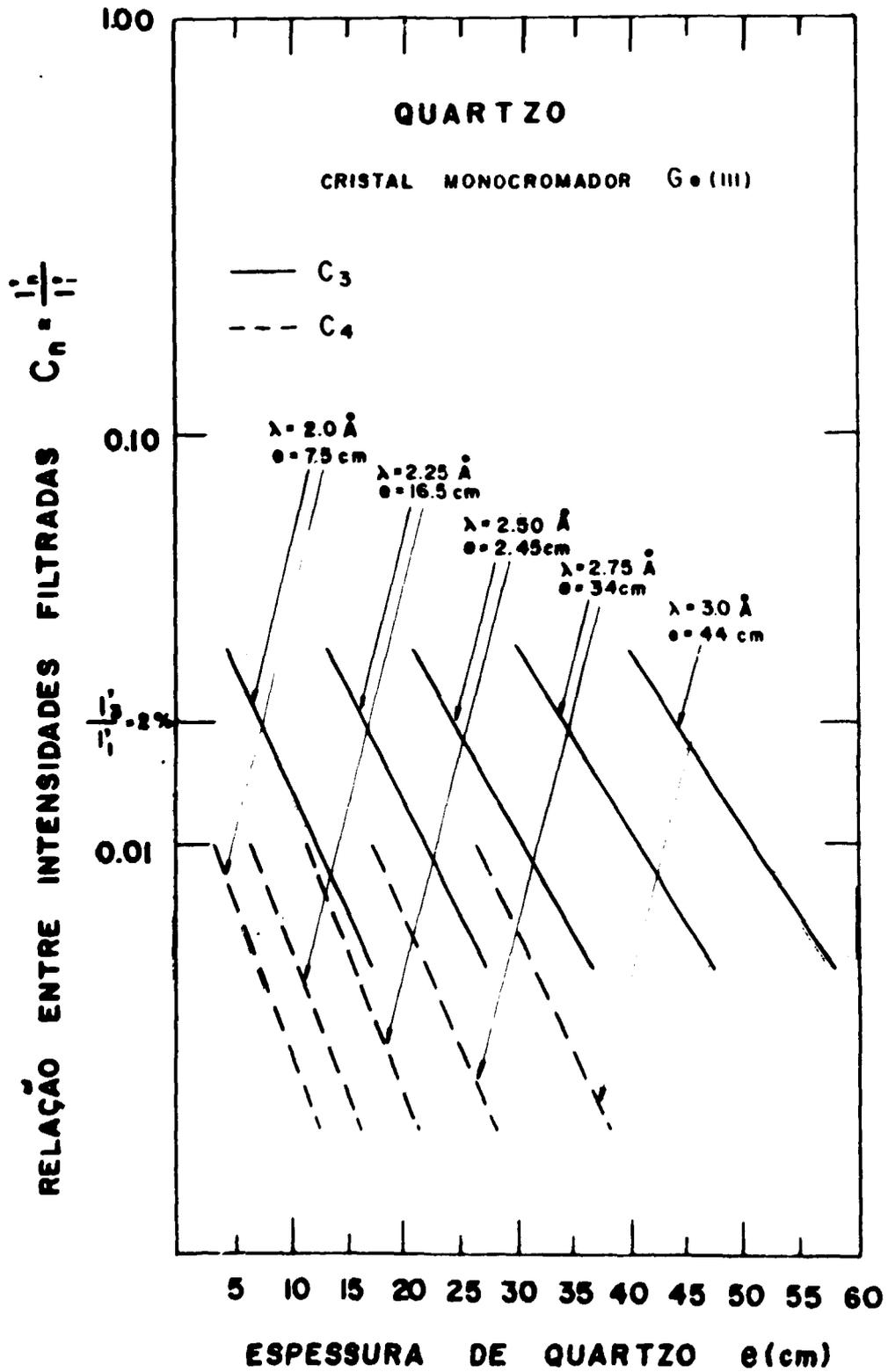


Figura 19 – Relação entre intensidade filtrada de ordem superior e intensidade filtrada de primeira ordem (para $n = 3,4$) do Ge (III), calculada em vários comprimentos de onda. A espessura de quartzo é escolhida para o valor $C_1 = 0.02$.

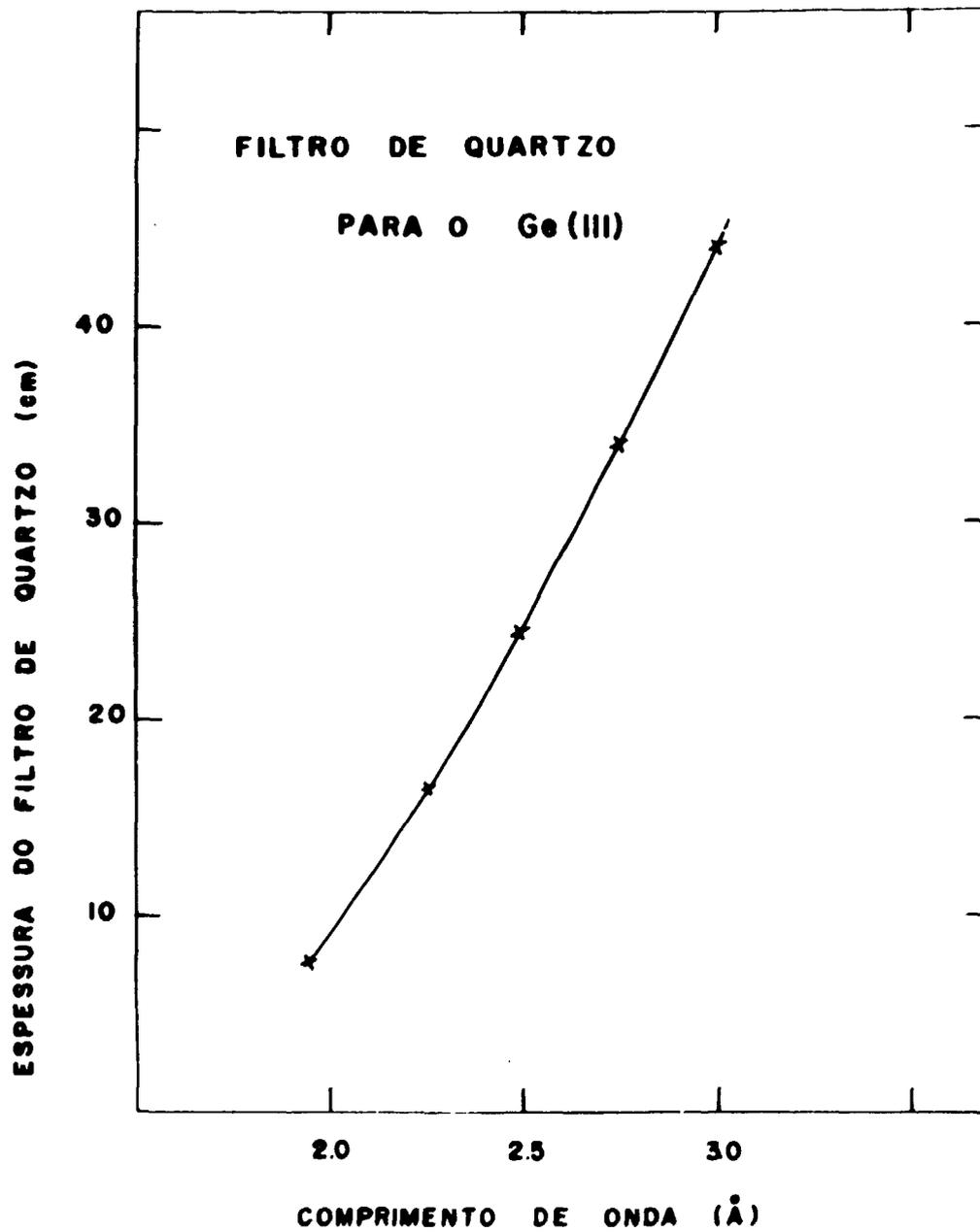


Figura 20 - Espessuras de filtros otimizados para eliminar contaminações de ordem superior no feixe refletido do cristal de Ge (III).

4.2.2 – Curva da Ressonância Padrão

Cada ressonância representa um estado excitado do núcleo composto, formado após a adição de um nêutron ao núcleo capturador.

A secção de choque total de um elemento, que apresenta uma ressonância isolada, tendo espalhamento ressonante desprezível, pode ser expressa em termos da fórmula de Breit-Wigner, para um nível⁽¹¹⁾.

$$\sigma_T = \sigma_0 \Gamma^2 (E_0/E)^{1/2} [4(E - E_0)^2 + \Gamma^2]^{-1} + \sigma_{f_a} \quad (4.7)$$

onde σ_T é a secção de choque total na energia E , σ_{f_a} é a secção de choque de espalhamento para o átomo livre, σ_0 é a secção de choque exatamente na energia da ressonância E_0 , e Γ é a largura total da ressonância na metade do máximo. A quantidade σ_0 é realmente a quantidade que envolve os parâmetros mais fundamentais, ou seja:

$$\sigma_0 = 4\pi\lambda_0^2 \cdot f \cdot g \Gamma_n \Gamma_\gamma / \Gamma^2 \quad (4.8)$$

onde $2\pi\lambda_0$ é o comprimento de onda de nêutron na ressonância; g é um fator peso estatístico que depende do spin do núcleo inicial; $\Gamma_n^0 = \Gamma_n \sqrt{E}$ e Γ_γ são, respectivamente, as larguras para emissão de nêutron e de gama pelo núcleo composto.

Nas proximidades de 1.0 eV, o Irídio possui duas ressonâncias⁽⁴⁵⁾: a primeira, na energia $E_0 = 0.654$ eV, é devida ao isótopo Ir^{191} , e a segunda, na energia $E_0 = 1.303$ eV, é atribuída ao isótopo Ir^{193} . A contribuição de cada nível, para a secção de choque total, foi calculada usando a eq. (4.7).

A contribuição $1/v$ das ressonâncias afastadas de ambos os isótopos, também foi considerada, e calculada pela expressão:

$$\sigma_{1/v} = \frac{g(0.286)^2 \cdot 10^{-6}}{4\pi\sqrt{E}} \sum_r \frac{f \Gamma_n^0 \Gamma_\gamma}{E_r^2} \quad (4.9)$$

Esta equação é obtida do termo de captura da fórmula de Breit-Wigner para um nível, fazendo a aproximação de que E_0 é muito maior do que E e Γ .

A curva da secção de choque total para nêutrons para a primeira ressonância do Irídio em $E_0 = 0.654$ eV foi construída adicionando as contribuições de todas as ressonâncias que aparecem nesse elemento. Para esse cálculo foram usados parâmetros, anteriormente publicados⁽³⁷⁾, e a curva resultante calculada, A , é vista na figura 21.

4.2.3 – Alargamento Doppler

a) Forma usual do Alargamento Doppler

A fórmula de secção de choque, do ítem anterior (4.2.2), deve ser modificada de modo a considerar o movimento térmico dos núcleos do alvo. Os primeiros a chamar a atenção para o efeito Doppler, no caso de ressonâncias de nêutrons, foram Bethe e Placzek⁽⁶⁾ em 1937, tratando os átomos como um gás ideal.

A secção de choque em uma dada energia, para átomos não estacionários, é obtida efetuando-se uma média da secção de choque primitiva sobre a distribuição térmica de velocidades dos núcleos do alvo.

Pela convolução dessa distribuição de velocidades, com a expressão que descreve a curva da ressonância natural, se obtém a secção de choque afetada com o efeito Doppler⁽⁵⁾.

$$\sigma = \frac{\sigma_0}{\sqrt{\pi} \Delta} \sqrt{\frac{E_0}{E}} \int_0^{\infty} \frac{\exp[-(E_r - E_0)^2 / \Delta^2]}{[(E_r - E_0) / (\Gamma/2)]^2 + 1} dE_r \quad (4.10)$$

Para um gás livre a largura de Doppler Δ é dada por:

$$\Delta = 2(m E_0 kT/M)^{1/2} \quad (4.11)$$

onde m e M são as massas do nêutron e do núcleo, respectivamente; k constante dos gases, e T a temperatura da amostra.

O nêutron incidente, relativamente ao núcleo alvo, possui velocidade v_r correspondendo à energia E_r .

Introduzindo variáveis adimensionais, tais como:

$$x = \frac{2(E - E_0)}{\Gamma}$$

$$y = \frac{2(E_r - E_0)}{\Gamma}$$

$$\gamma = \left(\frac{\Delta}{\Gamma}\right)^2$$

a eq. (4.10) torna-se:

$$\sigma(E, \psi) = \sigma_0 \sqrt{\frac{E_0}{E}} \psi(x, t) \quad (4.12)$$

onde $\psi(x, t)$ é a chamada integral de Doppler

$$\psi(x, t) = \frac{1}{2\sqrt{\pi t}} \int \frac{\exp[-(x - y)^2 / 4t]}{1 + y^2} dy \quad (4.13)$$

b) Alargamento Doppler para um Absorvedor Sólido

Um dos primeiros a considerar uma teoria para captura de nêutrons por átomos ligados em um cristal foi Lamb⁽⁴⁴⁾, em 1939. Em sua teoria, considerou os efeitos das ligações do retículo cristalino, na forma de uma ressonância natural de captura.

Aplicando os métodos da mecânica quântica, Lamb considerou o efeito Doppler para um absorvedor sólido, assumindo dois casos limites para tipos de ligações da rede cristalina: a aproximação para ligação forte, e para ligação fraca. Para o caso de ligação forte, Lamb considerou que a forma da ressonância não teria o alargamento Doppler; e para ligações intermediárias, a maneira de levar em conta o efeito das ligações cristalinas na forma da ressonância, é um caso complicado.

Na hipótese de ligação fraca, a forma da expressão para a curva alargada, no caso de um absorvedor sólido, é a mesma do que para um absorvedor ideal dada pela eq. (4.12). Porém, uma nova definição de Δ deve ser apresentada. Para esse caso de ligação cristalina fraca, o Δ depende da energia média por grau de vibração e não mais da temperatura da amostra como está expresso na eq. (4.11).

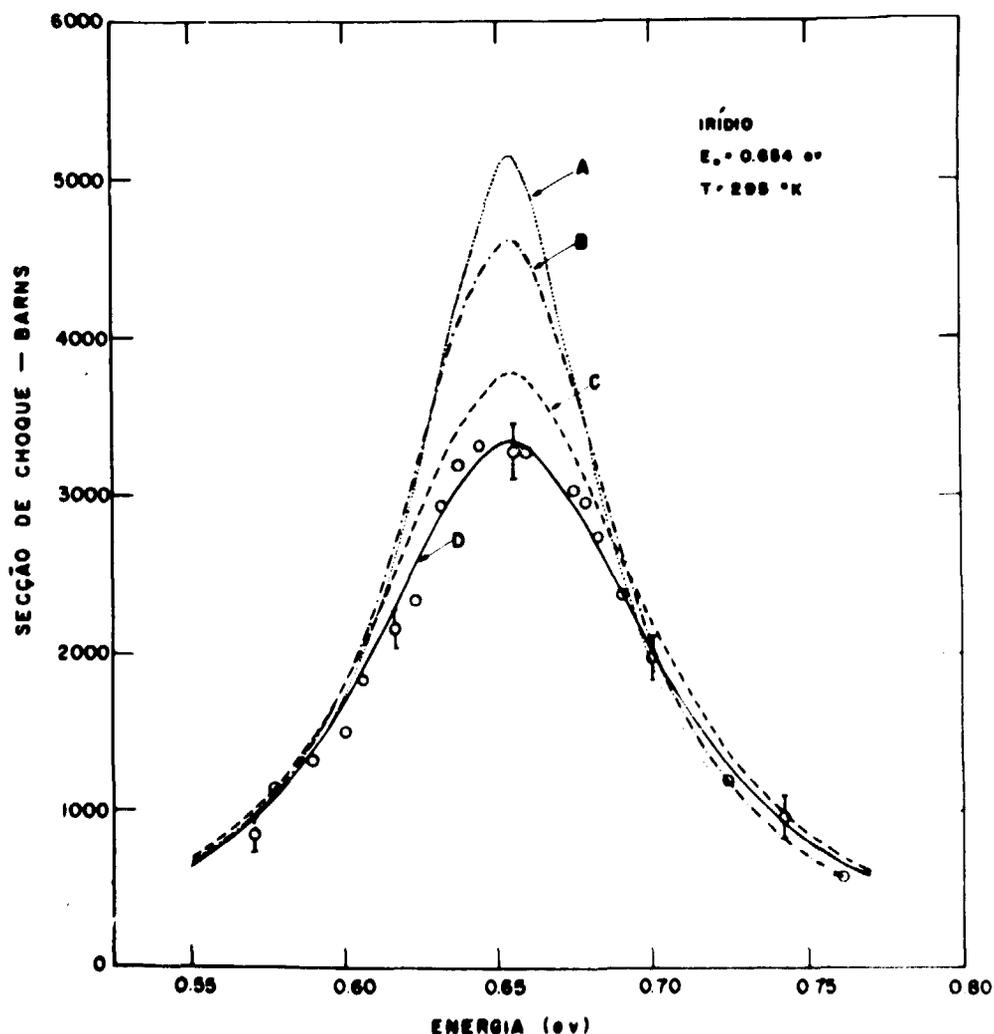


Figura 21 — Seção de choque total do irídio, em função da energia do nêutron. A curva A é a ressonância padrão construída por Breit-Wigner. A curva B é resultante da consideração do efeito Doppler em A. A curva C é obtida considerando o efeito da resolução instrumental em B. A curva D, é obtida a partir de C, considerando a contaminação de segunda ordem do cristal Al (111).

Aplicando o modelo de Debye, Lamb foi capaz de estabelecer uma relação entre a energia média por grau de vibração do cristal e uma temperatura efetiva T' , que deve ser usada em substituição à temperatura da amostra T .

A temperatura efetiva é calculada⁽⁴⁷⁾ pela eq. (4.14), onde Θ é a temperatura de Debye da amostra e os valores de $C_v = f(\Theta / T)$ são encontrados na referência⁽⁶¹⁾.

$$\frac{T'}{T} = \frac{C_v}{24} + \frac{3(\Theta/T)}{4[\exp(\Theta/T) - 1]} + \frac{3(\Theta/T)}{8} \quad (4.14)$$

Utilizando a eq. (4.14), e o valor de $\Theta = 285^\circ\text{K}$ ⁽³³⁾, foi determinada a temperatura efetiva para o irídio $T' \cong 1.04 T$.

Quando um absorvedor sólido é tratado no limite de ligação fraca, Lamb mostrou que a condição $\Gamma + \Delta \gg 2\Theta$ deve ser satisfeita. Porém, esta condição foi investigada com mais detalhe por Egelstaff⁽⁵⁾, e seu resultado indica que a relação $(\Gamma + \Delta)/2\Theta$ necessita ser simplesmente maior que 2, antes que o modelo de ligação fraca possa ser aplicado com confiança.

A aplicação da teoria de Lamb, que considera o efeito Doppler, representa uma boa aproximação para se obter a secção de choque teórica afetada por esse efeito, mesmo no caso da ressonância do Irídio em 0.654 eV, onde a condição requerida para a aplicação do modelo da temperatura efetiva não é rigorosamente satisfeita ($(\Gamma + \Delta)/(2\Theta) \cong 2$).

A secção de choque alargada por efeito Doppler foi calculada usando a eq. (4.12) e acrescentando as contribuições $1/v$ das ressonâncias afastadas, estando a curva resultante $\sigma(E, \psi)$ representada pela curva B da figura 21.

4.2.4 – Efeito da Resolução Instrumental

Se o feixe de nêutrons fosse puramente monoenergético com uma energia E , o valor da secção de choque total obtida das medidas seria exatamente a secção de choque total alargada por efeito Doppler $\sigma(E, \psi)$.

Para esta situação ideal, a transmissão através da amostra é dada por:

$$T(E, \psi) = \exp[-N\sigma(E, \psi)] \quad (4.15)$$

onde N é o nº de átomos/barn da amostra.

Contudo, esta condição de feixe monoenergético não pode ser alcançada na prática, e a resolução instrumental fará com que a transmissão medida T_r seja diferente da verdadeira transmissão $T(E, \psi)$ pela seguinte expressão:

$$T_R = \frac{\int_0^\infty T(E, \psi) R(E' - E) dE'}{\int_0^\infty R(E' - E) dE'} \quad (4.16)$$

onde

$$R(E' - E) = A(E')^{-3.2} \exp - \left[\frac{4 \ln 2}{(\Delta E)^2} (E' - E)^2 \right] \quad (4.17)$$

A equação (4.17) representa a função resolução do espectrômetro, que dá a distribuição em energia do feixe de nêutrons refletidos. Um cálculo detalhado da função $R(E' - E)$ pode ser encontrado no Apêndice A da referência⁽²⁶⁾. No termo $(E')^{-3.2}$ da eq. (4.17) já está considerado o comportamento da refletividade do cristal, da distribuição espectral do reator, e a variação $1/v$ da eficiência do detector; A é uma constante numérica que é cancelada na normalização feita na eq. (4.16).

A energia nominal que é colocada pelo espectrômetro é E , e E' é a energia variável na qual R é calculada. A largura da função resolução na metade do máximo é ΔE , e seu valor é dado por

$$\Delta E = 4d \cos \Theta (0.286)^{-1} \cdot \pi^{3/2} \Delta \Theta \quad (4.18)$$

obtido da diferenciação da equação de Bragg, onde E é expresso em eV e d em unidades de 10^{-8} cm. $\Delta \Theta$ representa a largura total na metade do máximo da função resolução do instrumento em termos da distribuição em ângulo de Bragg⁽²⁶⁾.

$$\Delta \Theta = \left[\frac{a_1^2 b^2 + a_2^2 a_2^2 + a_2^2 b^2}{a_1^2 + a_2^2 + 4b^2} \right]^{1/2} \quad (4.19)$$

A expressão para $\Delta \Theta$ acima, foi determinada assumindo a extinção secundária desprezível e, de acordo com o ítem 2.1.3, do Cap. II, esta aproximação é válida pois o interesse é apenas no efeito da resolução em energia.

A largura do mosaico $b = 0.189^\circ$, do cristal de Alumínio utilizado, foi obtida através de uma medida da curva de rocking, procedendo de modo análogo ao descrito no ítem 4.1.1. Os colimadores do espectrômetro de cristal do IEA, possuem divergências angulares fixas e nessas condições, o $\Delta \Theta$ calculado pela eq. (4.19) é uma constante e uma característica do instrumento para um dado cristal monocromador. Para o Al (III), $\Delta \Theta = 0.177^\circ \cong 10$ min.

Usando as eqs. (4.16), (4.17) e (4.18), foi calculada a transmissão T_R com o auxílio do computador IBM-1620, do IEA. A secção de choque total, correspondente ao T_R , foi calculada para a amostra de irídio, (descrita no ítem 2.2.1, do Cap. II), com $N = 3.97 \times 10^{-4}$ átomos/barns e está representada pela curva C, da figura 21.

4.2.5 – Contaminação de Ordem Superior

No caso da medida de uma ressonância próxima a 1 eV, considera-se apenas a contaminação de segunda ordem⁽⁵⁾, uma vez que a refletividade para ordens maiores decresce muito rapidamente nessa região de energias.

No ítem 3.4.1 foi mostrado que a secção de choque contaminada σ_m observada, quando é medida uma curva σ_R conhecida, é dada pela eq. (3.45); reescrevendo-a, tem-se:

$$\sigma_m = \frac{1}{N} \ln (f_1 T_R + f_2 T_2)^{-1} \quad (4.20)$$

ou ainda

$$\sigma_m = \frac{1}{N} \ln [(f_1 T_R) (1 + f_2 T_2 / f_1 T_R)]^{-1} \quad (4.21)$$

Das eqs. (3.39) e (3.42) e definindo $k = \frac{I_2}{I_1}$, pode-se colocar σ_m na forma:

$$\sigma_m = \sigma_R + \frac{1}{N} \ln \left[\frac{1 + k}{1 + k \exp N(\sigma_R - \sigma_2)} \right] \quad (4.22)$$

No intervalo das energias primárias, onde é medida a ressonância do Ir em 0.654 eV, o valor da secção de choque na energia 4E pode ser considerado constante⁽³⁷⁾, $\sigma_2 \cong 25$ barns. Nessas condições, para o cálculo de σ_m pela eq. (4.22) é necessária a determinação de k, que é a intensidade relativa entre a segunda e a primeira ordem.

Pela eq. (3.34) no ítem 3.3.2, uma expressão para k pode ser escrita na forma⁽¹⁰⁾:

$$k = \frac{(\varepsilon \phi R' \Delta E)_2}{(\varepsilon \phi R' \Delta E)_1} \quad (4.23)$$

onde os índices referem-se à ordem.

De acordo com a figura 2, do Cap. II, pode ser notado o comportamento da eficiência com $1/v$, na região próxima a 1 eV; portanto, a relação de eficiências $\varepsilon_2/\varepsilon_1$ é igual a $(E_2/E_1)^{-0.5}$.

Retornando à eq. (4.18) pode-se determinar que $\Delta E/E = 2 \Delta \theta \cotg \theta \cong 2 \Delta \theta/\theta$, e como o $\Delta \theta/\theta$ é constante quando se compara ordens, isto implica que a relação das larguras de resolução é dada por $\Delta E_2/\Delta E_1 = E_2/E_1$.

Para comprimentos de onda pequenos, tanto a refletividade⁽⁷¹⁾, $R' = e^{-2M} R$ (figura 9), como o espectro de nêutrons (figura 15) são aproximadamente lineares em relação a λ ; e sendo que e^{-2M} só depende da ordem (eq. 3.3), a dependência com a energia do produto $\phi R = I/\varepsilon \Delta E$ pode ser determinada experimentalmente, pela colocação dos pontos ϕR , em função da energia, em uma escala logarítmica.

A intensidade I acima de 0.5 eV foi medida e corrigida para ε e ΔE , que possuem expressões bem conhecidas (eq. 2.3 e eq. 4.18); foi ajustada uma curva aos pontos experimentais de $I/\varepsilon \Delta E$, por mínimos quadrados (figura 22), obtendo-se $\phi R \propto E^{-2.7}$.

Compondo os fatores envolvidos na eq. (4.23), pode-se reescreve-la na seguinte forma:

$$k = \left(\frac{E_2}{E_1} \right)^{-2.2} e^{-2(M_2 - M_1)} \quad (4.24)$$

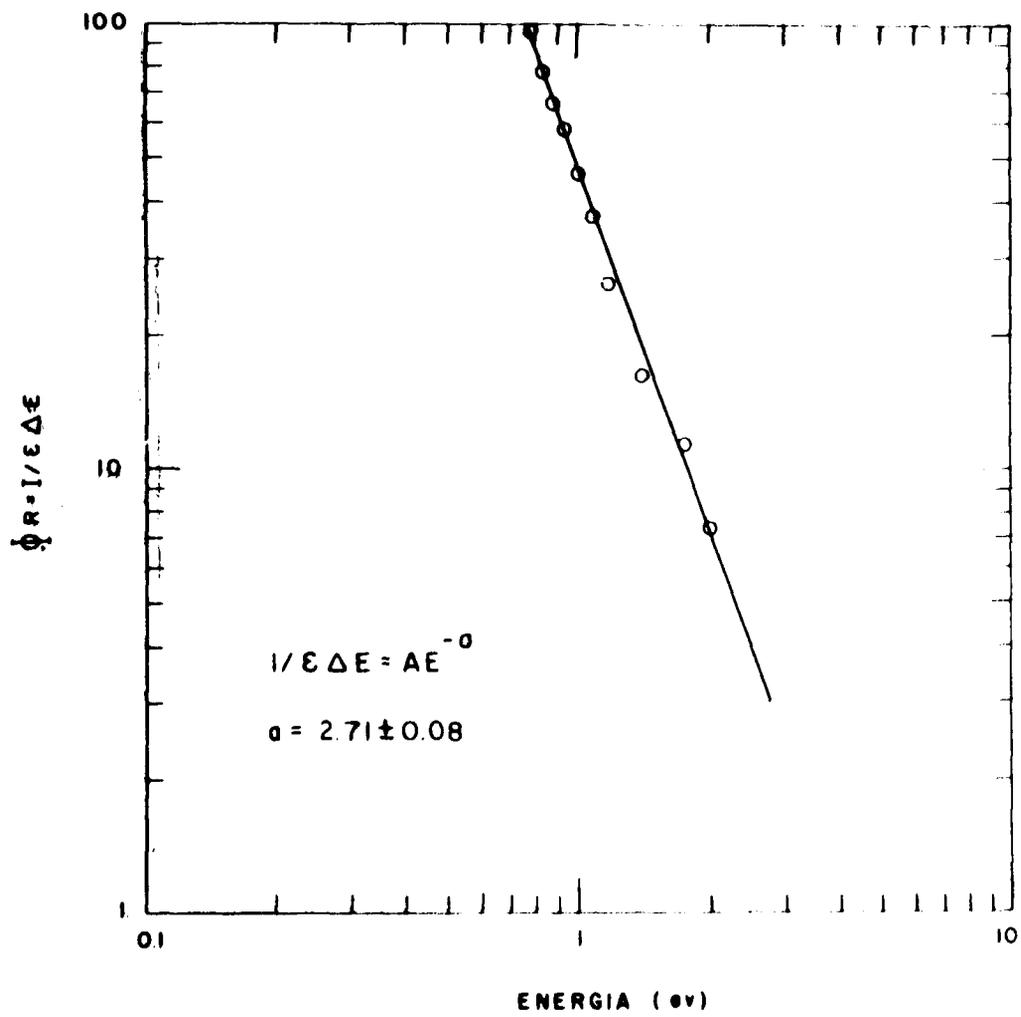


Figura 22 - Intensidade dos nêutrons em função da energia. Os pontos foram corrigidos para a eficiência do detector e largura de resolução ΔE . O ajuste por mínimos quadrados determina $\phi_R \propto E^{-2.7}$.

Pela eq. (3.3) pode-se verificar que para qualquer ordem, vale a relação $M_n = n^2 M_1$. Assim, tem-se

$$k = \left(\frac{E_2}{E_1}\right)^{-2.2} e^{-\delta M_1} \quad (4.25)$$

O valor de $M = 0.0414$, para o cristal na temperatura ambiente (295°K) e $n = 1$, foi calculado pela eq. (3.3), utilizando o valor de $\Theta_D = 418^\circ\text{K}$ para a temperatura de Debye do Al⁽³³⁾.

A substituição numérica na eq. (4.25), com $E_2 = 4E_1$, conduz ao valor $k = 0.03697$.

A eq. (4.22), com o valor de k substituído, é a expressão da curva natural de Breit-Wigner afetada pelo efeito Doppler, a resolução instrumental, e a contaminação de segunda ordem.

A secção de choque σ_m é o valor teórico, que deve ser medido, e está representado pela curva D, figura 21.

A secção de choque total para o Iridio, foi medida no intervalo de energias de 0.55 eV a 0.80 eV; e os pontos experimentais colocados em gráfico na figura 21, mostram boa concordância com a curva esperada D.

Alguns dos efeitos considerados que influenciam a medida da ressonância não podem ser verificados por medida experimental direta⁽⁶⁴⁾; contudo, os resultados experimentais da figura 21 indicam uma boa estimativa da função resolução, da contaminação de segunda ordem e dos parâmetros usados.

O conjunto de colimadores e o cristal usado no espectrômetro para essa experiência não são os ideais para compor um sistema monocromador de ótima intensidade e resolução⁽⁷³⁾, entretanto, o sistema utilizado é suficientemente bom, para analisar os efeitos considerados.

4.2.6 – Filtro de Telúrio

A contaminação de segunda ordem na medida da ressonância do Ir, estudada em $E_0 = 0.654$ eV, foi eliminada por meio de uma técnica desenvolvida pelo uso de um filtro de Telúrio. O Telúrio possui as propriedades necessárias a um filtro, mencionadas no ítem 4.1.6, ou seja, sua secção de choque é baixa e constante $\sigma = 6.0$ barns na região de energias de 0.6 eV a 0.7 eV, sendo o filtro praticamente transparente aos nêutrons com energia compreendida nesse intervalo. Além disso, o telúrio possui uma ressonância⁽³⁷⁾ cuja secção de choque varia de 400 barns a 15 barns no intervalo de 2.4 eV a 2.8 eV, que é a região de energia dos nêutrons de segunda ordem com energia $4E$.

Das eqs. (3.41) e (4.5), pode-se escrever a relação entre a intensidade filtrada de segunda ordem e a intensidade filtrada de primeira ordem

$$C_2 = \frac{I_2}{I_1} \frac{t_2}{t_1} = k \frac{t_2}{t_1} \quad (4.26)$$

onde t_1 e t_2 são as transmissões através do filtro de Telúrio para nêutrons com energia E e $4E$, respectivamente.

Quando o filtro é usado, a secção de choque σ_m é calculada pela eq. (4.22) com k substituído por C_2 . O filtro é tanto mais eficiente quanto mais a curva D for próxima da curva C

na figura 21, ou pela eq. (4.26), quanto mais a relação t_2/t_1 minimizar o valor de k , calculado no ítem 4.2.5.

O filtro consiste de uma pastilha de Telúrio em pó compactado, com 4 cm de diâmetro e 2.5 cm de espessura, com densidade $\rho = 4.5 \text{ g/cm}^3$ que é da ordem de 72% da densidade do metal. A compactação do pó foi feita pela Divisão de Metalurgia Nuclear do IEA, e as dimensões da pastilha se deve ao tamanho da matriz utilizada nesse processo.

O número de átomos por cm^3 , $N = \rho N_0 / A$, calculado com $A = 127.6$, é igual a $N = 2.127 \times 10^{22}$. A relação entre as transmissões pode ser escrita na forma $t_2/t_1 = \exp[-Nx(\sigma_2 - \sigma_1)]$, onde x é a espessura em cm, e os valores das secções de choque, em unidades de 10^{-24} cm^2 , foram obtidos da referência⁽³⁷⁾.

Substituindo os valores na eq. (4.26) obtém-se

$$C_2 = 0.03697 \exp[-5.3175(\sigma_2 - \sigma_1)] \quad (4.27)$$

Os valores de C_2 foram calculados pela eq. (4.27) no intervalo de 0.6 eV a 0.7 eV e estão colocados em gráfico na figura 23; pode-se notar que, na região de 0.65 eV próxima ao pico da ressonância, a relação C_2 é menor do que 1%. Portanto, o uso do filtro reduz sensivelmente a relação entre a intensidade de segunda ordem e a primeira ordem, que é 3.7% (valor de k) para as reflexões do Al (III), nessa região de energias.

Utilizando esse filtro deve-se medir uma secção de choque que concorde com a curva calculada pela eq. (4.22), com o valor de k substituído por C_2 dado pela eq. (4.27); esta curva calculada está representada pela curva E na figura 24, juntamente com as curvas C e D já discutidas.

Os pontos experimentais da secção de choque medida com o filtro, mostram boa concordância com a curva E, indicando que a utilização de filtros constituídos por elementos que possuem ressonâncias, é um método que pode resolver o problema de contaminação de segunda ordem nessa região de energias.

CAPÍTULO V

CONCLUSÕES GERAIS

O espectrômetro de cristal, quando auxiliado pela aplicação de métodos convenientes, para a eliminação das reflexões de ordem superior do cristal, é o instrumento mais indicado para a obtenção de nêutrons monocromáticos à baixa energia.

O desenvolvimento do método da aplicação de correções calculadas, aos dados experimentais, propiciou um estudo completo da estória dos nêutrons, desde a entrada no canal de irradiação até a detecção, depois de terem sido colimados, e difratados pelo cristal.

Para a aplicação deste método foi necessário calcular a refletividade do cristal de Ge, para o caso de reflexão simétrica. Outros autores já efetuaram esse cálculo⁽⁷¹⁾ e⁽¹⁴⁾, porém utilizaram as expressões apresentadas nas referências⁽⁴⁾ e⁽³⁾, nas quais o efeito da colimação finita do feixe não é considerado. Além disso, para a obtenção das curvas de refletividade do Ge (III), esses autores seguiram um critério, já adotado por Holm⁽³⁴⁾ e por Pattenden⁽⁵⁴⁾, no qual utiliza-se como coeficiente de absorção linear a secção de choque macroscópica total do elemento, ao invés da do cristal como foi feito nos cálculos desta tese.

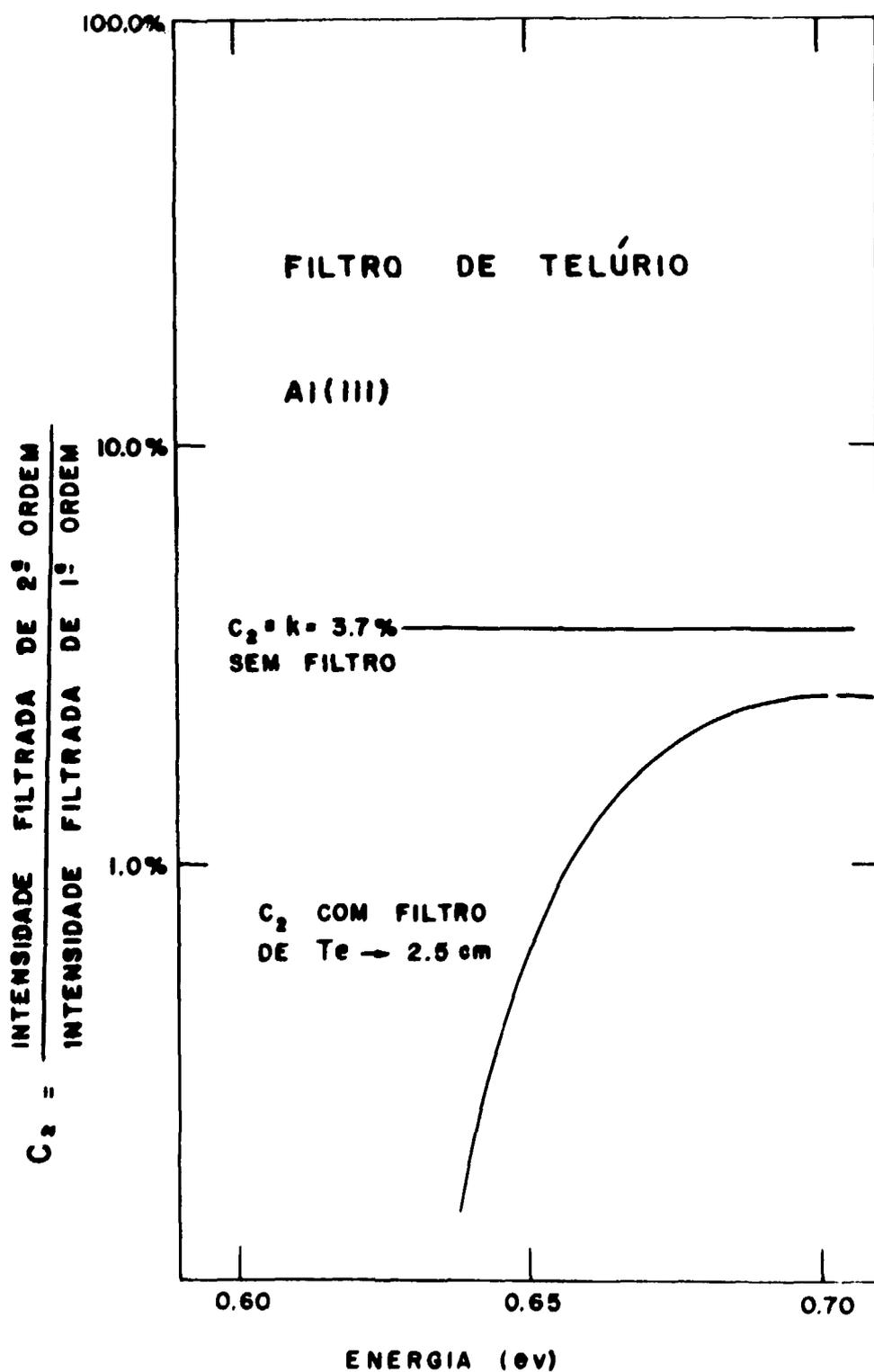


Figura 23 — Relação entre as intensidades filtradas pelo filtro de telúrio com 2.5 cm de espessura. Na energia do pico da ressonância do irídio, $E = 0.654$ eV, a contaminação é menor do que 1%.

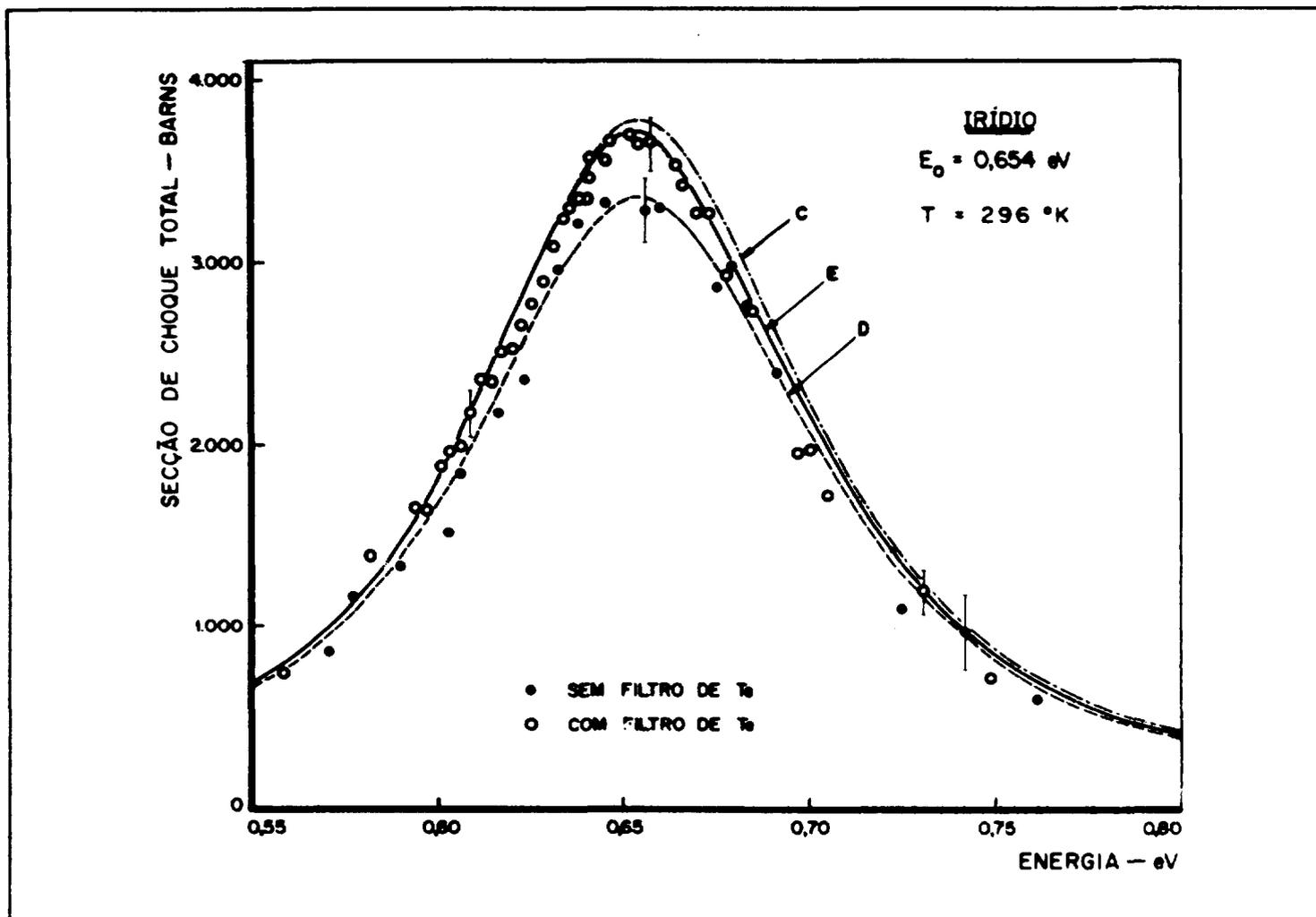


Figura 24 — Secção de choque total do irídio, em função da energia, utilizando filtro de telúrio com 2.5 cm de espessura. A curva esperada é E; as curvas C e D já foram discutidas na figura 21.

Na verdade, em estudos realizados em cristais de chumbo, Jones⁽⁴²⁾ e Leser⁽⁴⁶⁾ apontam que a secção de choque macroscópica total de um monocristal é diferente da secção de choque do elemento. Nesta tese, o coeficiente de absorção efetivo do cristal de Ge (III) foi calculado com base na referência⁽⁴²⁾, e no comprimento de onda $\lambda = 1.0 \text{ \AA}$, este coeficiente coincide com o valor obtido por Popovici⁽⁵⁹⁾.

Em seu trabalho, Brocker⁽¹⁴⁾, alegando existir muita diferença entre os valores tabelados da temperatura de Debye do Ge, assume o valor do fator de Debye-Waller igual à unidade, e isto influi sobremaneira nos resultados calculados.

No presente trabalho, o valor da temperatura de Debye, que deve ser usada nos cálculos relativos ao germânio, foi determinada através da comparação entre os pontos experimentais da secção de choque total do cristal de Ge, e as curvas calculadas pela aproximação incoerente de Placzek. Pelo critério adotado, para escolher o valor de $\Theta_D = 370^\circ \text{K}$, também é possível verificar que a secção de choque de um monocristal comporta-se realmente do modo previsto nas referências⁽⁴²⁾ e ⁽⁴⁶⁾; esse comportamento é bem diferente da secção de choque total do elemento.

Um resultado muito importante, obtido durante o desenvolvimento do método de aplicação de correções calculadas para eliminar ordens, foi a determinação da distribuição espectral dos nêutrons emergentes do reator. A obtenção de uma expressão que descreve o espectro de nêutrons térmicos disponível, na saída do canal de irradiação nº 10 do reator, é de grande utilidade para qualquer tipo de experiência que venha a ser efetuada com esses nêutrons. A energia mais provável associada à temperatura da distribuição ($T = 351 \pm 8^\circ \text{K}$) é de particular interesse para a padronização de folhas de materiais usados como detectores de nêutrons; estes padrões são fundamentais para o desenvolvimento de técnicas de medidas de fluxo, por ativação de folhas.

O método para eliminação de ordens superiores, por correções calculadas, pode ser usado quando a porcentagem total de contaminação não é muito grande^(29,51). No caso da medida da secção de choque total do ouro, com o cristal de Ge (III) pode-se aplicar o método perfeitamente até $\lambda = 2.2 \text{ \AA}$, ou seja, corrigir uma contaminação total de até 15% (figura 17). Para correções maiores do que esta pode-se aplicar o método no caso de uma avaliação preliminar do comportamento, em relação a λ , de uma curva de secção de choque desconhecida.

Para medidas de melhor precisão, na região de maior contaminação, é preferível uma medida direta sem as contaminações de ordens superiores; para isto utiliza-se os filtros cristalinos otimizados a partir das frações f_n calculadas.

O cristal de Ge (III) foi utilizado como um dos recursos para diminuir a contaminação total, uma vez que as reflexões de segunda ordem são proibidas, pelo fator de estrutura cristalino. O sistema monocromador, que utiliza esse cristal e filtros de quartzo, mostrou-se eficiente para medidas diretas da secção de choque total, no intervalo de comprimentos de onda de 0.5 \AA a 3.0 \AA (0.32 eV a 0.01 eV). Portanto, podem ser efetuadas medidas precisas de secções de choque na energia térmica $E = 0.0253 \text{ eV}$ ($E_0 \equiv kT = 0.0253 \text{ eV}$, para $T = 293^\circ \text{K}$), sendo esses valores de extrema importância para cálculos de reatores térmicos.

Em energias maiores do que 0.32 eV foi estudada a ressonância do irídio, em $E = 0.654 \text{ eV}$. A pequena percentagem de contaminação de segunda ordem, no feixe refletido dos planos (111) de um cristal de alumínio, foi reduzida por meio de um filtro que utiliza uma ressonância nuclear do telúrio, na região dos nêutrons com energia $4E$.

Para esse estudo, em comprimentos de onda pequenos, foram feitos programas para o computador, que calculam a forma natural de uma ressonância pela expressão de Breit-Wigner para um nível, além de acrescentar as contribuições das ressonâncias afastadas. Além desses, outros programas precisaram ser efetuados para afetar a ressonância com o efeito Doppler e para convoluir a curva resultante com a função resolução do instrumento. Esses programas podem ser utilizados para ressonâncias de qualquer elemento.

Para calcular a contaminação de segunda ordem do Al (III) nessa região, foram feitas algumas aproximações não tendo sido necessário o cálculo da refletividade para esse cristal. A função resolução calculada não pode ser verificada por nenhuma medida experimental direta, mas pode ser feita uma estimativa de sua validade, através da medida de uma ressonância⁽⁶⁴⁾. A concordância entre a curva esperada do irídio e os pontos experimentais obtidos (figura 21), indica: a validade da função resolução, uma boa análise da contaminação de segunda ordem para o Al (III) e uma correta escolha dos parâmetros considerados.

Nessa região próxima a 1 eV, o uso do filtro de telúrio mostra ser um método capaz de resolver o problema de contaminação de segunda ordem, na medida de ressonâncias nucleares com o espectrômetro de cristal.

Os estudos de todos os métodos para a eliminação da contaminação de ordens superiores, descritos neste trabalho, colocam o instrumento em condições de efetuar medidas precisas de secções de choque, no intervalo de energias de 1 eV a 0.01 eV. Além disso, por abordar detalhadamente os problemas de contaminação de ordens superiores, reflexões parasitas, refletividade de cristais e resolução instrumental, esta tese contém informações fundamentais e necessárias para qualquer tipo de experiências que venham a ser efetuadas com o espectrômetro de cristal.

APÊNDICE A

Solução do Sistema de Equações (3.7) e (3.8)

Pode-se reescrever as equações na seguinte forma:

$$\frac{dP_o(\Delta, t)}{dt} = -\frac{(\mu + S)}{\gamma} P_o(\Delta, t) + \frac{S}{\gamma} P_H(\Delta, t) \quad (\text{A.1})$$

$$\frac{dP_H(\Delta, t)}{dt} = \frac{(\mu + S)}{\gamma} P_H(\Delta, t) - \frac{S}{\gamma} P_o(\Delta, t) \quad (\text{A.2})$$

Coloca-se P_o em evidência, na eq. (A.2);

$$P_o = -\frac{\gamma}{S} \left[\frac{dP_H}{dt} - \frac{(\mu + S)}{\gamma} P_H \right]$$

substituindo na eq. (A.1), e multiplicando ambos os membros por $-\frac{S}{\gamma}$, obtém-se:

$$\frac{d^2 P_H}{dt^2} - \frac{(\mu + S)}{\gamma} \frac{dP_H}{dt} = -\frac{(\mu + S)}{\gamma} \left[\frac{dP_H}{dt} - \frac{(\mu + S)}{\gamma} P_H \right] - \frac{S^2}{\gamma^2} P_H$$

$$\frac{d^2 P_H}{dt^2} = \left[\frac{(\mu + S)^2}{\gamma^2} - \frac{S^2}{\gamma^2} \right] P_H$$

$$\frac{d^2 P_H}{dt^2} = \left[\frac{\mu^2 + 2\mu S}{\gamma^2} \right] P_H \quad (\text{A.3})$$

A solução geral para a equação diferencial (A.3), é da forma:

$$P_H(\Delta, t) = A_1 e^{\left[\frac{\mu^2 + 2\mu S}{\gamma^2} \right]^{1/2} t} + A_2 e^{-\left[\frac{\mu^2 + 2\mu S}{\gamma^2} \right]^{1/2} t} \quad (\text{A.4})$$

Condições de Contorno: (caso de reflexão simétrica)

a) a potência do feixe incidente na face do cristal é conhecida

$$P_o(t) = P_o(0) \quad \text{para } t = 0$$

b) a potência do feixe difratado na face posterior do cristal é zero

$$P_H(t_o) = 0 \quad \text{para } t = t_o$$

Aplicando a condição de contorno b), na eq. (A.4), obtém-se:

$$A_1 e^{\left(\frac{\mu^2 + 2\mu S}{\gamma^2} \right)^{1/2} t_o} + A_2 e^{-\left(\frac{\mu^2 + 2\mu S}{\gamma^2} \right)^{1/2} t_o} = 0$$

define-se: $\frac{S}{\mu} = a$ e $\frac{\mu t_o}{\gamma} = A$

$$\therefore t_o \left(\frac{\mu^2 + 2\mu S}{\gamma^2} \right)^{1/2} = A \sqrt{1 + 2a}$$

$$A_1 e^{A \sqrt{1 + 2a}} + A_2 e^{-A \sqrt{1 + 2a}} = 0$$

$$A_1 = -A_2 e^{-2A \sqrt{1 + 2a}}$$

Substitui-se este valor na eq. (A.4), e escreve-se:

$$P_H(\Delta, t) = A_2 \left[e^{-\left(\frac{A\sqrt{1+2a}}{t_0}\right)t} - e^{-2A\sqrt{1+2a}\left(\frac{A\sqrt{1+2a}}{t_0}\right)t} \right] \quad (\text{A.5})$$

Derivando a eq. (A.5), obtém-se o primeiro membro da eq. (A.2).

$$\frac{dP_H}{dt} = A_2 \left[-\left(\frac{A\sqrt{1+2a}}{t_0}\right) e^{-\left(\frac{A\sqrt{1+2a}}{t_0}\right)t} - \left(\frac{A\sqrt{1+2a}}{t_0}\right) e^{-2A\sqrt{1+2a}\left(\frac{A\sqrt{1+2a}}{t_0}\right)t} \right]$$

$$\frac{dP_H}{dt} = -A_2 \frac{A\sqrt{1+2a}}{t_0} \left[e^{-\left(\frac{A\sqrt{1+2a}}{t_0}\right)t} + e^{-2A\sqrt{1+2a}\left(\frac{A\sqrt{1+2a}}{t_0}\right)t} \right]$$

O $\frac{dP_H}{dt}$ é substituído na eq. (A.2), que pode ser reescrita na forma:

$$\frac{dP_H}{dt} = \frac{A}{t_0} [(1+a)P_H - aP_0]$$

Portanto:

$$-A_2 \sqrt{1+2a} \left[e^{-\left(\frac{A\sqrt{1+2a}}{t_0}\right)t} + e^{-2A\sqrt{1+2a}\left(\frac{A\sqrt{1+2a}}{t_0}\right)t} \right] = [(1+a)P_H - aP_0] \quad (\text{A.6})$$

Como foi visto no item 3.2.3 do Cap. III, o interesse é na relação entre a potência do feixe difratado e incidente na face do cristal, isto é, em $t=0$; nessas condições, a equação (A.5) é escrita na forma:

$$P_H(\Delta, 0) = A_2 \left(1 - e^{-2A\sqrt{1+2a}} \right) \quad (\text{A.7})$$

e a eq. (A.6) na forma:

$$-A_2 \sqrt{1+2a} [1 + e^{-2A\sqrt{1+2a}}] = A_2(1+a)(1 + e^{-2A\sqrt{1+2a}}) - aP_o(\Delta,0)$$

$$A_2 [(1+a)(1 - e^{-2A\sqrt{1+2a}}) + \sqrt{1+2a}(1 + e^{-2A\sqrt{1+2a}})] = aP_o(\Delta,0)$$

Portanto:

$$A_2 = \frac{aP_o(\Delta,0)}{(1+a)(1 - e^{-2A\sqrt{1+2a}}) + \sqrt{1+2a}(1 + e^{-2A\sqrt{1+2a}})} \quad (\text{A.8})$$

Das eqs. (A.7) e (A.8), escreve-se:

$$P_H(\Delta, 0) = \frac{aP_o(\Delta,0)(1 - e^{-2A\sqrt{1+2a}})}{(1+a)(1 - e^{-2A\sqrt{1+2a}}) + \sqrt{1+2a}(1 + e^{-2A\sqrt{1+2a}})}$$

$$\frac{P_H(\Delta,0)}{P_o(\Delta,0)} = \frac{a}{(1+a) + \sqrt{1+2a} \left(\frac{1 + e^{-2A\sqrt{1+2a}}}{1 - e^{-2A\sqrt{1+2a}}} \right)}$$

utilizando a relação abaixo,

$$\left(\frac{1 + e^{-2u}}{1 + e^{2u}} \right) = \frac{e^{-u}(e^u + e^{-u})}{e^{-u}(e^u - e^{-u})} = \frac{e^u + e^{-u}}{e^u - e^{-u}} = \coth(u)$$

e fazendo $u = \sqrt{1+2a}$, pode-se escrever:

$$\frac{P_H(\Delta, 0)}{P_o(\Delta, 0)} = \frac{a}{(1+a) + \sqrt{1+2a} \coth[A\sqrt{1+2a}]} \quad (\text{A.9})$$

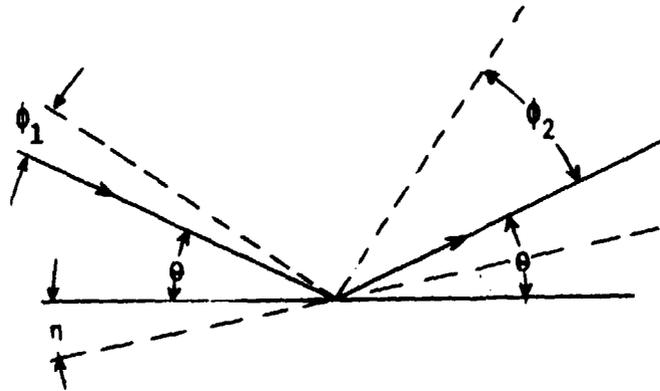
Esta eq. (A.9) é idêntica à expressão apresentada por Bacon⁽³⁾, para o caso de reflexão simétrica.

APÊNDICE B

Expressão para a Curva de "Rocking" do Cristal: (sem considerar extinção^(59.64));

Em uma geometria plana, o ângulo de Bragg para um raio não central, refletido de um bloco mosaico não central é:

$$\Theta' = \Theta + \phi_1 + \eta$$



onde:

Θ é o ângulo de Bragg para um raio central refletido de um bloco mosaico central.

ϕ_1 é o ângulo entre o raio individual incidente e o raio central incidente.

η é o ângulo entre o bloco mosaico individual e o bloco mosaico central.

Define-se

$$\delta \equiv \Theta' - \Theta$$

$$\Theta' = \Theta + \phi_1 + \eta = \Theta + \phi_2 - \eta$$

$$\delta = \phi_1 + \eta ; \delta = \phi_2 - \eta$$

$$\phi_1 = \delta - \eta ; \phi_2 = \delta + \eta$$

Seja a função transmissão do 1º colimador, dada por:

$$I(\phi_1) = I_0 e^{-\left(\frac{\phi_1}{\alpha_1}\right)^2}$$

e a refletividade do cristal dada por

$$\Theta(\eta) = R_o(\beta) e^{-(\eta/\beta)^2}$$

e a transmissão do 2º colimador dada por:

$$A(\phi_2) = e^{-\left(\frac{\phi_2}{\alpha_2}\right)^2}$$

A probabilidade de um nêutron passa através do 1º colimador, ser refletido pelo cristal, e passar pelo 2º colimador, é dada por:

$$\begin{aligned} I(\phi_1) \Theta(\eta) A(\phi_2) &= I_o R_o(\beta) \exp - \left[\left(\frac{\phi_1}{\alpha_1}\right)^2 + \left(\frac{\eta}{\beta}\right)^2 + \left(\frac{\phi_2}{\alpha_2}\right)^2 \right] = \\ &= I_o R_o(\beta) \exp - \left[\left(\frac{\delta - \eta}{\alpha_1}\right)^2 + \left(\frac{\eta}{\beta}\right)^2 + \left(\frac{\delta + \eta}{\alpha_2}\right)^2 \right] \end{aligned}$$

Ao se efetuar a curva de "rocking" o cristal sofre um giro em torno de sua posição de Bragg; para obter a intensidade do feixe "monocromático", substitui-se η por $\eta + \gamma$, e integra-se sobre δ e η :

$$J(\gamma) = I_o R_o(\beta) \int \int \exp - \left[\left(\frac{\delta - \eta - \gamma}{\alpha_1}\right)^2 + \left(\frac{\eta}{\beta}\right)^2 + \left(\frac{\delta + \eta + \gamma}{\alpha_2}\right)^2 \right] d\eta d\delta$$

onde:

$$\begin{aligned} &\left[\frac{\eta - (\delta + \gamma)}{\alpha_1} \right]^2 + \left(\frac{\eta}{\beta}\right)^2 + \left[\frac{\eta + (\delta + \gamma)}{\alpha_2} \right]^2 = \\ &= \frac{\alpha_2^2 \beta^2 [\eta^2 - 2\eta(\delta + \gamma) + (\delta + \gamma)^2] + \alpha_1^2 \alpha_2^2 \eta^2 + \alpha_1^2 \beta^2 [\eta^2 + 2\eta(\delta + \gamma) + (\delta + \gamma)^2]}{\alpha_1^2 \beta^2 \alpha_2^2} \end{aligned}$$

considera-se

$$A = \alpha_2^2 \beta^2 + \alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_1^2 \beta^2$$

$$2B = 2\beta^2 [\alpha_1^2 (\delta + \gamma) - \alpha_2^2 (\delta - \gamma)]$$

$$C = \beta^2 [\alpha_1^2 (\delta + \gamma)^2 + \alpha_2^2 (\delta - \gamma)^2]$$

$$D = \alpha_1^2 \beta^2 \alpha_2^2$$

a integral torna-se

$$\begin{aligned} \int \int \exp - \left(\frac{A\eta^2 + 2B\eta + C}{D} \right) d\eta d\delta &= \int \int \exp - \left[\frac{\eta^2 + 2\frac{B}{A}\eta + \frac{C}{A}}{\frac{D}{A}} \right] d\eta d\delta = \\ &= \int \int \exp - \left[\frac{\left(\eta + \frac{B}{A}\right)^2 + \frac{C}{A} - \frac{B^2}{A^2}}{\frac{D}{A}} \right] d\eta d\delta = \sqrt{\frac{D\pi}{A}} \int \exp - \left[\frac{CA - B^2}{DA} \right] d\delta \end{aligned}$$

onde:

$$\frac{CA - B^2}{DA} = \frac{A\beta^2 [\alpha_1^2 (\delta + \gamma)^2 + \alpha_2^2 (\delta - \gamma)^2] - \beta^4 [\alpha_1^2 (\delta + \gamma) - \alpha_2^2 (\delta - \gamma)]^2}{DA}$$

$$\frac{CA - B^2}{DA} = \frac{1}{DA} \{ A\beta^2 [\alpha_1^2 (\delta^2 + 2\delta\gamma + \gamma^2) + \alpha_2^2 (\delta^2 - 2\delta\gamma + \gamma^2)] -$$

$$- \beta^4 [\alpha_1^4 (\delta^2 + 2\delta\gamma + \gamma^2) - 2\alpha_1^2 \alpha_2^2 (\delta^2 - \gamma^2) + \alpha_2^4 (\delta^2 - 2\delta\gamma + \gamma^2)] \}$$

$$E = A\beta^2 \alpha_1^2 + A\beta^2 \alpha_2^2 - \beta^4 \alpha_1^4 + 2\beta^4 \alpha_1^2 \alpha_2^2 - \beta^4 \alpha_2^4$$

$$2F = 2(A\beta^2 \alpha_1^2 \gamma - A\beta^2 \alpha_2^2 \gamma - \beta^4 \alpha_1^4 \gamma + \beta^4 \alpha_2^4 \gamma)$$

$$G = A\beta^2 \alpha_1^2 \gamma^2 + A\beta^2 \alpha_2^2 \gamma^2 - \beta^4 \alpha_1^4 \gamma^2 - 2\beta^4 \alpha_1^2 \alpha_2^2 \gamma^2 - \beta^4 \alpha_2^4 \gamma^2$$

ou

$$E = \beta^2 [A(\alpha_1^2 + \alpha_2^2) - \beta^2 (\alpha_1^2 - \alpha_2^2)^2]$$

$$F = \beta^2 [A(\alpha_1^2 - \alpha_2^2) - \beta^2 (\alpha_1^4 - \alpha_2^4)] \gamma$$

$$G = \beta^2 [A(\alpha_1^2 + \alpha_2^2) - \beta^2 (\alpha_1^2 + \alpha_2^2)^2] \gamma^2$$

a integral pode ser escrita na forma:

$$\begin{aligned} \sqrt{\frac{D\pi}{A}} \int \exp\left(-\frac{E\delta^2 + 2F\delta + G}{DA}\right) d\delta &= \sqrt{\frac{D\pi}{A}} \int \exp\left(-\frac{\delta^2 + 2\frac{F}{E}\delta + \frac{G}{E}}{DA/E}\right) d\delta \\ &= \sqrt{\frac{D\pi}{A}} \int \exp\left[-\frac{(\delta + \frac{F}{E})^2 + \frac{G}{E} - \frac{F^2}{E^2}}{\frac{DA}{E}}\right] d\delta = \sqrt{\frac{DA}{E}} \sqrt{\frac{D\pi}{A}} \exp\left[-\frac{G}{DA} - \frac{F^2}{DAE}\right] \end{aligned}$$

portanto, escreve-se:

$$J(\gamma) = \frac{D\pi}{\sqrt{E}} \exp\left[-\frac{1}{DA} \left(G - \frac{F^2}{E}\right)\right]$$

onde:

$$\begin{aligned} \frac{1}{DA} \left(G - \frac{F^2}{E}\right) &= \frac{1}{DA} \left\{ \beta^2 [A(\alpha_1^2 + \alpha_2^2) - \beta^2 (\alpha_1^2 + \alpha_2^2)^2] \gamma^2 - \right. \\ &\quad \left. \frac{\beta^4 [A^2 (\alpha_1^2 - \alpha_2^2)^2 - 2A\beta^2 (\alpha_1^2 - \alpha_2^2) (\alpha_1^4 - \alpha_2^4) + \beta^4 (\alpha_1^4 - \alpha_2^4)^2] \gamma^2}{\beta^2 [A(\alpha_1^2 + \alpha_2^2) - \beta^2 (\alpha_1^2 - \alpha_2^2)^2]} \right\} \\ &= \frac{\beta^2}{DA [A(\alpha_1^2 + \alpha_2^2) - \beta^2 (\alpha_1^2 - \alpha_2^2)^2]} [A^2 (\alpha_1^2 + \alpha_2^2)^2 - A\beta^2 (\alpha_1^2 + \alpha_2^2)^3 - A\beta^2 (\alpha_1^2 + \alpha_2^2) (\alpha_1^2 - \alpha_2^2) \end{aligned}$$

$$+ \beta^4 (\alpha_1^4 - \alpha_2^4)^2 - A^2 (\alpha_1^2 - \alpha_2^2)^2 + 2A\beta^2 (\alpha_1^2 - \alpha_2^2) (\alpha_1^4 - \alpha_2^4) - \beta^4 (\alpha_1^4 - \alpha_2^4)^2] \gamma^2$$

sendo:

$$(\alpha_1^2 + \alpha_2^2) (\alpha_1^2 - \alpha_2^2)^2 = (\alpha_1^2 - \alpha_2^2) (\alpha_1^4 - \alpha_2^4),$$

escreve-se:

$$= \frac{\beta^2 [4\alpha_1^2 \alpha_2^2 A - 4\beta^2 (\alpha_1^4 \alpha_2^2 + \alpha_1^2 \alpha_2^4)]}{D[A(\alpha_1^2 + \alpha_2^2) - \beta^2 (\alpha_1^2 - \alpha_2^2)^2]} \gamma^2$$

Substituindo A e D, obtém-se:

$$\exp - \left[\frac{1}{DA} \left(G - \frac{F^2}{E} \right) \right] = \exp - \left[\frac{4\gamma^2}{\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + 4\beta^2} \right]$$

O coeficiente de J(γ), com D e E substituídos fica:

$$\frac{D\pi}{\sqrt{E}} = \frac{\alpha_1 \alpha_2 \beta \pi}{\sqrt{\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + 4\beta^2}}$$

Portanto a expressão para J(γ), torna-se:

$$J(\gamma) = \frac{\alpha_1 \alpha_2 \beta \pi}{\sqrt{\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + 4\beta^2}} \exp - \left[\frac{4\gamma^2}{\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + 4\beta^2} \right]$$

O desvio padrão dessa distribuição é dado por:

$$W' = \sqrt{\frac{\alpha_1^2 + \alpha_2^2}{4} + \beta^2}$$

As larguras α e β foram expressas em termos dos desvios padrões das distribuições dos colimadores e do mosaico; portanto, substitui-se $\alpha_1 = a_1/2 \sqrt{2\ln 2}$ e $\beta = b/2 \sqrt{2\ln 2}$; onde a é a divergência angular horizontal do colimador e b é a largura de mosaico de cristal. Portanto

$$W' = \frac{1}{2 \sqrt{2 \lambda n_2}} \sqrt{\frac{a_1^2 + a_2^2}{d} + b^2}$$

A largura na meia altura da distribuição que descreve a curva de "rocking" é dada por:

$$W = \sqrt{\frac{a_1^2 + a_2^2}{4} + b^2} \quad \therefore \quad W' = W/2 \sqrt{2 \lambda n_2}$$

Para se utilizar expressões de refletividade calculada para o caso de colimadores iguais, define-se $\alpha_e^2 = a_1^2 + a_2^2$, e ainda $\alpha' = \alpha_e/2 \sqrt{2 \lambda n_2}$, e fica-se com:

$$W' = 2 \sqrt{\left(\frac{\alpha'}{2}\right)^2 + \beta}$$

APENDICE C - PROGRAMA PARA COMPUTADOR

CALCULO DA REFLETIVIDADE INTEGRADA
CASO DA REFLEXAO SIMETRICA

```

C PROGRAMA REFLETI
C DP - DISTANCIA INTERPLANAR
C FNEG - RECIPROCO DO VOLUME DA CELULA UNITARIA
C CTEPL - CONSTANTE DE PLANCK
C CTEBOL - CONSTANTE DE BOLTZMANN
C TZERO - ESPESSURA DO CRISTAL
C B - AMPLITUDE DE ESPALHAMENTO COERENTE
C TEMPD - TEMPERATURA DE DERBYE
C Q - FUNCAO DE DERBYE
C BETA - LARGURA DO MOSAICO DE CRISTAL
C BETAA2 - FATOR QUE CONSIDERA OS COLIMADORES
COMMON FNEG, F2, DP, EMI, FLN, BTR, ALAM, TZERO, BETAA2
DP=3.2603*10.**(-8)
FNEG=0.55503*10.**22
CTEPL=6.625*10.**(-27)
CTEBOL=1.38*10.**(-16)
TEMPC=295
FNEP=12.0487*10.**(-23)
PI=3.1415926
TZERO=1.513
B=.84*10.**(-12)
11 READ 1005, TEMPD, Q, BETA, BETAA2
BTR=BETA*PI/180.
PRINT 1111, TEMPD, Q, BETA
PRINT 1002
DO 10 NEP=1,5
FLN=NEP
FNEG=6.*CTEPL**2/(FNEP*CTEBOL*TEMPD)*(FLN/(2**40))**2
1*(.25+(TEMPC/TEMPD)**2*Q)
IF(NEP-2)1,10,1
1 DO 10 L=25,350,25
ALAM=L
ALAM=ALAM/100.
E=.286*.286/(ALAM*ALAM)
TAL=3.872765*10.**3*E/TEMPD*(.25+(TEMPC/TEMPD)**2*Q)
EMI=4.44024/(10.*10.)*(1.3898/F**2+.49+8.825*(1.-(1.-
1EXP(-TAL))/TAL))
GO TO (2,10,2,3,2),NEP
2 F2=32.*B*B
GO TO 4
3 F2=64.*B*B
4 F2=F2*EXP(-2.*FNEG)
CALL INGER(20,4INT)
PRINT 1001, NEP, ALAM, EMI, F2, FNEG, 4INT
10 CONTINUE
GO TO 11
1001 FORMAT(6(2X, F14.8))
1002 FORMAT(8X, 34NEP, 12X, 64ALAMDA, 13X, 24EMI, 15X, 24F2, 13X, 14
1M, 11X, 8HINTEGRAL)
1005 FORMAT(5E14.8)
1111 FORMAT(1H ,6HTEMPD=,F14.8/14 , 24Q=,F14.8/14 , 54BETA=
114.8//)
END

```

SUBROUTINE INCHER (N,HINTE)

SUBROUTINE HERR - DETERMINA AS RAIZES DOS POLINOMIOS
DE HERMITE DE GRAU N

SUBROUTINE PHEGA - DETERMINA OS COEFFICIENTES PESOS
DA FORMULA DE INTEGRACAO DE GAUSS-HERMITE PARA O
POLINOMIO DE HERMITE DE GRAU N

DIMENSION PE(20), RA(20)
HINTE=0
CALL HFRR (N, RA)
CALL PHEGA(N, PE)
DO 1 J=1, N
HINTE=PE(J)*FX(RA(J))+HINTE
1 CONTINUE
RETURN
END

FUNCTION FX(X)

COMMON FNEG, FFE, DP, FMI, FNEP, BETA, ALAM, TZERO, BFTAA
DDP=DP*10.**8
SENTET=ALAM/(2.*DDP)
COSTET=(1.-SENTET*SENTET)**.5
A=FMI*TZERO/SENTET
D=8.*FNEG**2*FFE*DDP**3*SQRT(LOG(2.))/(SQRT(3.1416)*F
MI*FNEP**3*BFTAA)*SENTET**2/COSTET
FX=BETA/(2.*SQRT(LOG(2.)))*D/(1.+D*EXP(-X**2)+(1.+2.
1*D*EXP(-X**2))**.5*COTH(A*(1.+2.*D*EXP(-X**2))**.5))
FX=FX*EXP(-BFTAA2*X*X)
RETURN
END

ABSTRACT

A study of the higher order reflections in neutron crystal monochromators was made in order to obtain, for the IEA single crystal spectrometer, the operation range of 1,0 eV to 0,01 eV. Two crystals were studied, an Al (111) near 1,0 eV and a Ge (111) in lower energies. For the Ge (111) case the higher order contaminations in the reflected beam were determined using as standard the gold total neutron cross section and performing the crystal reflectivity calculation for several orders of reflection. The knowledge of the contamination for each order as a function of neutron wavelength allows the optimization of the filter thickness in order to avoid higher order neutrons.

The Ge (111) crystal was used because its second order reflections are theoretically forbidden, giving an advantage on other crystals, since measurements can be made until 0.02 eV directly without filters. In the energy range 0.02 to 0.01 eV, order contaminations higher than the second are present therefore either quartz filters are employed or calculated corrections are applied to the experimental data.

The Al (111) crystal was used in order to estimate the second order contamination effect, in the iridium resonance measurements, at $E_0 = 0.654$ eV. In that region approximations can be made and it was not necessary to make the crystal reflectivity calculation for the filters thickness optimization.

Since only the second order affects the results in that region, tellurium was used for the filtration, because this element has a resonance in the range of neutrons with energy 4E.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. ABREU, M. A. N. *Utilization of single crystals as filters for obtaining thermal neutron beams*. São Paulo, Instituto de Energia Atômica, set. 1966. (IEA-125).
2. ALS-NIELSEN, J. & DIETRICH, O. *Slow neutron cross sections for He³, B and Au*. Riso, Danish Atomic Energy Commission, Research Establishment Riso, July 1963. (RISÖ-61).
3. BACON, G. E. *Neutron diffraction*. 2.ed. Oxford, Clarendon, 1962.
4. _____ & LOWDE, R. D. Secondary extinction and neutron crystallography. *Acta crystallogr.*, Cambridge, Mass., 1:303-14, 1948.
5. BERNABEI, A. (brother). *The effects of crystalline binding on the doppler broadening of neutron resonance*. Upton, N. Y., Brookhaven National Lab., June 1964. (BNL-860(T-344)).
6. BETHE, H. A. & PLACZEK, G. Resonance effects in nuclear processes. *Phys. Rev.*, Ithaca, N. Y., 51:450-84, 1937.
7. BIANCHINI, F. G. et alii. *I. E. A. neutron velocity selector; theory and calibration*. São Paulo, Instituto de Energia Atômica, nov. 1964. (IEA-78).
8. BLAKE, F. C. On the factors affecting the reflection intensities by the several methods of x-ray analysis of crystal structures. *Rev. mod. Phys.*, Minneapolis, 5:169-202, 1933.
9. BLINOWSKI, K. & SOSNOWSKI, J. Parasitic reflection of neutrons in crystal monochromators. *Nucl. Instrum. Methods*, Amsterdam, 10:289-94, 1961.
10. BORST, L. B. & SAILOR, V. L. Neutron measurements with the Brookhaven crystal spectrometer. *Rev. scient. Instrum.*, New York, 24:141-8, 1953.
11. BREIT, G. & WIGNER, E. Capture of slow neutrons. *Phys. Rev.*, Ithaca, N. Y., 49:519-31, 1936.
12. BRILL, T. & LICHTENBERGER, H. V. Neutron cross-section studies with the rotating shutter mechanism. *Phys. Rev.*, Ithaca, N. Y., 72:585-90, 1947.

13. BROCKHOUSE, B. N. Crystal filter to produce pure thermal neutron beams from reactors. *Rev. scient. Instrum.*, New York, 30:136-7, 1959.
14. BROCKER, B. Verwendung von Aluminium, Blei, Germanium und Kupfer als Monochromatorkristalle für Neutronen. *Atomkernenergie*, München, 11:381-4, 1966.
15. CASSELS, J. M. The scattering of neutrons by crystals. *Prog. nucl. Phys.*, London, 1:185-215, 1950.
16. COMPTON, A. H. & ALLISON, S. K. *X-rays in theory and experiment*. 2.ed. Princeton, N. J., Van Nostrand, 1935. p.714.
17. DIETRICH, J. R. Deviations from the Maxwell-Boltzmann distribution. In: ETHERINGTON, H., ed. *Nuclear engineering handbook*. New York, McGraw-Hill, 1958. Sec. 6-2, item 4.4, p.50.
18. DIETRICH, O. W. & ALS-NIELSEN, J. The effect of experimental resolution on crystal reflectivity and secondary extinction in neutron diffraction. *Acta Crystallogr.*, Cambridge, Mass., 18:184-8, 1965.
19. _____ & ALS-NIELSEN, J. *Higher order contamination in crystal monochromatization of neutrons*. Riso, Danish Atomic Energy Commission, Research Establishment Riso, Feb. 1964. (RISO-73).
20. DOMENICI, M. & ZUCCA, T. *Misure spettrali e di temperatura neutronica mediante spettrometro a cristallo*. Saluggia, It., SORIN, Centro Ricerche Nucleari, 1964. (SORIN-44).
21. DUGGAL, V. P. Thermal neutron inelastic scattering effects in a single crystal neutron spectrometer. *Nucl. Sci. Engng*, New York, 6:76-82, 1959.
22. DUNNING, J. R. et alii. Velocity of slow neutron by mechanical velocity selector. *Phys. Rev.*, Ithaca, N. Y., 48:704, 1935.
23. FERMI, E. & MARSHALL, L. Interference phenomena of slow neutrons. *Phys. Rev.*, Ithaca, N. Y., 71:666-77, 1947.
24. _____ et alii. A thermal neutron velocity selector and its application to the measurement of the cross section of boron. *Phys. Rev.*, Ithaca, N. Y., 72:193-6, 1947.
25. FOWLER, I. L. & TUNNICLIFFE, P. R. Boron tri'fluoride proportional counters. *Rev. scient. Instrum.*, New York, 21:734-40, 1950.
26. FULFARO, R. & STASIULEVICIUS, R. *On some effects that influence the neutron resonance measurements*. São Paulo, Instituto de Energia Atômica, out. 1967. (IEA-150).
27. GOULD, F. T. *The neutron spectrometer for subthermal neutrons and the cross sections of gold and metallic hydrides in the 4-11.5 Å range*. New York, Columbia University, Department of Physics, Oct. 1958. (CU-179).
28. _____ et alii. Long wavelength crystal spectrometer and the neutron absorption cross sections of gold and boron. *Nucl. Sci. Engng*, New York, 8:453-66, 1960.
29. HAAS, R. & SHORE, F. J. Second-order contamination in a neutron crystal spectrometer. *Rev. scient. Instrum.*, New York, 30:17-21, 1959.
30. HERDADE, S. B. *Espalhamento de nêutrons lentos na água, polietileno e compostos metálicos*. Campinas, 1969. [Tese de Doutorado].

31. _____ et alii. *Experimental study of a curved slit slow-neutron chopper and time-of-flight spectrometer*. São Paulo, Instituto de Energia Atômica, fev. 1967. (IEA-136).
32. HODGMAN, C. D. et alii, eds. *Handbook of chemistry and physics*. 40.ed. Cleveland, Ohio, Chemical Rubber Publ., 1958.
33. HOLM, M. W. *Debye characteristic temperatures table and bibliography*. Idaho Falls, Phillips Petroleum Co., Atomic Energy Div., Aug. 1957. (IDO-16399).
34. _____. *The reflectivity of NaCl and Be crystals for slow neutrons*. Idaho Falls, Phillips Petroleum Co., Atomic Energy Div., Mar. 1955. (IDO-16115, 1st Rev.).
35. HOLMRYD, S. et alii. A slow neutron chopper time-of-flight spectrometer at the reactor R2 in Sweden. *Nucl. Instrum. Methods*, Amsterdam, 27:61-8, 1964.
36. HUGHES D. J. *Pile neutron research*. Cambridge, Mass., Addison-Wesley, 1953.
37. _____ & SCHWARTZ, R. B. *Neutron cross section*. 2.ed. New York, McGraw-Hill, 1958. (BNL-325).
38. HURST, D. G. et alii. The Chalk River single crystal neutron spectrometer. *Rev. scient. Instrum.*, New York, 21: 705-12, 1950.
39. INSTITUTO de Energia Atômica Reactor 1. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Vienna. *Directory of nuclear reactors, v.3: research, test and experimental reactors*. Vienna, 1960. p.25-6.
40. IYENGAR, P. K. et alii. *Removal of second-order neutrons by oriented single crystals*. Diliman Quezon City, Philippine Atomic Research Center, May 1965. (PAEC-IPA(D)PH-652).
41. JAMES, R. W. *The optical principles of the diffraction of x-rays*. London, G. Bell, 1967.
42. JONES, I. R. *The LPTR single-crystal neutron spectrometer and reactor spectrum measurements*. Livermore, Calif. Univ., Lawrence Radiation Lab., Dec. 1963. (UCRL-7611).
43. KELBER, C. N. Conference on neutron cross section technology. *Nuclear News*, Chicago, 9(5):22-3, 1966.
44. LAMB JR., W. E. Capture of neutrons by atoms in a crystal. *Phys. Rev.*, Ithaca, N. Y., 55:190-7, 1939.
45. LANDON, H. H. Radiation widths in slow neutron resonances. *Phys. Rev.*, Ithaca, N. Y., 100:1414-8, 1955.
46. LESER, J. *Espalhamento de nêutrons lentos no chumbo*. São José dos Campos, 1968. [Dissertação de mestrado].
47. LYNN, J. E. & RAE, E. R. The analysis of neutron spectrometer resonance data. *J. nucl. Energy*, London, 4:418-44, 1957.
48. McREYNOLDS, A. W. Neutron monochromator crystals-Fe₃O₄ and Ge. *Phys. Rev.*, Ithaca, N. Y., 88:958-9, 1952.
49. _____ & ANDERSEN, E. Thermal neutron resonance of Sm. *Phys. Rev.*, Ithaca, N. Y., 93:105-6, 1954.

50. MARSHALL, W. & STUART, R. N. *The scattering of neutrons from polycrystalline materials*. Livermore, Calif Univ., Lawrence Radiation Lab., Apr. 1959. (UCRL-5568).
51. MØLLER, H. B. et alii Neutron spectrometer for producing pure monochromatic beams in the thermal region. *Rev. scient. Instrum.*, New York, 32:654-8, 1961.
52. MOORE, J. A. et alii Mechanical neutron filter for subthermal neutrons (Abstract). *Bull. Am. phys. Soc.*, Ithaca, N. Y., 4:245, 1959
53. O'CONNOR, D. A. & SOSNOWSKI, J. Parasitic multiple bragg scattering in the neutron crystal spectrometer *Acta crystallogr.*, Cambridge, Mass., 14:292-7, 1961.
54. PATTENDEN, N. J. & BASTON, A. H. *The construction and operation of a single crystal neutron spectrometer*. Harwell, Berks., Atomic Energy Research Establishment, May 1957. (AERE NP/R 2251).
55. PENTEADO, A. C. & SOUZA SANTOS, M. D. Operational experience and utilization of the Brazilian 5 MW swimming-pool reactor. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Vienna. *Programming and utilization of research reactors: proceedings of a symposium held in Vienna, October 16-21, 1961*. London, Academic Press, 1962. v.2, p.397-408.
56. PLACZEK, G. Incoherent neutron scattering by polycrystals. *Phys. Rev.*, Ithaca, N. Y., 93:895-6, 1954.
57. _____ et alii. Effect of short wavelength interference on neutron scattering by dense systems of heavy nuclei. *Phys. Rev.*, Ithaca, N. Y., 82:392-403, 1951.
58. POPOVICI, M. & GELBERG, D. On optical properties of the neutron crystal spectrometers. *Nucl. Instrum. Methods*, Amsterdam, 40:77-83, 1966.
59. _____ et alii. *Efficiency of neutron crystal monochromators*. Bucharest, Institute for Atomic Physics, 1968. (FN-34).
60. RINGO, G. R. Neutron diffraction and interference In: FLÜGGE, S., Hrsg. *Handbuch der Physik*, Bd. 32: *Strukturforschung*. Berlin, Springer, 1957. p.552-642
61. ROBERTS, J. K. *Heat and thermodynamics*. 5 ed. New York, Interscience, 1960.
62. ROSE, M. E. & SHAPIRO, M. M. Statistical error in absorption experiments. *Phys. Rev.*, Ithaca, N. Y., 74:1853-64, 1948.
63. SAFFORD, G. J. et alii. Precision determination of the slow neutron absorption cross section of B^{10} . *Phys. Rev.*, Ithaca, N. Y., 119:1291-4, 1960.
64. SAILOR, V. L. et alii High resolution crystal spectrometer for neutrons. *Rev. scient. Instrum.*, New York, 27:26-34, 1956.
65. SOUZA SANTOS, T. D. & TOLEDO, P. S. The Brazilian research reactor. In: UNITED NATIONS, Geneva. *Proceedings of the second United Nations international conference on the peaceful uses of atomic energy, held in Geneva, 1 September-13 September 1958*, v.10: *research reactors*. Geneva., 1958. p 259-64,
66. SPENCER, R. R. & SMITH, J. R. Competitive extinction in neutron monochromating crystals. *Nucl. Sci. Engng*, New York, 8:393-9, 1960

67. STASIULEVICIUS, R. & FULFARO, R. Influência e eliminação do efeito da contaminação de nêutrons de 2a. ordem em medidas de transmissão com o espectrômetro de cristal (Resumo). *Ciência e Cultura*, São Paulo, 20(2):130, 1968.
68. STURM, W. J. Measurement of neutron cross sections with a crystal spectrometer. *Phys. Rev.*, Ithaca, N. Y., 71:757-76, 1947.
69. TAYLOR, T. I. & HAVENS JR., W. W. Neutron spectroscopy and neutron interactions in chemical analysis. In: BERL, W. G. *Physical methods in chemical analysis*. New York, Academic Press, 1956. v.3, p.447-621.
70. VINHAS, L. A. et alii. Medida da secção de choque total do ferro policristalino para nêutrons lentos. In: INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA, São Paulo. *Trabalhos apresentados pela Divisão de Física Nuclear na 1a. reunião anual da Sociedade Brasileira de Física: resumos*. São Paulo, out. 1967. (IEA-152). p.83-90.
71. WAJIMA, J. T. et alii. Germanium crystal as a neutron monochrometer and the determination of its higher order contaminations. *J. phys. Soc. Japan*, Tokyo, 15:630-41, 1960.
72. WEINSTOCK, R. Inelastic scattering of slow neutrons. *Phys. Rev.*, Ithaca, N. Y., 65:1-20, 1944.
73. WENZEL, R. G. et alii. Determinação experimental de parâmetros característicos de cristais monocromadores de nêutrons. In: INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA, São Paulo. *Trabalhos apresentados pela Divisão de Física Nuclear na 1a. reunião anual da Sociedade Brasileira de Física: resumos*. São Paulo, out. 1967. (IEA-152). p.9-19.
74. ZACHARIASEN, W. H. *Theory of x-ray diffraction in crystals*. New York, Dover, 1967.
75. ZIMMERMAN, R. L. et alii. Neutron cross sections of Pr, Yb, Lu, Er, Ho, and Tm. *Nucl. Phys.*, Amsterdam, A95:683-93, 1967.
76. ZINN, W. H. Diffraction of neutrons by a single crystal. *Phys. Rev.*, Ithaca, N. Y., 71: 752-7, 1947.

