

ROBERTO FULFARO

*Temperatura equivalente*

55

ESTUDO DAS REFLEXÕES DE ORDENS SUPERIORES EM  
CRISTAIS MONOCROMADORES DE NÊUTRONS

Tese apresentada à Universidade  
Estadual de Campinas para a obten-  
ção do título de "Doutor em Ciên-  
cias".

1970

À Suzana

À Roberta

A meus pais

## AGRADECIMENTOS

Agradeço a tôdas as pessoas que direta ou indiretamente contribuíram quer com seu conhecimento quer com seu incentivo à elaboração desta tese.

Ao Prof. Marcello Damy de Souza Santos, meu orientador na carreira científica, desejo expressar minha gratidão por seu interesse, incentivo e valiosas sugestões.

Ao colega Roberto Stasiulevicius agradeço a valiosa e inestimável colaboração.

Sou grato aos físicos Claudio Rodriguez e Laércio Antonio Vinhas, pelas úteis discussões.

Desejo, também, agradecer às matemáticas Lucia Faria Silva e Odette Guedes pelo valioso auxílio que me prestaram ao elaborarem os programas para o computador do I.E.A..

Agradeço a cooperação da Srta. Halina Bilokon no processamento dos dados experimentais e na confecção dos desenhos.

Cumpre-me, ainda, salientar o auxílio prestado pela Sra. Ana Cecília G. Forster na fase de edição do trabalho; e também à Sra. Marly P. Hillkner e Srta. Neide Maria J. Lima pelos trabalhos de datilografia. A Fúlvio Frossati agradeço pela confecção da capa.

Finalmente, manifesto meu reconhecimento ao Prof. Rômulo Ribeiro Pieroni, Diretor do IEA, pelas facilidades oferecidas para o desenvolvimento dos trabalhos experimentais e para a edição desta tese.

Roberto Fulfaro

## ÍNDICE

<b>CAPÍTULO I - INTRODUÇÃO</b>	<b>1</b>
<b>CAPÍTULO II - ARRANJO EXPERIMENTAL E MÉTODO DE MEDIDA</b>	
2.1. Arranjo Experimental	9
2.1.1. Descrição do Espectrômetro	10
2.1.2. Cristais Monocromadores	12
2.1.3. Colimação do Feixe e Resolução	14
2.1.4. Detector de Nêutrons e Monitor do Feixe	16
2.2. Medida da Secção de Choque Total	19
2.2.1. Características e Preparação de Amostras	20
2.2.2. Procedimento Experimental e Processamento dos Dados	23
<b>CAPÍTULO III - CONSIDERAÇÕES TEÓRICAS</b>	
3.1. Introdução	26
3.1.1. Cristais Perfeitos	28
3.1.2. Cristais Mosaicos	29
3.2. Feixe de Nêutrons Paralelo e Monoenergético	32
3.2.1. Potência do Feixe Incidente e Difractado no <u>Cris</u> <u>tal</u>	32
3.2.2. Coeficiente de Absorção Linear	35
3.2.3. Refletividade Integrada para Cristal que Sofre Rotação em Torno de um Feixe Paralelo e Monoener <u>g</u> <u>ético</u>	41
3.3. Feixe de Nêutrons Colimado e Polienergético	43
3.3.1. Efeito da Colimação Finita	43
3.3.2. Intensidade como Função da Refletividade	46
3.4. Contaminação de Ordem Superior	50

3.4.1.	Contaminação de Ordem Superior em Medidas de Secção de Choque por Transmissão	51
3.4.2.	Cálculo das Frações de Intensidades de Ordem Superior na Intensidade Refletida pelo Cristal	53
3.5.	Reflexões Parasitas	55
<b>CAPÍTULO IV - RESULTADOS EXPERIMENTAIS</b>		
4.1.	Medidas em Energias Abaixo do Pico do Espectro Térmico	57
4.1.1.	Curva de "Rocking"	58
4.1.2.	Medida da Contagem por Unidade de Tempo e Efeito das Reflexões Parasitas	60
4.1.3.	Determinação das Intensidades de Ordem Superior e das Frações $f_n$	62
4.1.4.	Distribuição Espectral dos Nêutrons Emergentes do Reator	67
4.1.5.	Medida da Secção de Choque Total do Ouro	70
4.1.6.	Filtros de Quartzo	76
4.2.	Medidas em Energias Acima do Pico do Espectro Térmico	79
4.2.1.	Introdução	79
4.2.2.	Curva da Ressonância Padrão	80
4.2.3.	Alargamento Doppler	82
4.2.4.	Efeito da Resolução Instrumental	85
4.2.5.	Contaminação de Ordem Superior	87
4.2.6.	Filtro de Telúrio	92
<b>CAPÍTULO V - CONCLUSÕES GERAIS</b>		97
<b>APÊNDICE A</b>		102
<b>APÊNDICE B</b>		106
<b>APÊNDICE C</b>		111
<b>BIBLIOGRAFIA</b>		113

## CAPÍTULO I - INTRODUÇÃO

O estudo da interação de neutrons 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 neutrons térmicos aqueles com energia inferior a 1 eV, ou seja, de comprimento de onda superior a  $0.3\text{\AA}$ .

As mais importantes fontes de neutrons térmicos são os reatores nucleares, nos quais estes neutrons 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 (Hu53), abrangendo um intervalo de energia de  $10^{-4}$  eV a 1 eV.

De uma maneira geral, esses neutrons 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 (Ke66).

Os neutrons 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 neutrons 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 neutrons térmicos tem sido muito utilizados, através da difração, para a determinação de estruturas atômicas (Ba62).

Muitos outros efeitos também podem ser estudados com o auxílio dos neutrons térmicos, tais como: interações magnéticas, espalhamento inelástico em sólidos e líquidos, etc. Nêstes diversos tipos de experiências possíveis, a utilização dos neutrons térmicos, produzidos por um reator nuclear, exige em geral o emprêgo de espectrômetros para selecionar ou analisar os neutrons 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 vôo. O assunto desta tese é referente ao primeiro tipo de técnica -- mencionado, referências quanto ao segundo tipo são fartamente -- encontradas na literatura (Du35) (Br47) (Fe47) (He67).

Vários autores se ocuparam em comparar as vantagens entre os espectrômetros de cristal e os de tempo de vôo (Go58) (Pa57), porém, entre os pontos que favorecem os do primeiro tipo, além da ótima estabilidade de calibração e boa resolução (Go58), po-

de-se apontar a vantagem de ter um feixe contínuo e intenso de neutrons 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 neutrons refletido pelo cristal.

O princípio de operação do espectrômetro de cristal utiliza a difração de neutrons por um monocristal, que por sua vez é governada pela chamada relação de Bragg (Ba62). As contaminações de ordens superiores são inerentes aos processos de difração que produzem as reflexões de Bragg. Quando um feixe colimado de neutrons polienergéticos incide sobre um conjunto de planos cristalinos paralelos, de distância interplanar  $d$ , num ângulo de incidência  $\theta$ , só serão refletidos os neutrons de comprimento de onda, que satisfazem a relação:

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

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  $2\theta$  com a direção do feixe incidente.

Da equação de Bragg (eq.1.1), pode-se observar que o comprimento de onda desejado  $\lambda$ , 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 neutrons refletidos é constituído por neutrons 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 neutrons incidentes no cristal e da refletividade dos planos cristalinos para êsses comprimentos de onda.

Se o espectro de neutrons incidente contém mais neutrons 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  $1 \text{ \AA}$ ; se o cristal é colocado em posição angular para a reflexão de neutrons de comprimento de onda de primeira ordem  $\lambda = 2\text{\AA}$ , então  $\lambda/2 = 1\text{\AA}$ , e nêsse 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  $0.3\text{\AA}$  a  $1.2\text{\AA}$ . Este fato é constatado pela medida da curva padrão de seção de choque total do ouro, onde a concordância dos pontos experimentais com a curva faz com que a contaminação possa ser -- considerada desprezível, nêsse intervalo de comprimentos de onda (St68). Contudo, essa aproximação não pode ser feita no caso de medida de uma ressonância nuclear nessa região, pois nêsse caso uma pequena contaminação de ordem superior, influencia bas

tante a obtenção dos dados experimentais (Ha59) (Fu67).

O principal objetivo d'êste 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 interêsse 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 1eV; e uma vez que o espectrômetro de cristal possui a propriedade de efetuar medidas em cada energia, individualmente, êsse instrumento é de grande utilidade na obtenção dos dados experimentais da secção de choque em função da energia do neutron.

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 (Ha59) (Be64).
- b) a seleção de cristais monocromadores adequados, para os quais uma ou mais reflexões de ordem superior são proibidas pelo fator de estrutura (Fe47-a)(Mc52).
- c) o uso de filtros de ressonância para atenuar os neutrons numa energia específica (Fe47-a)
- d) o uso de filtros cristalinos para atenuar os neutrons de energias mais altas (Mc54)(Bj61).
- e) o uso de um seletor mecânico de velocidades de modo a deixar passar somente a primeira ordem (Mo59)(Go58).

Êste último método já foi anteriormente empregado em medi-

das de secção de choque total, num programa de pesquisas com -- terras raras (Zi67), que utilizava o espectrômetro de cristal acoplado a um seletor mecânico de velocidades (Bi64). 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 neutrons -- 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 neutron, foi possível separarar as contribuições devidas ao espalhamento e absorção nucleares e ao espalhamento paramagnético. Todos êsses trabalhos, sôbre 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

co 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) a d) em combinação, con-- seguiu-se 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 ordem 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 ti-- po, G e (111), oferecem excelentes possibilidades para a mono-- cromatização de neutrons térmicos, pois o fator de estrutura de segunda ordem é zero para as reflexões (111) do cristal (Mc52) (Wa60). 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 neutron, este material utilizado como fil-- tro 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 supe-- rior na intensidade do feixe refletido; e estas frações, por -- sua vez, são obtidas através do cálculo da refletividade do cris

tal para as várias ordens de reflexão, em função da energia do neutron.

Medidas da 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 ( $\sim 3\text{\AA}$ ).

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 neutrons usada nessa pesquisa foi o reator IEA-R1 do Instituto de Energia Atômica de São Paulo (DN60) (So58) (Pe62). 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  $2 \times 10^{13}$  - neutrons/cm<sup>2</sup>. segundo, no centro do carôço.

O espectrômetro de cristal para neutrons, 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 experi-

mental pode ser visto na fig.1

Após atravessar o primeiro colimador, situado no canal de irradiação, o feixe de neutrons emergentes incide sobre um monocristal colocado no centro da mesa do espectrômetro. O feixe de neutrons 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 ( $\text{BF}_3$ ), situado na extremidade do braço do aparelho. A distância que os neutrons percorrem do carvão até o detector é de 4.60 m.

As diferentes energias dos neutrons 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  $\theta$ , o ângulo do braço é  $2\theta$ , 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 àquêles descritos na literatura (Hu50) (St47) (Zi47) (Bo53). 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.

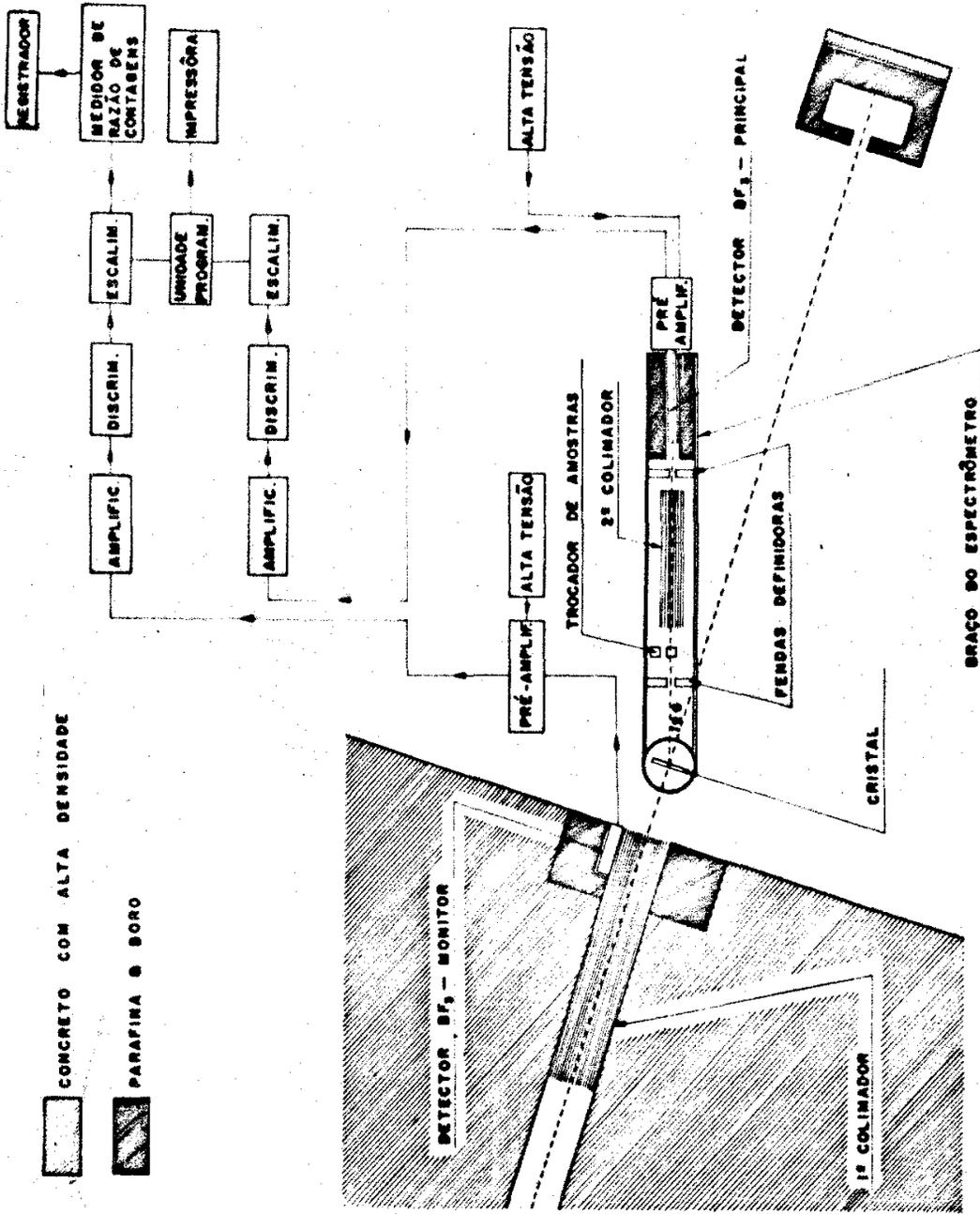


FIGURA 1 - Diagrama esquemático do espectrômetro de cristal.

A blindagem do detector está apoiada na extremidade do braço e é constituída de um cilindro - de 20 cm de diâmetro e 71cm de comprimento - de parafina e ácido bórico. O braço possui --- 1.20 m de comprimento e, além da blindagem do  $\text{BF}_3$  e do segundo colimador, suporta os definidores do feixe incidente na amostra, construídos de uma mistura de araldite e carbeto de boro que é um material altamente absorvedor de neutrons.

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 neutrons rápidos e raios  $\gamma$ , 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 (111) - tem a forma de um disco com 7.62 cm de diâmetro e 1.51 cm de espessura. É orientado com os planos (111) paralelos a face e monocromatiza neutrons por reflexão nas faces. O Ge possui estrutura cúbica de face centrada, do tipo diamante, com constante da rede  $a = 5.647 \text{ \AA} (\text{Ha58})$  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 neutrons por transmissão, isto é, os planos (111) utilizados formam um ângulo de  $20^\circ$  com as faces menores ( $3'' \times 1/2''$ ). O Al possui estrutura cúbica de face centrada com a constante de 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 neutrons 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  $\lambda$ . 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, semelhan-

te ao descrito acima, foi utilizado como amostra - na medida - da secção de choque total do cristal (a ser visto no ítem 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 neutrons 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 neutron. 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 da boa determinação do zero pode ser feita considerando o acôrdo dos pontos experimentais na medida da ressonância conhecida do iridio (fig.21).

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

Portanto,

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

Para uma dada energia e um conjunto de planos do cristal, a re-

solução 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 (Fu67) de acordo com a aproximação feita por Sailor (Sa 56).

O efeito da divergência angular vertical do feixe na resolução em energia é pequeno e desprezível (Co35). 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 100cm de comprimento, 0.575cm de diâmetro interno e paredes com espessura 0.11cm. 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 42cm de comprimento colocadas, igualmente espaçadas uma da outra, a uma distância de 0.18cm; 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 item 3.2.2). Contudo, na prática, os cristais monocromadores de neutrons 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 (Po66) mostram que quando as divergências angulares  $\alpha_1$  e  $\alpha_2$  dos colimadores são comparáveis, a resolução calcu-

lada, 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 nêsse 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 NEUTRONS E MONITOR DO FEIXE

O feixe de neutrons difratados pelo cristal é detectado por um contador proporcional a gás  $\text{BF}_3$ , enriquecido a 96% no isótopo  $\text{B}^{10}$ , a uma pressão de 60cm 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 fôlha de cadmio, de 1mm 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 (20cm dia. x 71cm compr.) com 1mm de espessura, contendo parafina e ácido bórico. Esse cilindro é apoiado sôbre 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 neutrons com direções outras do que a do feixe de neutrons 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  $\text{BF}_3$  de 1/2" de diâmetro foi utilizado como monitor. Este detector foi envolvido por uma

fôlha de cádmio, com uma abertura lateral, e colocado próximo à saída do primeiro colimador e em posição de medir os neutrons 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  $2\mu$  seg. O diagrama de bloco do equipamento eletrônico usado para a detecção dos neutrons, pode ser visto na fig. 1.

#### EFICIÊNCIA DO DETECTOR PRINCIPAL

Para um feixe de neutrons incidentes axialmente sobre um detector de  $\text{BF}_3$ , à alta pressão e enriquecido, a eficiência é dada por : (Fo50)

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

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

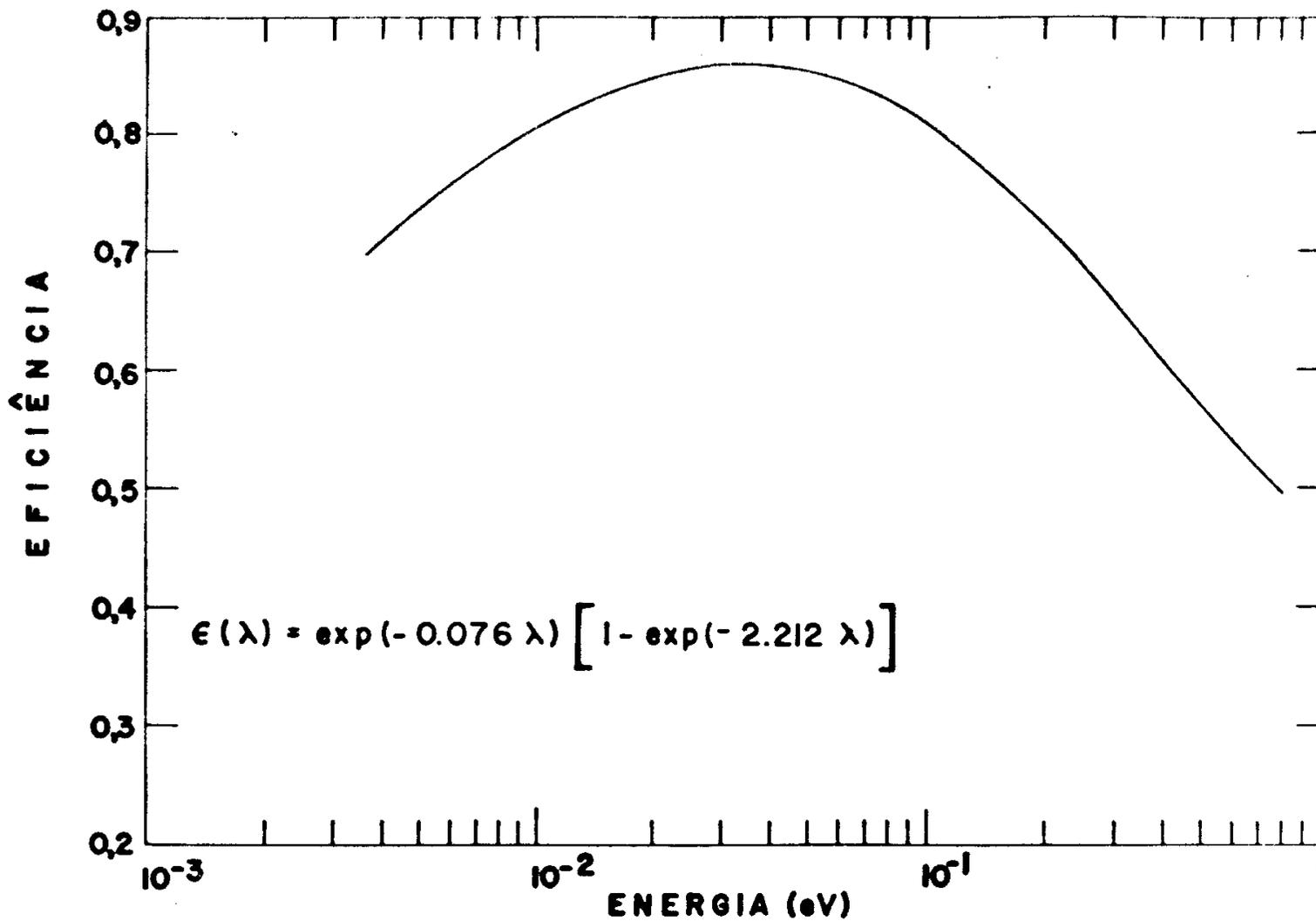


FIGURA 2 - Eficiência do detector BF<sub>3</sub>.

átomos de  $B^{10}$  por  $cm^3$ ,  $\sigma_2$  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. Nêsse caso,  $n_1\sigma_1t_1$ , é desprezível comparado com  $n_2\sigma_2t_2$ .

Usando o valor de 3838 barns para  $\sigma_2$  em 0.0253 eV (Sa60), a eficiência do detector como uma função da energia é dada por:

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

Um gráfico da eficiência do detector, calculado pela eq. (2.3) para 0.001 eV a 1.0 eV, é mostrado na fig.2. O efeito do comprimento inativo domina 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:

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

onde  $N$  é o número de átomos/barn da amostra, definido como  $N = n \times 10^{-24}$ ; 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 barn =  $10^{-24} cm^2$ ).

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

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

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 mixe. A transmissão é dada pela razão  $I/I_0$ , e com as eqs. (2.4) e (2.5) determina-se  $\sigma_t$ . Este método para a determinação da secção de choque total é denominado "método de 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  $\sigma_t$ , 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 forneci

das 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  $I_0$ .

As caixas porta-amostras foram feitas de alumínio, por que esse material é relativamente transparente aos neutrons térmicos; as transmissões para neutrons 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 0.419g de irídio foi colocada afim de se ter uma transmissão baixa na região de energias - estudada, pois dessa forma minimiza-se o erro estatístico (Ro48). 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 neutrons 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:

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

onde  $\rho$  é a densidade do material em  $\text{g/cm}^3$ ,  $N_0$  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:

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

onde  $N$  é o número de átomos/barn do elemento de interesse,  $N_1$  o número de átomos/barn das impurezas e  $\sigma_1$  as secções de choque das impurezas.

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

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

onde  $k$  é o número de impurezas. Considerando as densidades tabeladas (Ha58) 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 (Ha58) e igual a 9.5 barns e para a prata (Ta56) é dado pela expressão  $\sigma_{Ag} = \left[ 9.8E^{-1/2} + 6.4 \right]$  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  $\theta$  do cristal, é o seguinte: coloca-se, no feixe de neutrons 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 neutrons 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  $\lambda$  (ver fig. 11).

A "curva de rocking" para a reflexão (111) do cristal de Ge (que pode ser vista na fig.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 da 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.

$$(2.9) \quad T = \frac{C_a - B_a}{C_o - B_o} = \frac{I}{I_o}$$

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

$$(2.10) \quad \sigma_T = \frac{1}{N} \ln \frac{I_o}{I} = \frac{1}{N} \ln \frac{C_o - B_o}{C_a - B_a}$$

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 (Be64), e somente as flutuações estatísticas nas contagens Co,

Bo, Ca e Ba contribuem para o erro em  $\sigma_T$ .

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  $\sigma_T$ , pelas seguintes expressões:

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

com

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

e

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

Os cálculos da secção de choque total  $\sigma_T$  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 or

dens 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 neutrons; 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 neutrons 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 do 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 neutrons por transmissão, ou seja, quando os neutrons difratados emergem do cristal pelo lado oposto ao de incidência, já foi tratado por diversos autores (Ho55) (Di65) 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  $\delta V$  do cristal, com a condição de  $\delta V$  ser tão pequeno, que difracte somente uma pequena percentagem do fluxo de nêutrons incidente ( $I$  nêutrons/cm<sup>2</sup>seg) (B29). Dêste modo pode ser mostrado pela teoria da difração (Za67) que, girando o cristal em torno da posição de Bragg, mantendo o detector fixo, a reflexão integrada devido ao elemento de volume  $\delta V$  é dada por  $IQ\delta V$  nêutrons/seg.

A quantidade cristalográfica  $Q$  deduzida por Zachariasen --- (Za67) é dada por:

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

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

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

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 justificando por vários autores (B133) (We44), leva em conta as vibrações térmicas dos átomos (Ja58). A expressão analítica para  $M$  usada nos cálculos é:

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

com

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

onde  $\theta$  é a temperatura de Debye do cristal,  $h$  e  $k$  são as cons

tantes 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 (B133).

Considerando todo volume de um cristal perfeito, o feixe de neutrons, 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 neutrons, que estavam incidindo com a energia correta para a difração, foram removidos antes de alcançá-las (fig.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 neutrons 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 de arco (Ba48), enquanto que a desorientação angular dos blocos mosaicos adjacentes é medida em minutos de arco. Consequentemente, o feixe penetra profundamente em um --- cristal mosaico antes de alcançar blocos mosaicos com orienta-- ção idêntica aquêles 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 cris- tal, êstes blocos são irradiados diferentemente, pois a intensi- dade é diminuída do primeiro para o segundo bloco, devido à di- fração no primeiro. A atenuação do feixe, devido ao espalhamento de Bragg por blocos mosaicos idênticamente orientados, é conhe- cida por "extinção secundária" (fig.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.

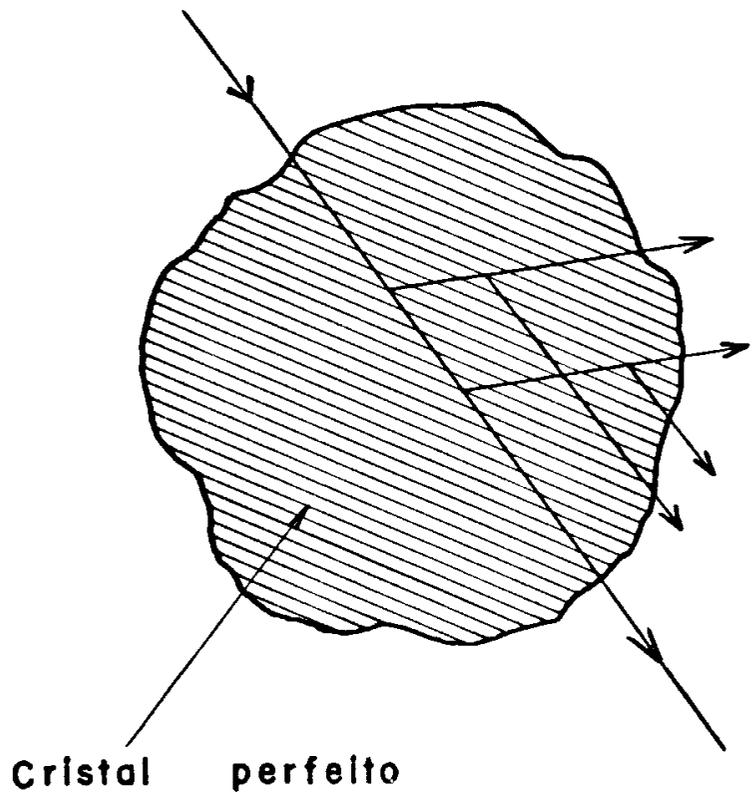


FIGURA 3 - Extinção primária, causando atenuação no feixe em um cristal perfeito ou em um bloco mosaico isolado.

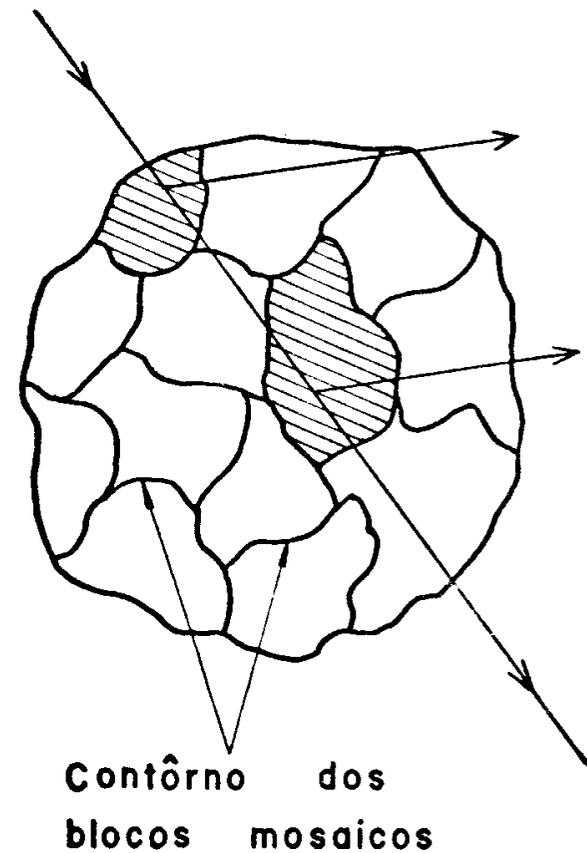


FIGURA 4- Extinção secundária, causando atenuação por reflexão em dois blocos mosaicos com a mesma orientação.

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 monocromadores de neutrons 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.

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

onde  $\eta = \beta/2\sqrt{2 \ln 2}$ , onde  $\beta$  é chamado "largura de 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  $\Delta$  e  $\Delta + d\Delta$ , em relação a normal à superfície do cristal. A validade dessa hipótese é discutida por James (Ja58).

### 3.2 FEIXE DE NEUTRONS PARALELO E MONOENERGÉTICO

#### 3.2.1 POTÊNCIA DO FEIXE INCIDENTE E DIFRATADO NO CRISTAL

Os blocos mosaicos, possuindo orientação ao acaso, espalham neutrons independentemente um do outro, não havendo relações de fase definidas entre os espalhamentos de neutrons 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 (Di65), 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 Zachariassen (Za67) e James (Ja58) para raios X e depois reestudadas por Bacon e Lowde (Ba48) no caso de difração com neutrons.

Consideremos o caso de reflexão simétrica em um cristal mosaico em forma de uma placa de espessura  $t_0$  (Fig.5). Seja um feixe paralelo de neutrons monoenergéticos, incidentes sobre os planos refletos paralelos à face do cristal; definindo  $\gamma_0$  e  $\gamma_H$  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  $\gamma_0 \equiv \gamma_H$ .

Através de uma camada de espessura  $dt$  do cristal, o caminho percorrido pelos feixes incidente e difratado é  $dt/\gamma_0$  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 (Di65):

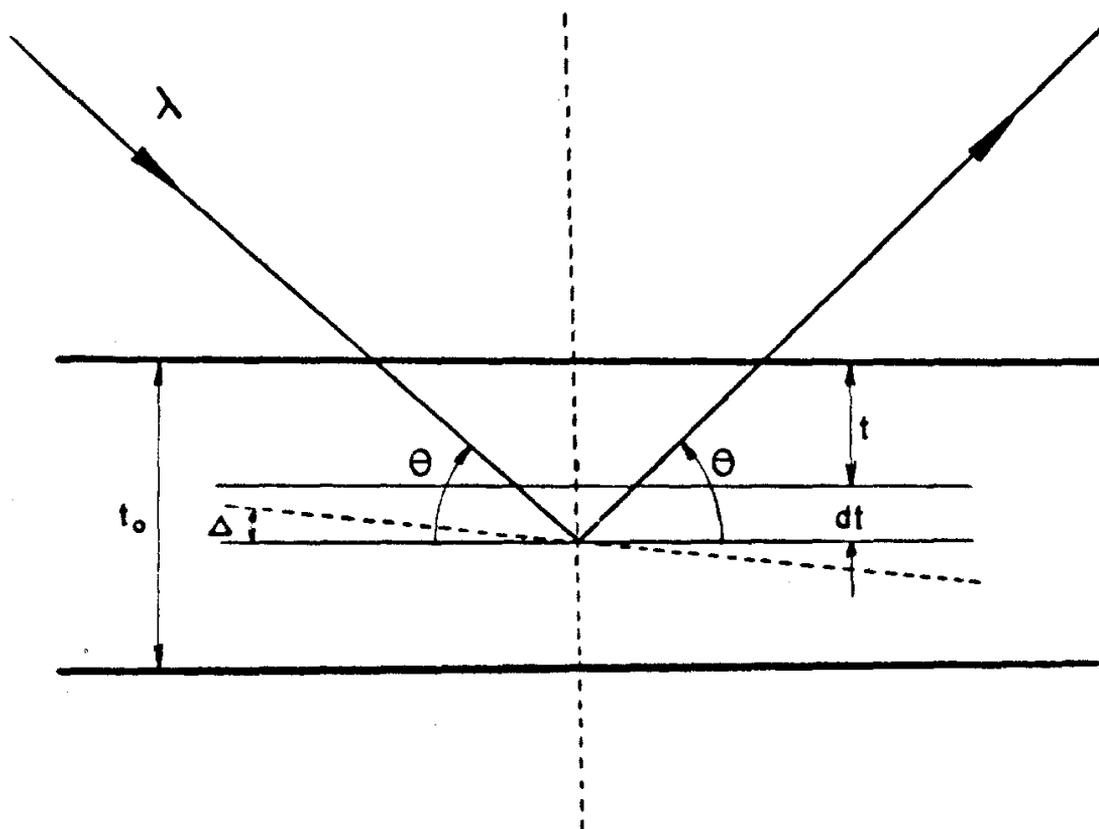


FIGURA 5 - Reflexão simétrica por uma placa plana  
 $\gamma_o = \gamma_H = \text{sen } \theta$ ; onde  $\Delta$  é a orientação  
 média dos planos cristalinos.

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

Se o coeficiente de absorção linear é  $\mu$ , a variação de  $P_o(\Delta, t)$  e de  $P_H(\Delta, t)$  ao transpor uma camada  $dt$  na profundidade  $t$ , para o caso de reflexão simétrica, será dada pelas equações (Za67):

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

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

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.

### 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:

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

onde  $I_o$  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 - tôdas as outras interações - com exceção do espalhamento de - - Bragg - que poderiam retirar neutrons do feixe incidente ou difratado (Jo63). Portanto, o  $\mu$  é a secção de choque macroscópica

total do cristal a menos do espalhamento coerente elástico.

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

O termo  $\sum$  absorção é igual a  $N\sigma_a$ , onde  $N$  é o número de --- átomos/cm<sup>3</sup> do cristal e  $\sigma_a$  é a secção de choque microscópica de captura e tem dependência proporcional a  $E^{-1/2}$ , em relação à -- energia do neutron incidente.

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

E	inco elast.	- incoerente elástica
E	coer. inel.	- coerente inelástica
E	inc. inel.	- incoerente inelástica.

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

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

Embora ambas:  $E_{elast}^{inco}$  e  $E_{inel}^{inco}$  sejam fortemente dependen tes da energia, sua soma é relativamente constante (Ma59); e sô bre o intervalo de energia de 0.001 a 1.0 e V, uma aproximação razoável pode ser feita (Vi67)(Le68):

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

onde  $\sigma_i$  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  $\sigma_i$  é geralmente muito pequena para a maioria dos elementos que formam os cristais monocromadores de neutrons (Ri57), 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 ( $\sim 0.001$  eV). No extremo de energias mais altas ( $\sim 1.0$  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" (P151)(P154), que mostra boa concordância com resultados experimentais no intervalo de energia de 0.001 a 1.0 eV (Vi67), desde que a temperatura de Debye seja escolhida convenientemente (Le68). Nesta aproximação, aproveita-se a semelhança de comportamento, em relação a  $\lambda$ , da secção de choque coerente inelástica e da incoerente inelástica (Vi67) e substitui-se o  $\sigma_i$  por  $\sigma_c$  para calcular o  $E_{inel}^{coer}$ , onde  $\sigma_c$  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.

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

A eq. (3.13) pode ser escrita na forma

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

Usando a eq.(3.12) e a expressão para  $E_{elast}^{inco}$  já adotada em vários trabalhos (Ca50)(Vi67)(Le68), obtém-se:

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

onde

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

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:

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

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 (Le68). No caso do Ge, existem vários valores tabelados (Ho57) e foi 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. Afóra êsses picos o comportamento da curva é dado pela composição dos outros tipos de secção de choque (Jo63) (Vi67) (Le68). Retomando a eq. (3.17) e dividindo por N, tem-se a equação da secção de choque microscópica total do cristal  $\sigma$ , a menos do espalhamento coerente elástico.

$$(3.18) \quad \sigma = \sigma_a + \sigma_i + \sigma_c \left[ 1 - (1 - e^{-\zeta}) / \zeta \right]$$

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 (fig.6), os quais fo-

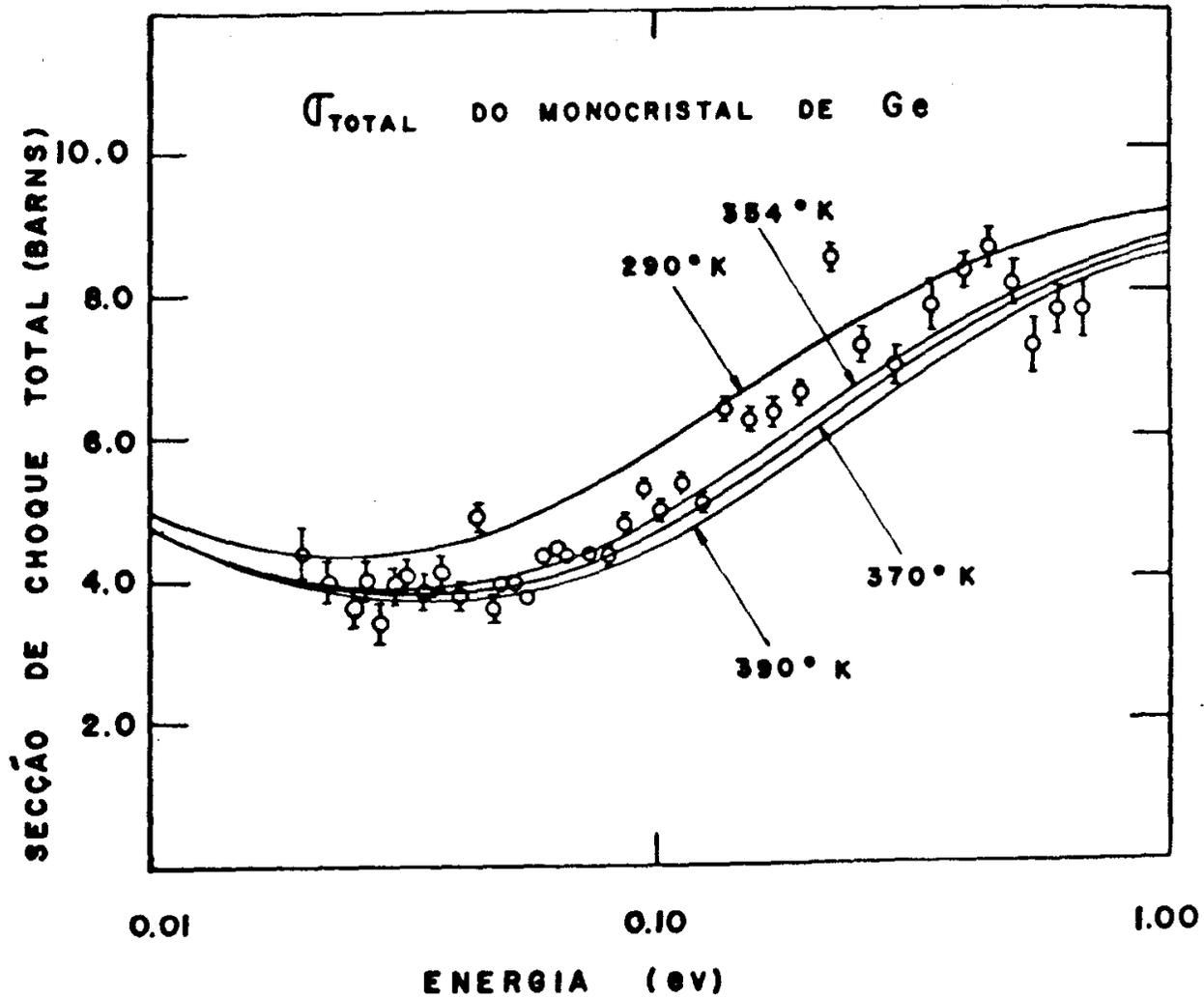


FIGURA 6 - Secção de choque total de um monocristal de germânio; medida por transmissão através do cristal, com o feixe incidindo perpendicularmente à face.

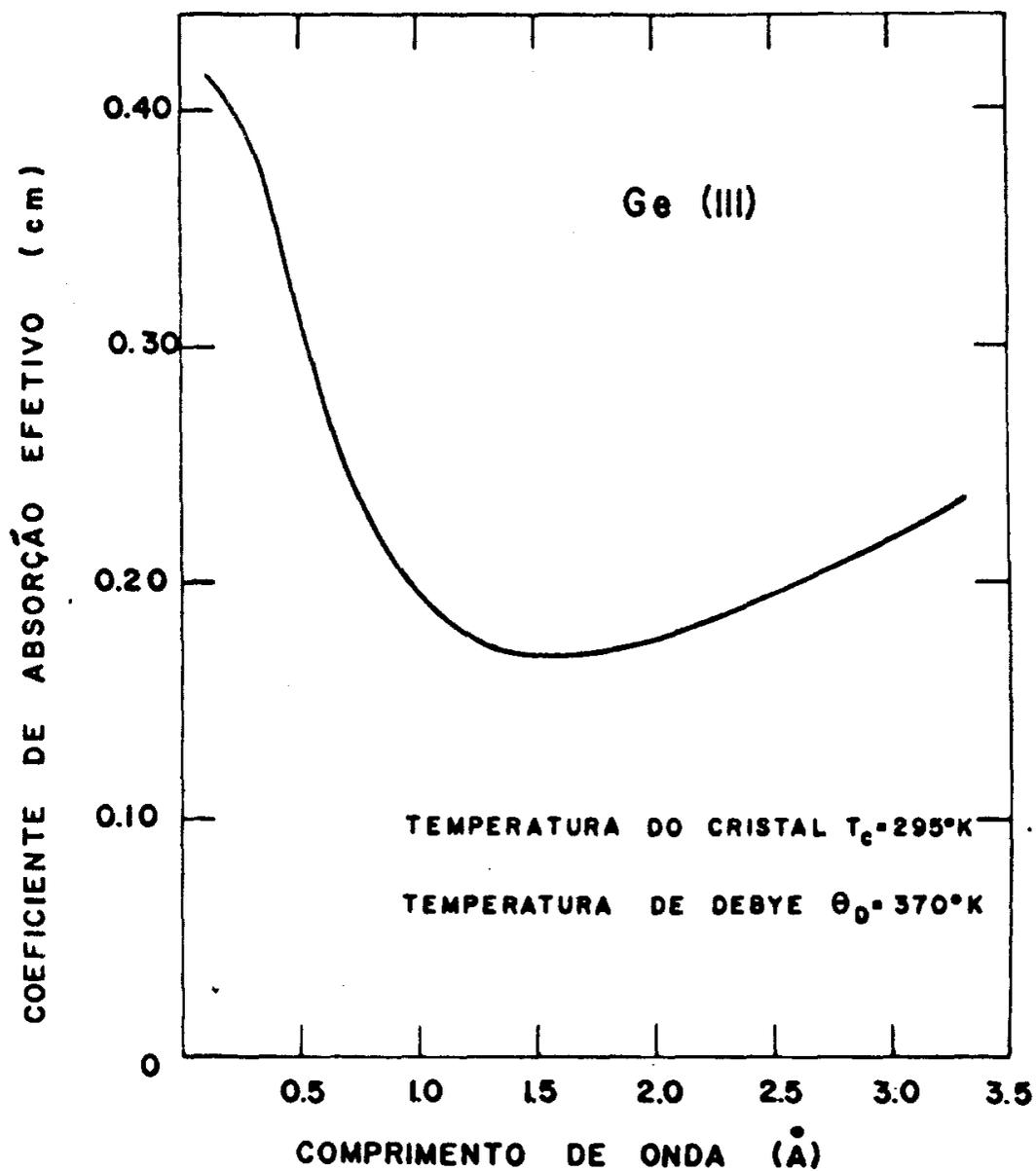


FIGURA 7 - Coeficiente de absorção efetivo do cristal de Ge, na aproximação incoerente de Placzek.

ram medidos pelo procedimento experimental descrito no Cap. II, ou seja pelo, método de transmissão, com o feixe incidido perpendicularmente aos planos (111).

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 fig.7 mostra o valor de  $\mu$  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  $N = 4.44 \times 10^{22}$  átomos/cm<sup>3</sup>. Os valores das secções de choque microscópicas são tabelados (Ri57) e a função  $\Lambda\left(\frac{\Theta}{T}\right)$  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 TÔRNO 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.

$$(3.18) \quad P_0(t) = P_0(0) \quad \text{em} \quad t = 0$$

Obtem-se a segunda condição de contorno considerando que o feixe difratado é produzido dentro da placa cristalina e, por

consequente, deve emergir por uma superfície da placa e anular-se na outra superfície.

$$(3.19) \quad P_H(t) = 0 \quad \text{em} \quad t = t_0$$

para o caso do cristal que monocromatiza neutrons por reflexão.

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

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

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.

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

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

A integral da relação  $P(\theta, \Delta)$ , sôbre todos os valores de  $\Delta$ , é chamada refletividade integrada de um cristal idealmente imperfeito em reflexão e foi definida por Bacon e Lowde (Ba48) como:

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

O  $R^\theta$  dado pela eq.(3.21), corresponde ao caso em que o ângulo de incidência entre o cristal e um feixe monocromático e parale

lo, é variado efetuando um giro do cristal em tórno do feixe; no te-se que para êsse caso não foi considerado o efeito de colimação finita do feixe.

### 3.3 FEIXE DE NEUTRONS 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 neutrons polienergético pro-- veniente do reator, depois de passar pelo primeiro colimador, in-- cide sôbre o cristal mantido fixo no ângulo de Bragg  $\theta_B$  em rela-- ção ao feixe incidente; o feixe refletido pelo cristal passa pe-- lo segundo colimador e atinge o detector também fixo, no ângulo  $2 \theta_B$ .

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

#### 3.3.1 EFEITO DA COLIMAÇÃO FINITA

A fig.8 mostra uma situação em que o feixe de neutrons, pro-- veniente do canal de irradiação, incide sôbre um cristal.

O caminho I indica o feixe de neutrons de comprimento de - onda  $\lambda_B$  (correspondentes ao ângulo de Bragg fixo  $\theta_B$ ) que são difratados por blocos mosaicos com a orientação média. O caminho II indica um feixe refletido por blocos mosaicos deslocados de - um ângulo  $\Delta$  em relação à orientação média; êsses nêutrons possuem comprimento de onda  $\lambda$  (correspondente ao ângulo de Bragg  $\theta$ ). O - ângulo entre I e II, antes da reflexão, é  $\delta$ , e depois da -----

2º COLIMADOR

1º COLIMADOR

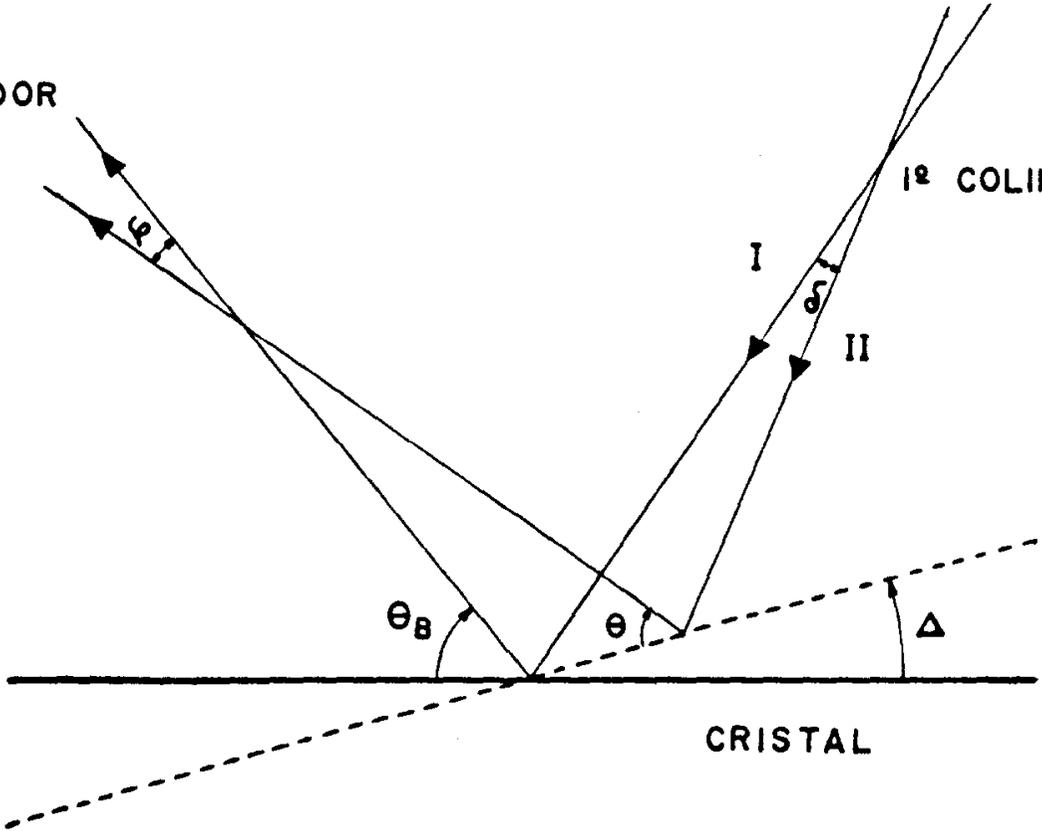


FIGURA 8 - Geometria para o cálculo do efeito da colimação finita .

reflexão,  $\bar{\epsilon}$   $\varphi$ , onde:

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

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 dada por  $I_d(\varphi)$ ; então a função resolução será dada pela integral:

$$(3.23) \quad R(\theta - \theta_B) = \text{cte} \int I_i(\delta) P(\theta, \Delta) I_d(\varphi) d\Delta$$

Esta expressão (3.23) é completamente equivalente às relações deduzidas por Dietrich e Als-Nielsen (Di65).

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 (Sa56), com largura na meia altura igual à divergência angular do colimador. Para o primeiro colimador a função é dada por:

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

e para o segundo colimador

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

com  $\alpha' = \alpha / 2\sqrt{2 \ln 2}$ ; onde  $\delta$  e  $\varphi$  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 (Po68) mostra que basta substituir  $\alpha$  por  $\alpha_e / \sqrt{2}$ , onde ---

$\alpha_e = \sqrt{\alpha_1^2 + \alpha_2^2}$ , 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:

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

Substituindo na eq. (3.23) obtém-se:

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

A integral da eq. (3.27) é chamada refletividade integrada  $R^\theta$ .

### 3.3.2 INTENSIDADE COMO FUNÇÃO DE REFLETIVIDADE

A intensidade depois do segundo colimador para um determinado ângulo de Bragg  $\theta_B$  do cristal,  $I(\theta_B)$ , é obtida multiplicando a eq. (3.27) pela distribuição de comprimentos de onda incidentes  $f(\lambda)$  e integrando sobre  $\theta$ . Devido ao fato do pico de Bragg ser da ordem de minutos (Ba62), 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  $R^\theta$  por  $R^{\theta_B}$ . Nessas condições a intensidade  $I(\theta_B)$  é proporcional à refletividade.

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

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

(3.29)

$$P(\theta, \Delta) = \frac{D e^{-\Delta^2/2n^2}}{(1 + D e^{-\Delta^2/2n^2}) + (1 + 2D e^{-\Delta^2/2n^2})^{1/2} \coth \left[ A(1 + D e^{-\Delta^2/2n^2})^{1/2} \right]}$$

onde  $a = D e^{-\Delta^2/2n^2}$  e  $D = \frac{Q}{\sqrt{2\pi} \eta \mu}$

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

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

Desde que o ângulo  $\theta_B$  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):

(3.31)

$$R^\theta = \int \frac{D e^{-(1/\alpha'^2 + 1/2n^2)\Delta^2} d\Delta}{(1 + D e^{-\Delta^2/2n^2}) + (1 + 2D e^{-\Delta^2/2n^2})^{1/2} \coth \left[ A(1 + D e^{-\Delta^2/2n^2})^{1/2} \right]}$$

O  $R^\theta$  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 REFLETI e está listado 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

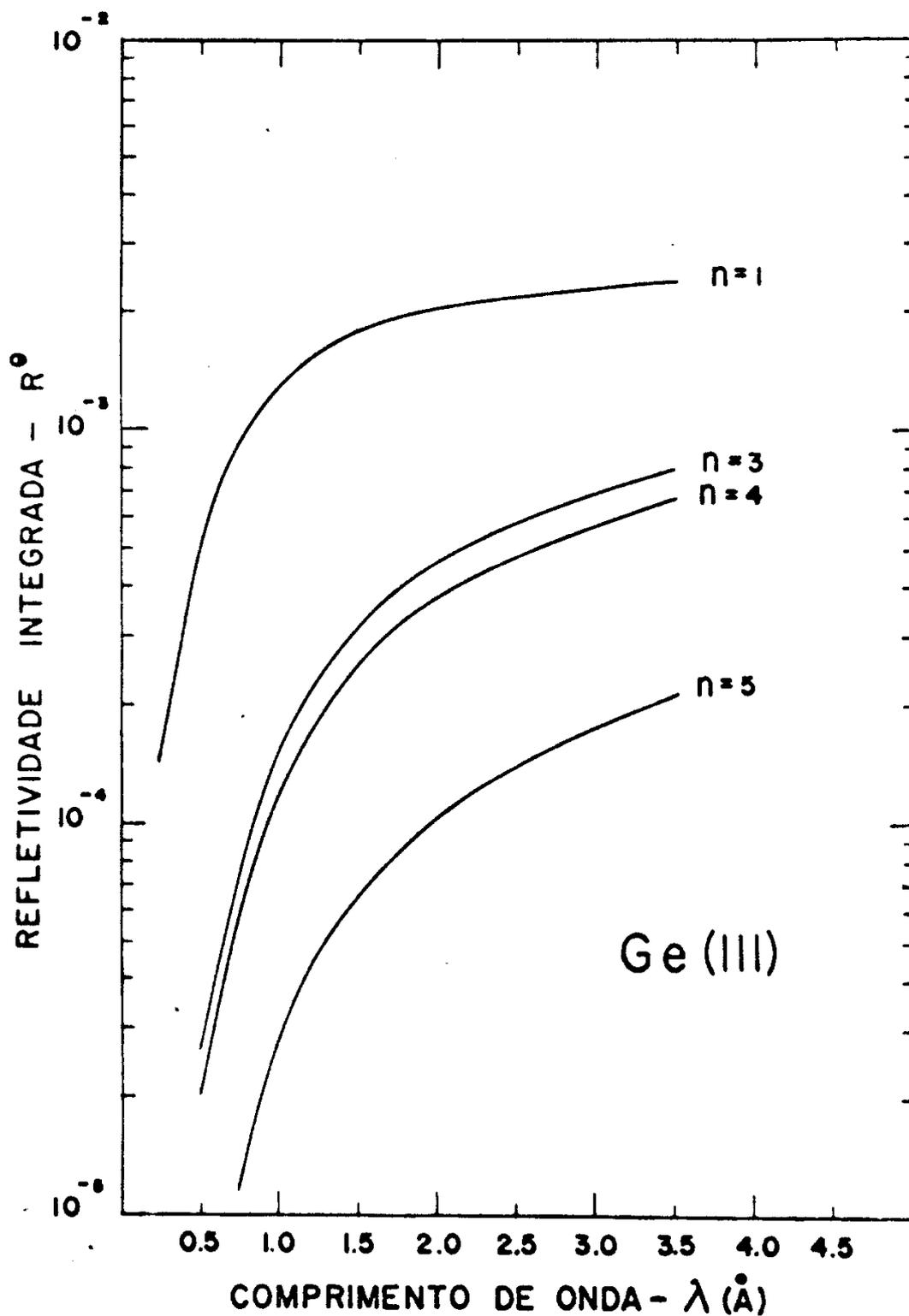


FIGURA 9 - Refletividade integrada dos planos (111) de um cristal de Ge, usado em reflexão simétrica, para os valores de  $n=1,3,4,5$ ; largura de mosaico  $\beta=5.4$  min.,  $t_0=1.51$  cm e  $T=295^\circ\text{K}$ .

angular de colimador. A fig. 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 cúbico de face centrada do tipo diamante, é dado por:  $F^2_{(hkl)} \equiv 0$  para  $(h + k + l) = 4m+2$ ;  $F^2_{(hkl)} \equiv 32 b^2$  para  $(h + k + l) = 4m + 1$ ;  $F^2_{(hkl)} \equiv 64 b^2$  para  $(h + k + l) = 4m$ , (onde  $m = 0, 1, 2, \dots$  etc). No cálculo das curvas da fig.9, foram utilizadas estas regras para o cálculo de  $F^2$  e mais os valores de  $b = 0.84 \times 10^{-22}$  cm (Ba62) e  $N_c = 5.55 \times 10^{22}$  cm<sup>-3</sup>.

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

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

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 (Ba62) a refletividade integrada  $R^\lambda$ , para o caso de cristal fixo em feixe polienergético, como:

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

O  $R^\lambda$  pode ser interpretado como o intervalo dos comprimentos de onda sobre o qual a reflexão é completa. No  $R^\lambda$ , 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 neutrons por unidade de intervalo de comprimento de onda, então o número de neutrons 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  $\lambda$  é dada por:

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

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 (Di64).

### 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 neutrons que satisfazem a equação  $n\lambda = 2d \sin\theta$ , estão em condições de serem refletidos. O comprimento de onda desejado  $\lambda$  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  $\lambda$ . 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:

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

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 fig.7 nota-se que o coeficiente de absorção efetivo tende a discriminar contra neutrons de comprimento de onda menor, em favor daqueles de comprimento de onda maior. Além disso, há os mecanismos de redução de  $R^\theta$  como função de  $n$ , ou seja: o fator  $Q$  dado pela eq.(3.1) é reduzido com  $n^3$  pois é função de  $\lambda^3$  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  $R^\theta$  em  $R^\lambda$ .

#### 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:

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

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

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

Analogamente para a intensidade  $i$ , transmitida pela amostra:

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

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

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

usando a eq.(2.5) do Cap.II, e onde  $\sigma_n$  é a secção de choque no comprimento de onda  $\lambda/n$ .

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

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

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

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:

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

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.

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

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:

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

Das eqs. (3.43) e (3.44) determina-se a secção de choque correta  $\sigma_1$ .

Ou então, utilizando-se uma curva de secção de choque  $\sigma$  -- 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:

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

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

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

onde

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

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

Considerando que o limite superior do intervalo de comprimentos de onda, neste trabalho, é  $3 \text{ \AA}$ , e que na somatória da eq. (3.46) o  $n \geq 2$ , pode-se notar que todos os  $\lambda/n$ , 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  $\lambda/n$  a contagem por unidade de tempo, correspondente 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:

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

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

Das eqs.(3.47) e (3.48) obtém-se

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

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

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

Isto deve ser feito porque, para  $n = 1$ , o  $\lambda$  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  $\lambda$ , é necessária a medida da contagem por unidade de tempo em função de  $\lambda$ , para todo intervalo de comprimentos de onda considerado (0.28 a 3.0 Å). A medida é utilizada em  $\lambda$  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  $\lambda$ , 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 neutrons 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 (Ja58).

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 (Do64), tal como refletividade dos planos parasitas maior do que a do plano - monocromador.

O problema das reflexões parasitas já foi bem estudado --- (B161) (Sp60) (Du59)(OC61), 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 refletores primários (Jo63) (Do64), 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 sequência 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 neutrons com comprimentos de onda  $\lambda/2, \lambda/3$ , etc, no espectro incidente, pode ser maior do que o número de neutrons com comprimento de onda  $\lambda$ .

Afim de diminuir a alta contaminação de ordem superior dessa região, utilizamos um cristal de germânio como monocromador de neutrons, pois o Ge (111) possui a propriedade de ter suas reflexões de segunda ordem proibidas quando utilizado nos planos (111) (visto no Cap.I).

#### 4.1.1 CURVA DE "ROCKING"

Se o braço do espectrômetro fôr 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  $\theta$ ; 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 fig. 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 (Po68), com desvio padrão dado por:

$W' = \sqrt{(\alpha'/2)^2 + \eta^2}$  onde  $\alpha' = \alpha_e / 2\sqrt{2\ln 2}$  e  $\eta = \beta / 2\sqrt{2\ln 2}$ , com  $\alpha_e$  e  $\beta$  já definidos anteriormente.

A largura de mosaico  $\beta$  é determinada a partir da medida da largura  $W$  — que é igual a  $2W' \sqrt{2\ln 2}$  — e do valor de  $\alpha_e = 0.3471^\circ$  — calculado através dos valores de  $\alpha_1$  e  $\alpha_2$  dados no Ítem 2.13, do Cap. II. Da medida da curva de rocking do Ge(111) foi determinado  $\beta = 5.4$  min; sendo êste um dado experimental necessário para o cálculo da refletividade integrada do Ge, pela eq. (3.31).

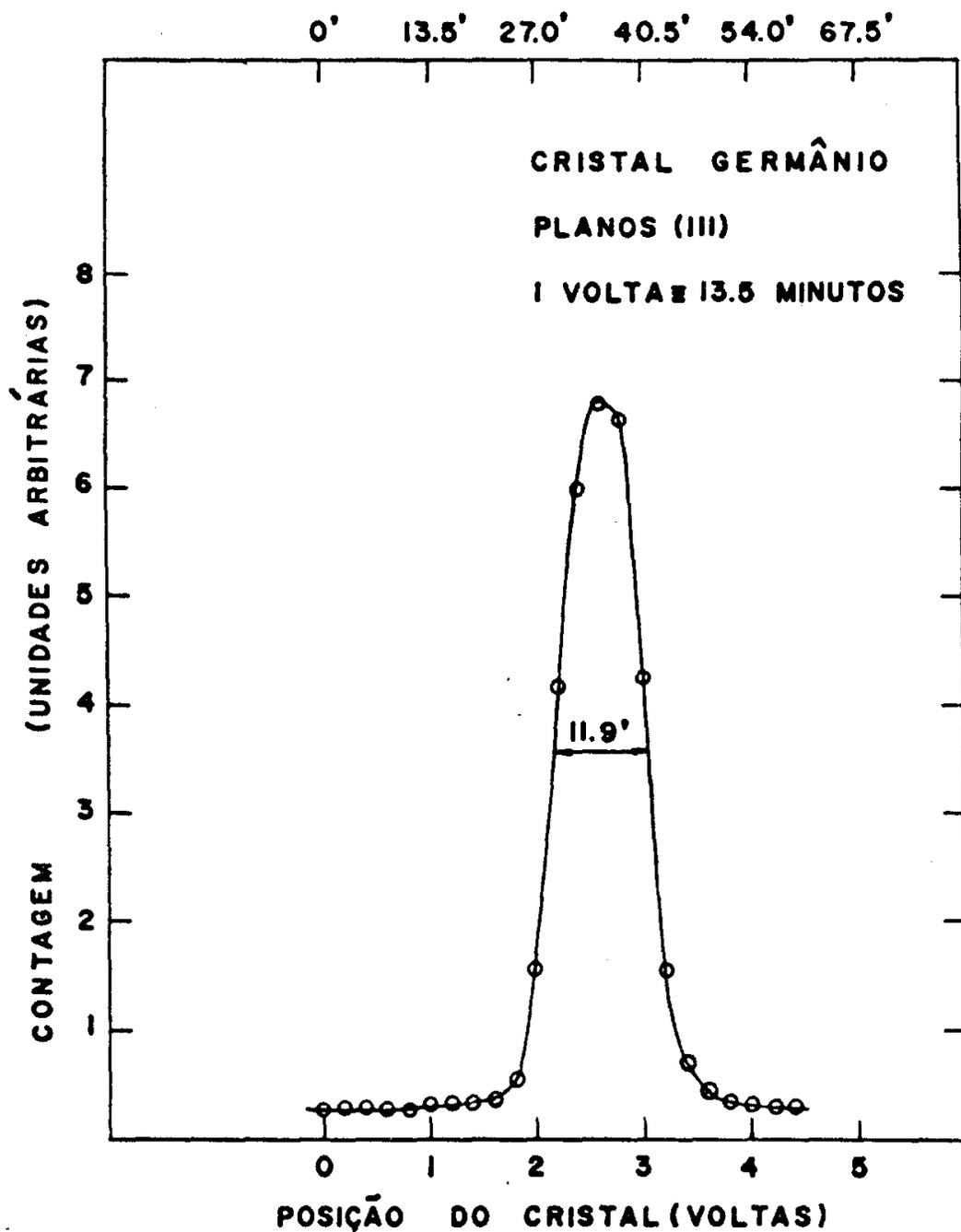


FIGURA 10 - Curva de "rocking" para o cristal de Ge(111); em reflexão simétrica. A contagem no pico é da ordem de  $1.2 \times 10^4$  cont./min.

#### 4.1.2 MEDIDA DA CONTAGEM POR UNIDADE DE TEMPO E EFEITO DAS REFLEXÕES PARASITAS

Na fig.11 podem ser observadas os pontos experimentais da contagem por unidade de tempo, em função do comprimento de onda do neutron, obtidos através da reflexão dos planos (111) 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 po de-se notar os picos invertidos, devido às reflexões parasitas, anteriormente descritas. Da figura é difícil determinar quais - os pontos experimentais no intervalo de  $1.2\text{\AA}$  a  $1.4\text{\AA}$ , que estão livres destas perturbações.

Contudo, como os planos parasitas que produzem as depres-- sões da fig.11, não são paralelos aos planos primários de Bragg (planos (111) 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. Es te fato permite obter pontos experimentais suficientemente li-- vres de reflexões parasitas, de modo que uma curva da taxa de - contagem não perturbada pode ser obtida (Jo63).

Para a determinação de uma sequência 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  $5^\circ$  entre um ângulo  $\omega$  e outro. Em cada posição angular  $\omega$ , foi efetuada uma curva de -- rocking para colocar o cristal em posição de máxima intensidade,

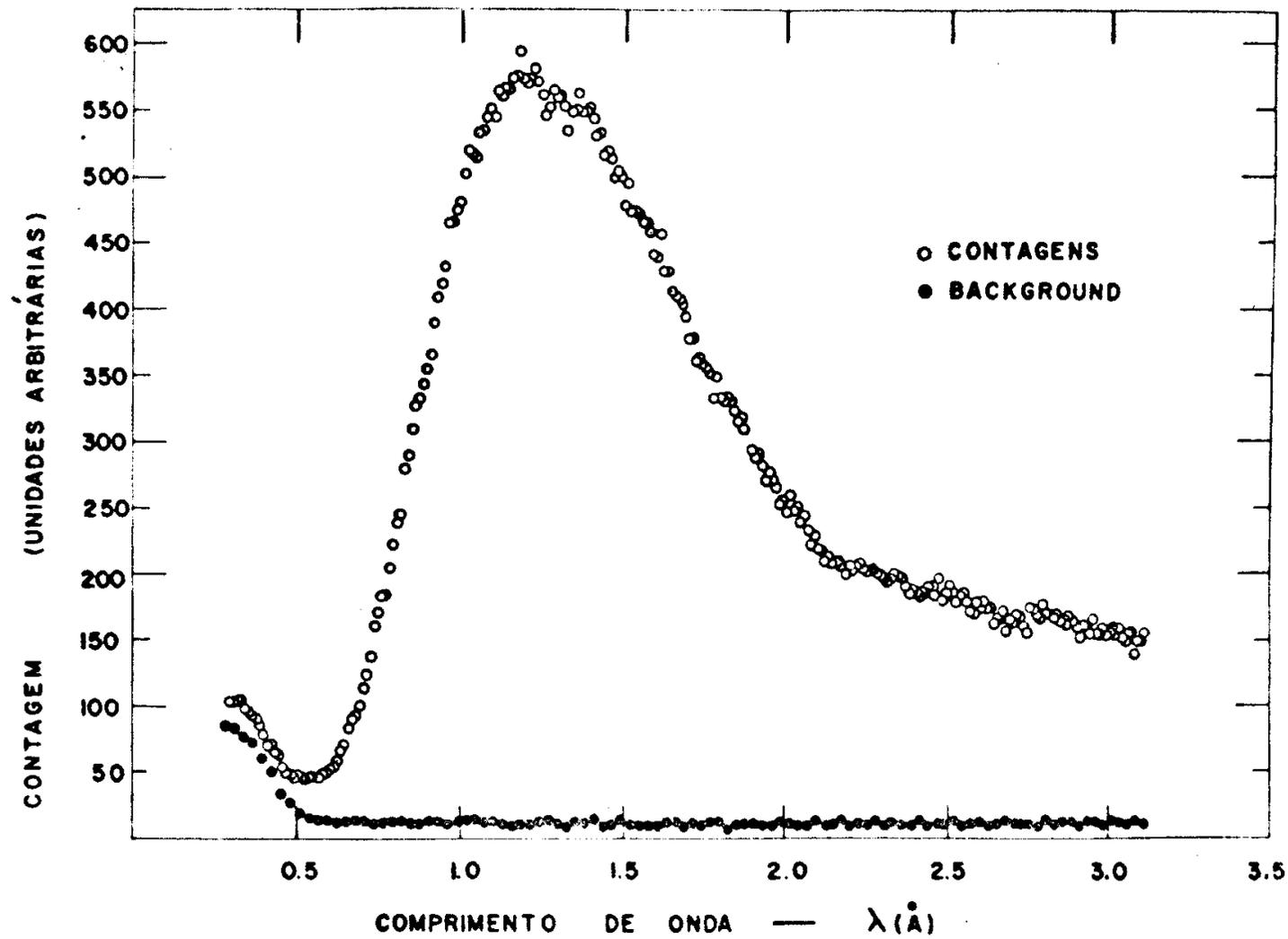


FIGURA 11 - Contagem por unidade de tempo medida com Ge(111) em reflexão; pontos experimentais afetados por reflexões parasitas. Dados não corrigidos para o background.

e nas três curvas a variação da posição dos picos foi menor do que 1 min. de arco.

A fig. 12 mostra os pontos experimentais obtidos para cada posição do ângulo azimutal  $\omega$ , 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 fig. 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 item 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 fig. 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 item 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 ----

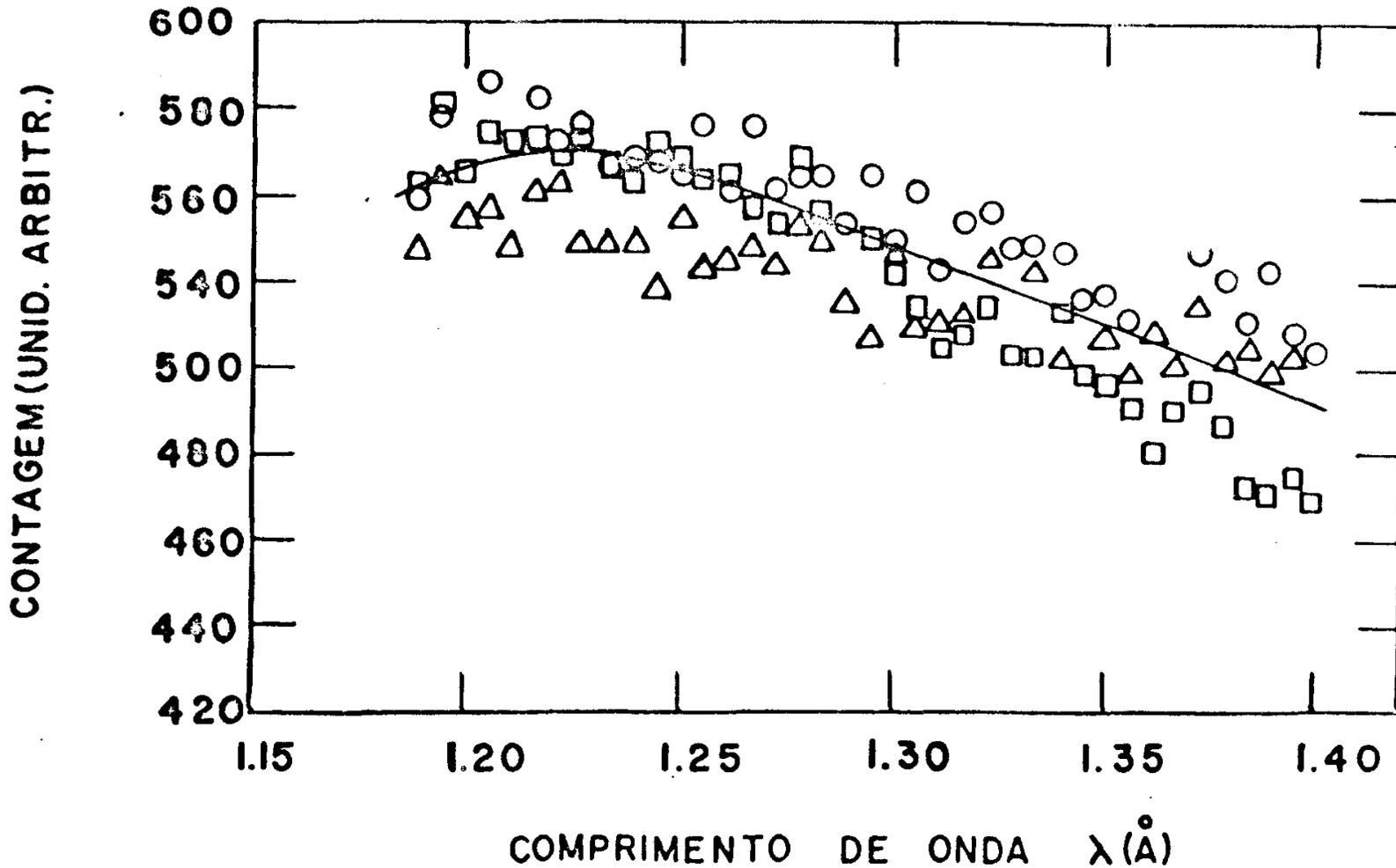


FIGURA 12 -- Detalhe da curva de contagem por unidade de tempo para o Ge(111), medida para três posições diferentes do ângulo azimutal  $\omega$ . Em cada posição angular os pontos experimentais são representados por um tipo de símbolo.

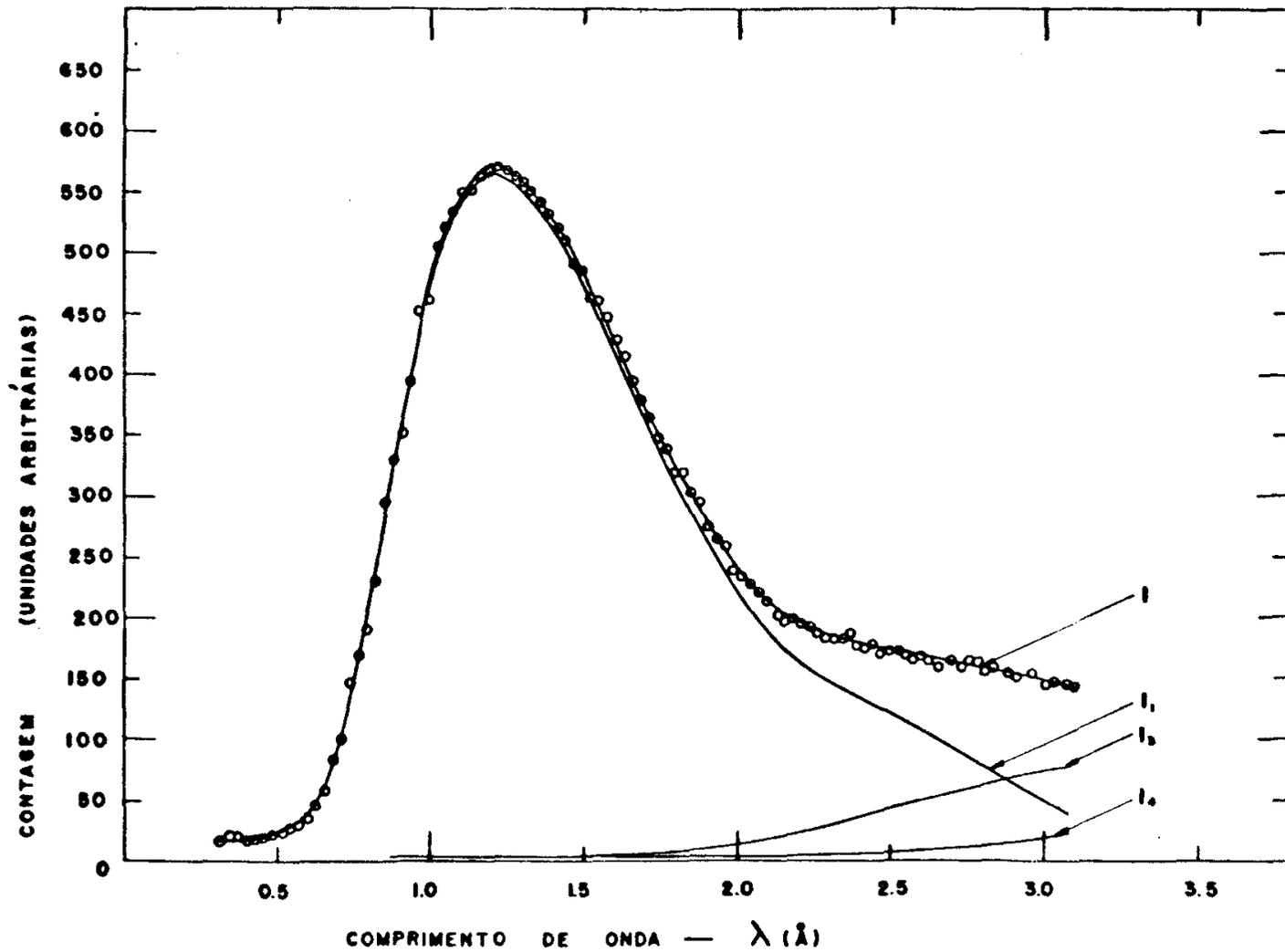


FIGURA 13 - Contagem por unidade de tempo, para Ge(111), corrigida para reflexões parasitas e "background".

$I_1(\lambda)$  pela eq. (3.50).

De fato, para as reflexões dos planos (111) do Ge, a intensidade de ordem de reflexão seguinte ao  $I_2(\lambda) \equiv 0$ , isto é, o  $I_3(\lambda)$  calculado, mesmo em  $1.0\text{\AA}$  é menor do que 0.5% da intensidade observada e não excede a 1% de  $I(\lambda)$  até o comprimento de onda de  $2.15\text{\AA}$ . Em  $3.0\text{\AA}$ , que é o extremo superior do intervalo de comprimentos de onda considerado, a eq. (3.48) ainda pode ser usada, pois  $\lambda/3 = 1.0\text{\AA}$  pertence à região considerada não contaminada.

Nessas condições, foram calculadas individualmente as intensidades para as ordens de reflexões possíveis do cristal de Ge (111), e colocadas em gráfico, juntamente com a curva  $I$  na fig. 13, em função do comprimento de onda do neutron. Além disso, pode ser vista através dos  $f_n$  mostrados na fig. 14 em função de  $\lambda$ , 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.

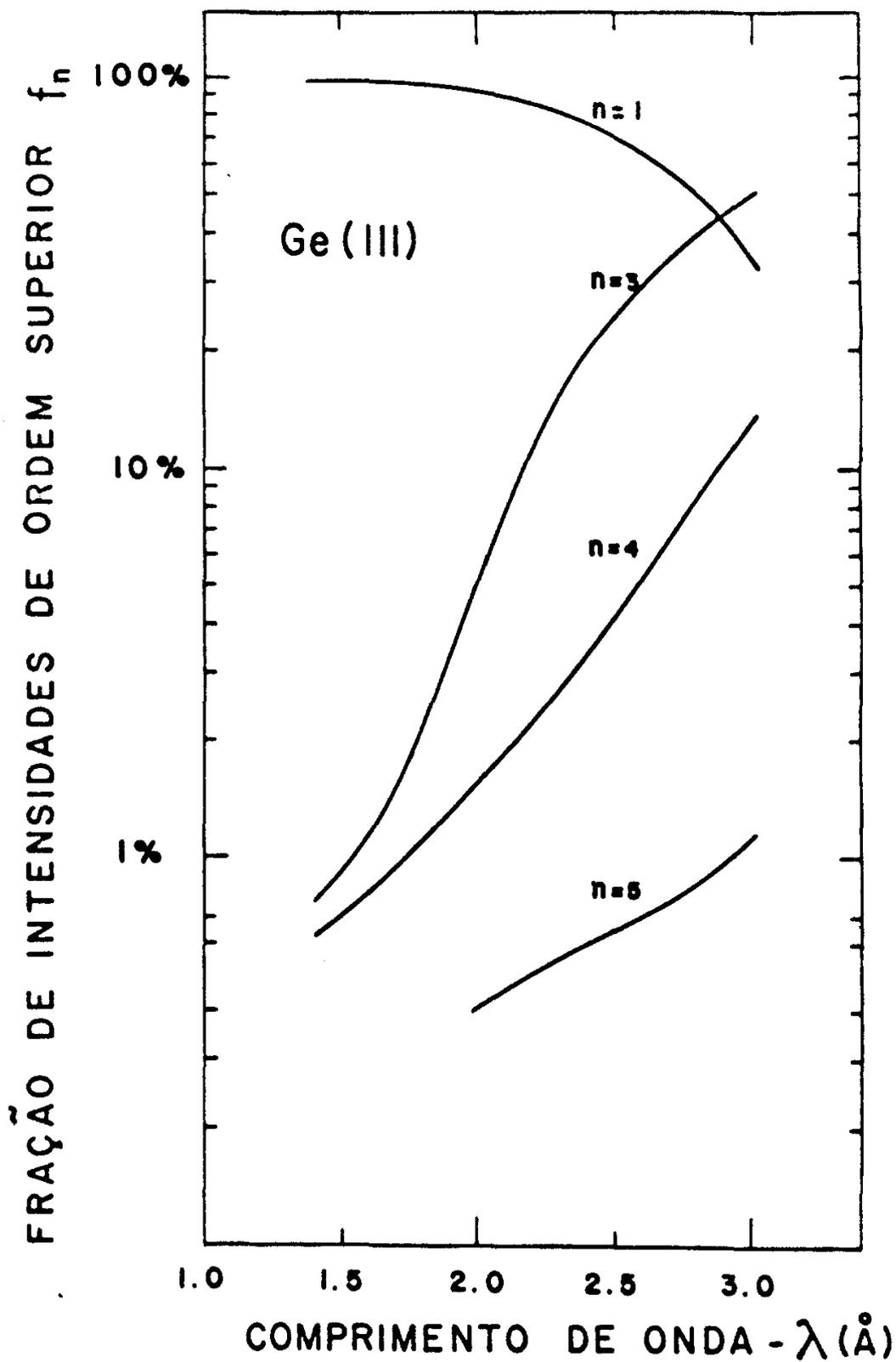


FIGURA 14 - Relação entre a intensidade de ordem superior e a intensidade total refletida pelo cristal de Ge(111). Calculadas para  $n=1,3,4,5$ .

#### 4.1.4 DISTRIBUIÇÃO ESPECTRAL DOS NEUTRONS EMERGENTES DO REATOR

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

Como já foi mencionado no Cap. I o fluxo de neutrons térmicos, que emerge do reator, é descrito por uma função próxima a uma Maxwelliana, (Hu53) (Ly65), na forma:

$$(4.1) \quad \phi(\lambda) = 2N(E/kT)^2 \left\{ \exp(-E/kT) \right\} / \lambda$$

onde  $\phi(\lambda)d\lambda$  é o número de neutrons que emerge por segundo no intervalo de comprimento de onda entre  $\lambda$  e  $\lambda + d\lambda$ ;  $N$  é o fluxo total de neutrons de todas as energias; e  $E$  é a energia correspondente ao comprimento de onda  $\lambda$ ;  $k$  é a constante de Boltzmann e  $T$  ( $^{\circ}K$ ) 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 secção 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

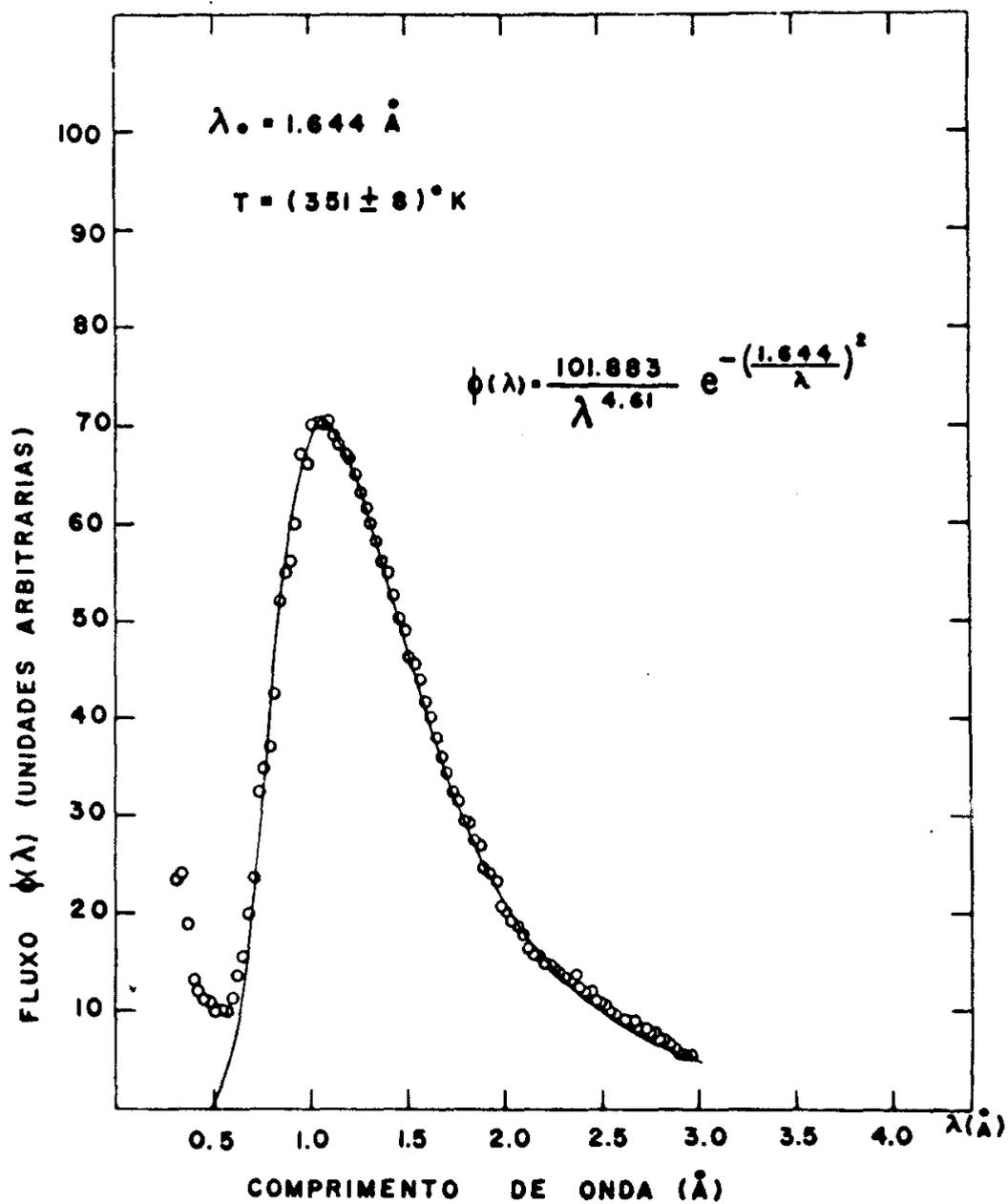


FIGURA 15 - Distribuição espectral dos nêutrons emergentes do canal de irradiação nº 10, do reator IEA-R1.

1/E. Estes efeitos não mudam drásticamente a forma do espectro, mas forçam um deslocamento no sentido de energias mais altas -- (We58).

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 0.7Å e 2.9Å; os parâmetros foram ajustados por mínimos quadrados, com auxílio do computador do IEA, e a expressão resultante é dada por:

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

Como pode ser visto na fig.15, o espectro disponível para as experiências, no canal de irradiação nº10 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 0.5Å, o comportamento do espectro em relação a  $\lambda$ , devido aos nêutrons ainda em processo de moderação.

As incertezas experimentais nas taxas de contagem, conduzem a uma incerteza máxima de 0.02Å no comprimento de onda mais provável; portanto, ao valor de  $\lambda_0 = 1.644 \pm 0.02$  Å corresponde uma temperatura efetiva de  $351 \pm 8^\circ\text{K}$  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 neutrons emergentes do canal de irradiação, transversal nº 13, do reator (He69).

A temperatura média do moderador do reator IEA-R1 é da ordem de  $306^\circ\text{K}$ , 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 (Ho64) (Do64) (Jo63).

#### 4.1.5 MEDIDA DA SECÇÃO DE CHOQUE TOTAL DO OURO

Como foi visto no ítem 3.4.1, a secção de choque contaminada  $\sigma_m$  observada, quando é medida uma curva padrão  $\sigma$ , 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 (111). 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  $\sigma_m$ .

O ouro é geralmente escolhido como padrão, devido ao comportamento de sua secção de choque total, que varia linearmente -- com o comprimento de onda de neutron. Além disso, a preferência por esse metal se deve, também, à 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 frequente uso da curva de secção de choque total do ouro nas experiências com neutrons, vários pesquisadores já a mediram com precisão (Go60) (Als63) (He67), na região de energia dos neutrons térmicos.

A curva padrão do ouro, utilizada neste trabalho, foi construída com base na referência (Go60), através da expressão ----

$$\sigma_T(\lambda) = [54.59\lambda - 0.94 + (1.7/\lambda) + 7.3] \text{ barns. Os dois primeiros}$$

têrmos 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 inter- valo de comprimentos de onda de  $0.5\text{\AA}$  a  $3.0\text{\AA}$ , e está representada pela curva A na fig.16.

A curva B da fig. 16 representa a secção de choque total - observada  $\sigma_m$ , 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 (111) como monocromador e efe- tuando medidas de transmissão através dessa mesma amostra de -- ouro, foi determinada experimentalmente a secção de choque to- tal do ouro. Esses pontos experimentais, colocados na figura, - coincidem, dentro dos êrros experimentais, com a curva calculada B, indicando uma boa estimativa dos valôres utilizados no cálculo.

Nessa mesma fig. 16, pode ser visto que para comprimentos de onda pequenos, abaixo de  $1.5\text{\AA}$ , os pontos experimentais, con- cordam 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  $\lambda$  (visto - no Cap.I).

Com o objetivo de verificar a sensibilidade do método utili- zado para o cálculo das contaminações de ordens superiores, foi colocada na fig.17 uma curva de porcentagem total de contami- nação calculada para o ouro,  $(\sigma_{\text{padrão}} - \sigma_m)/\sigma_{\text{padrão}}$ ; e além dis

SECÇÃO DE CHOQUE (BARNs)

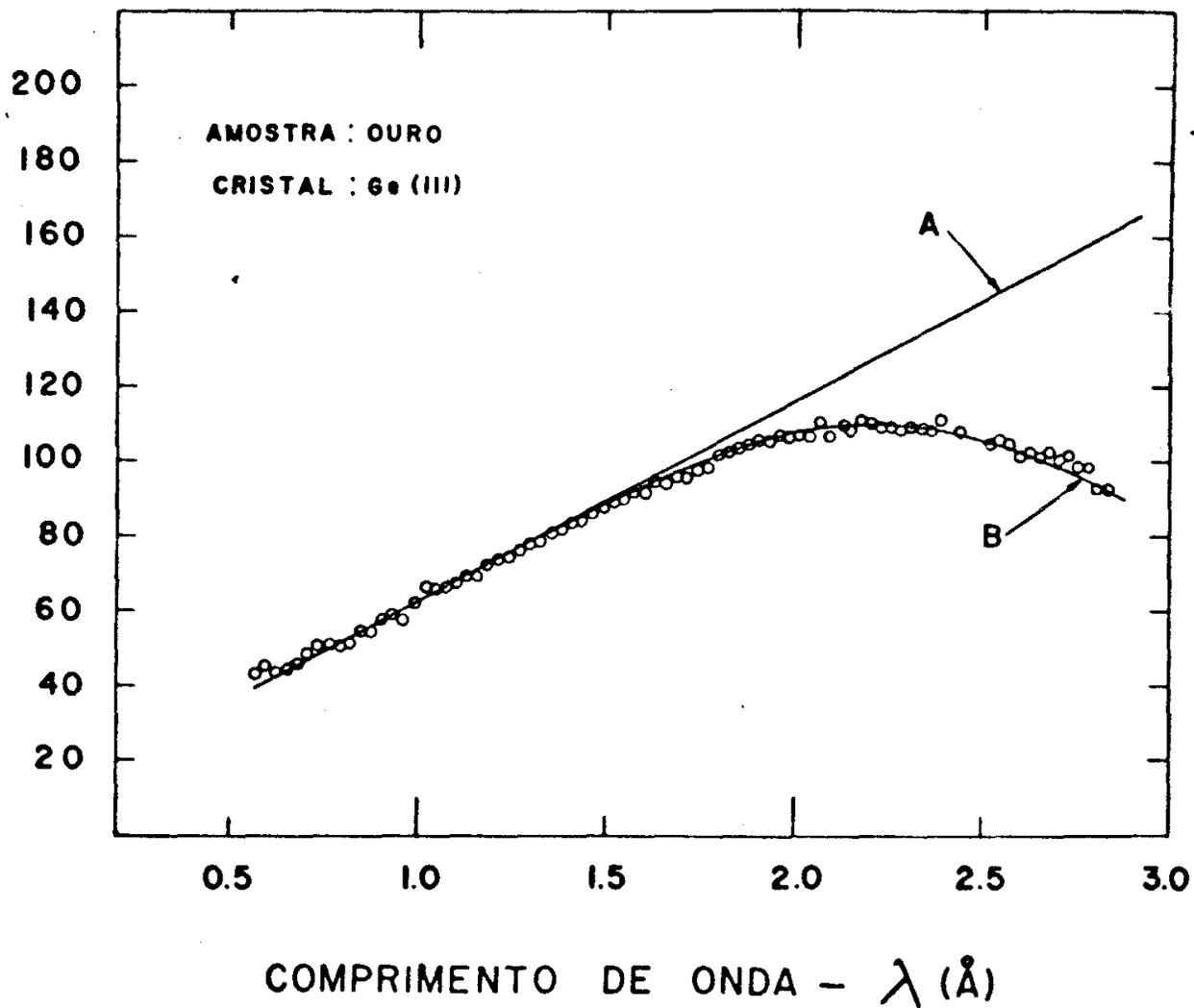


FIGURA 16 - Secção de choque total do ouro. Curva A é a curva padrão calculada pela referência (Go60). Curva B e a secção de choque calculada através das frações  $f_n$ . Nos pontos experimentais, os erros são menores do que os círculos.

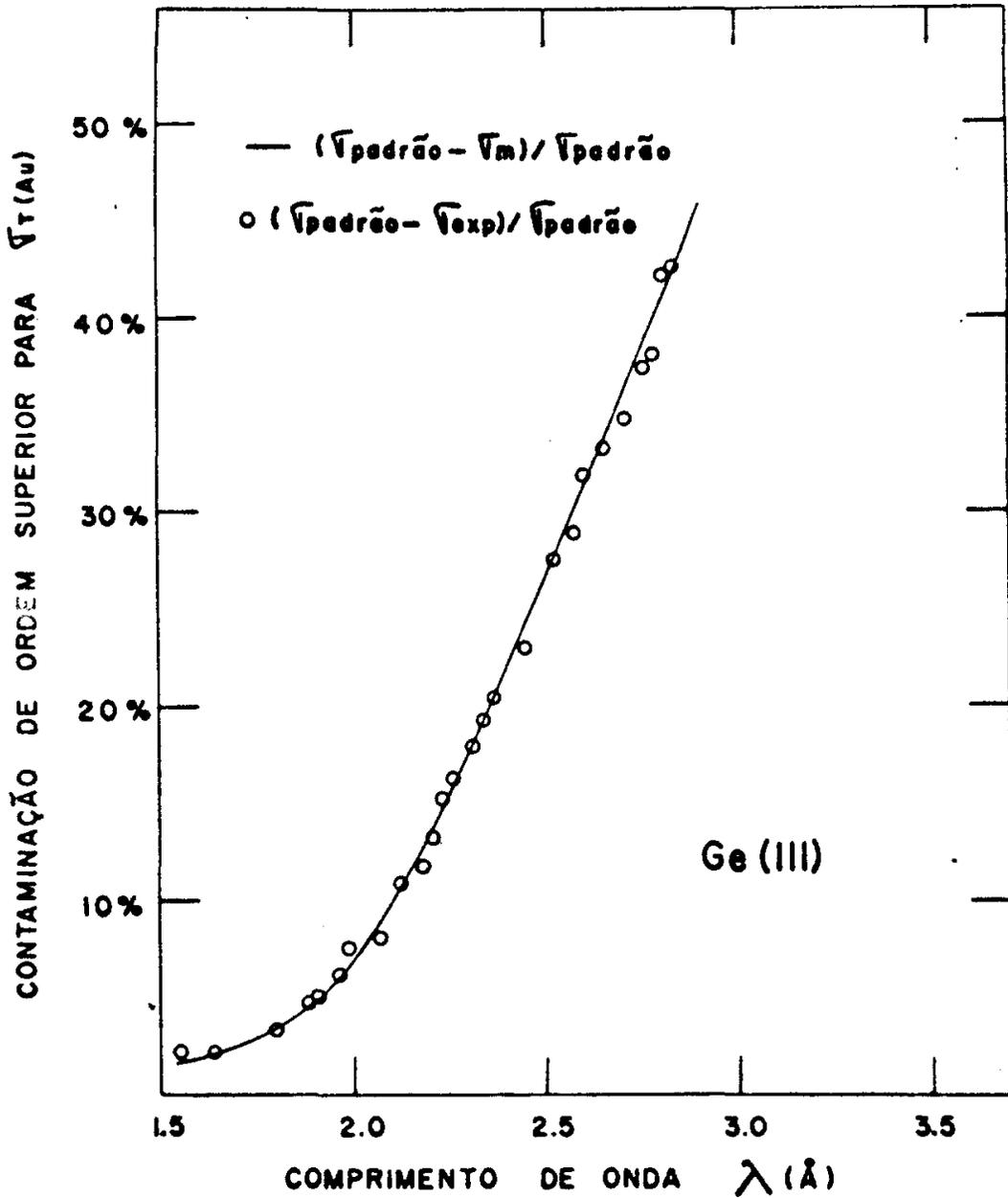


FIGURA 17 - Porcentagem total de contaminação de ordem superior, na secção de choque total do ouro, com o cristal de Ge(III).

so, 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  $1.5\text{\AA}$  até 43% em  $2.9\text{\AA}$ .

Todos esses resultados, confirmam uma precisa determinação das frações  $f_n$ , para as reflexões dos planos (111) 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  $\sigma_{\text{exp}}$  é transformado no  $\sigma_1$ , a partir de N e  $f_n$  conhecidos. Esses pontos  $\sigma_1$ , que são os valores da secção de choque total que se mediria se não houvesse contaminação de ordem, estão colocados em gráfico, de  $1.5\text{\AA}$  a  $3.0\text{\AA}$ , na figura 18, onde podem ser vistos coincidindo com a curva padrão do ouro; as pequenas flutuações nos pontos de  $\sigma_1$ , que também são notadas nos pontos da referência (He67), 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.

Outro método a ser utilizado é o do uso de filtros de ---- quartzo, que será visto no próximo ítem deste capítulo. Entretanto, na fig. 18, podem ser vistos pontos experimentais medidos diretamente sem contaminação de ordens superiores, eliminadas por meio de filtros de quartzo, cujas espessuras foram otimizadas em função dos  $f_n$  estimados para o cristal de Ge (111).

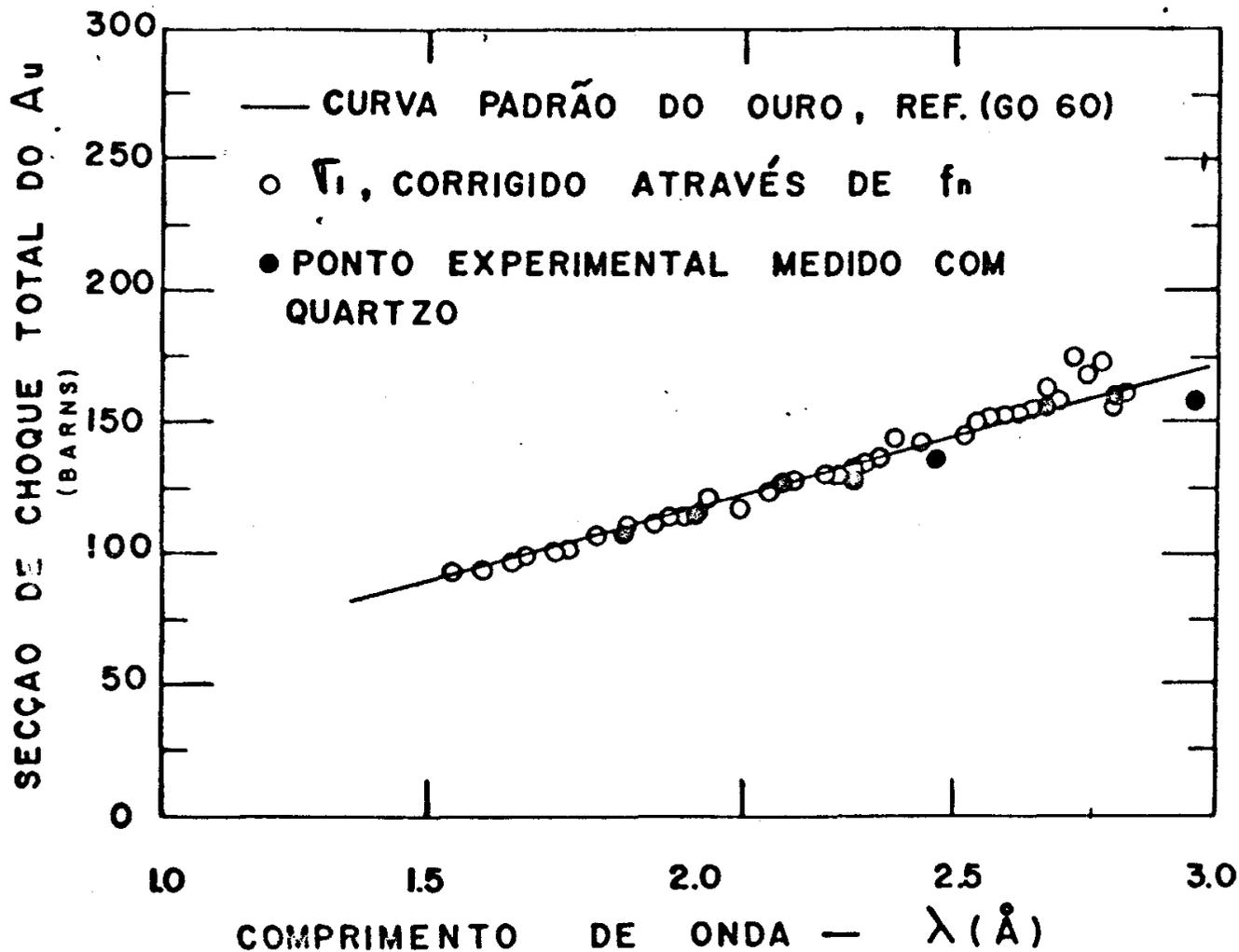


FIGURA 18 - Secção de choque total do ouro, com pontos corrigidos através de cálculos ; e pontos experimentais obtidos pela utilização de filtros de quartzo.

#### 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  $\lambda$ , e baixa transmissão para os nêutrons indesejáveis de ordens superiores, com comprimentos de onda  $\lambda/3$ ,  $\lambda/4$ ,  $\lambda/5$ , etc. Diversos autores (Br59)(Bj61)(Ab66), já apontaram que os monocristais de quartzo possuem essa propriedade, uma vez que sua secção de choque total aumenta rapidamente no intervalo de  $2.0\text{\AA}$  a  $0.2\text{\AA}$ , permanecendo baixa para nêutrons com comprimentos de onda maiores do que  $2.0\text{\AA}$ .

Como pode ser visto na fig. 17, a contaminação na secção de choque total do ouro, medida com o Ge(111), é influente no intervalo de  $1.5\text{\AA}$  a  $3.0\text{\AA}$ ; portanto até  $3.0\text{\AA}$ , que é o limite superior das medidas efetuadas com o Ge(111), filtros convenientes de quartzo podem ser usados, pois os comprimentos de onda de ordens superiores  $\lambda/n$  sempre caem na região onde a secção de choque do quartzo é mais alta do que em  $\lambda$ .

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:

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

Reescrevendo a equação acima fica-se com:

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

onde  $C_n$  representa a relação entre cada intensidade filtrada, de

ordem superior, e a intensidade filtrada de primeira ordem.

$$(4.5) \quad C_n = \frac{I'_n}{I'_1} = \frac{I_n}{I_1} \frac{t_n}{t_1} = \frac{f_n}{f_1} \frac{t_n}{t_1}$$

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 de 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 fig. 14 e as transmissões  $t_n$  são dadas pela equação abaixo.

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

onde  $N$  é o número de moléculas por  $\text{cm}^3$ ,  $\epsilon$  é a espessura, e  $\sigma$  é a secção de choque total do filtro.

Para o quartzo,  $N = 2.672 \times 10^{22}$  molec/ $\text{cm}^3$ ; e o comportamento da secção de choque total, em função de  $\lambda$ , é muito bem conhecido e é dado na referência (Ab66).

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  $\lambda$ , no intervalo de 1.5 Å a 3.0 Å, em função da espessura de quartzo; as curvas resultantes podem ser vistas na fig. 19.

Para cada  $\lambda$ , onde foi feito o cálculo, a espessura ótima para o filtro de quartzo foi escolhida de modo que o valor de -

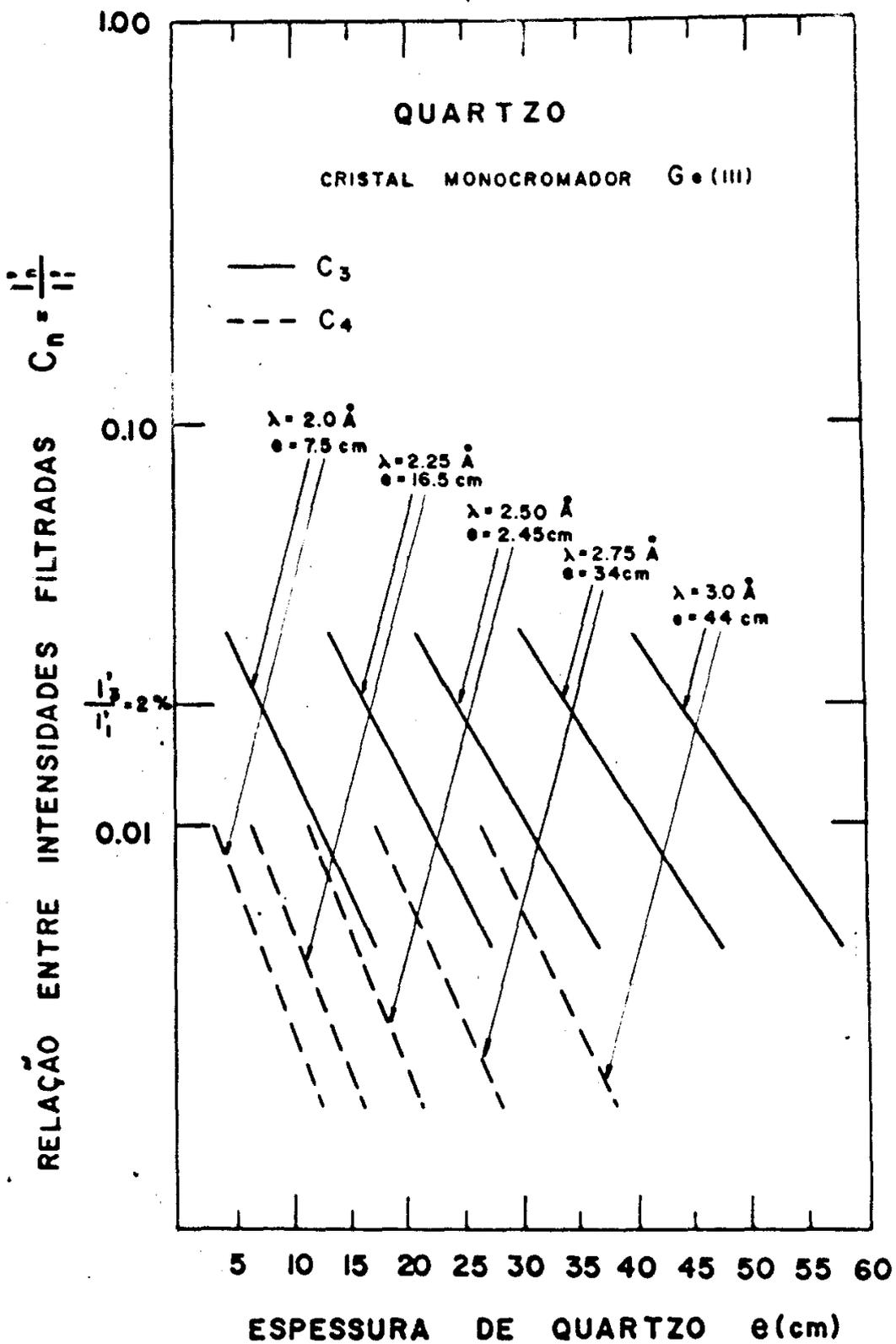


FIGURA 19 - Relação entre intensidade filtrada de ordem superior e intensidade filtrada de primeira ordem (para  $n=3,4$ ) do Ge(111), calculada em vários comprimentos de onda. A espessura de quartzo é escolhida para o valor  $C_3=0.02$ .

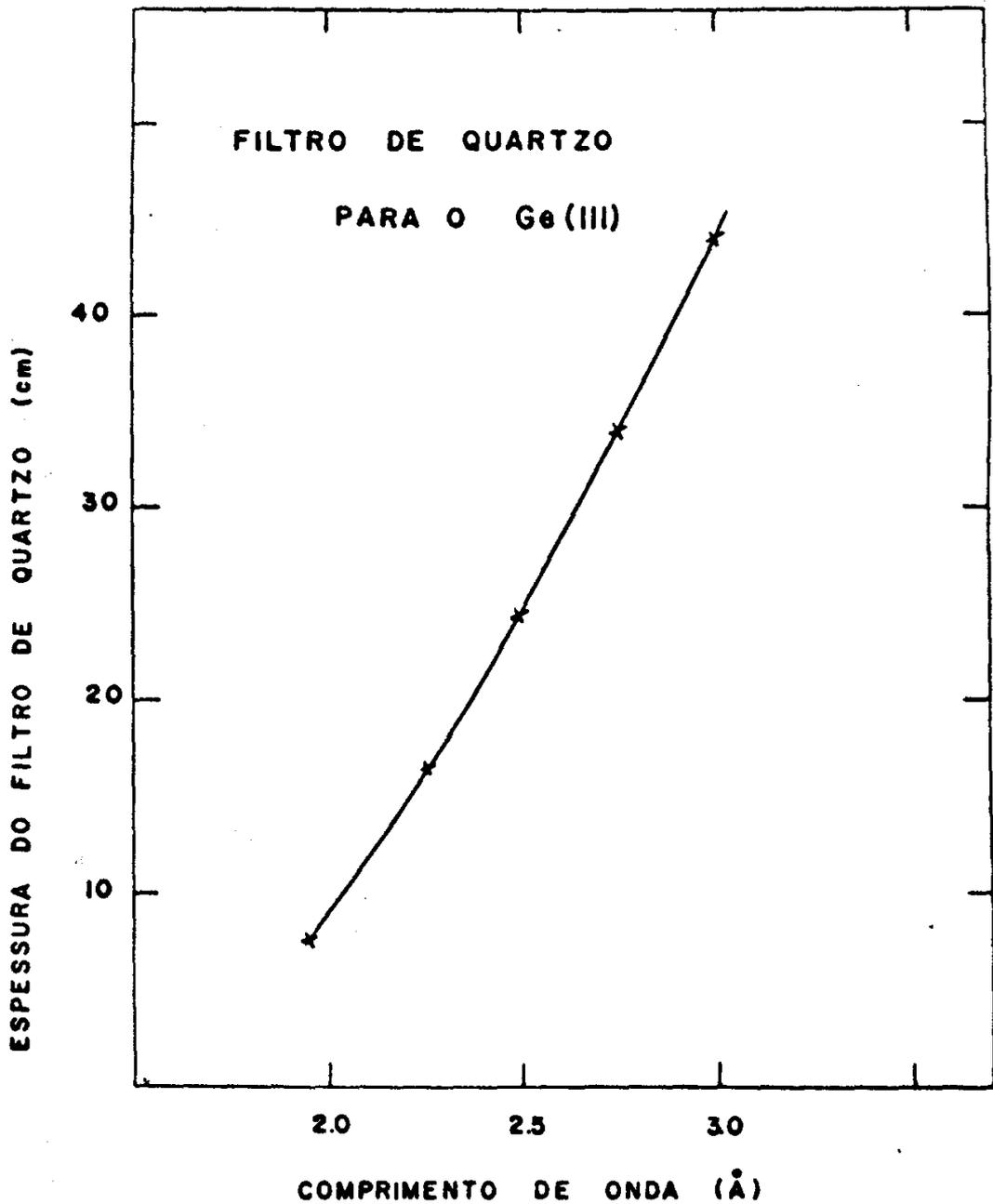


FIGURA 20 - Espessuras de filtros otimizados para eliminar contaminações de ordem superior no feixe refletido do cristal de Ge(III).

$C_3$  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 fig. 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 neutrons filtrado, onde as espessuras de quartzo foram escolhidas de acordo com a curva da fig. 20. Os pontos experimentais foram colocados na fig. 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 (111).

## 4.2 MEDIDAS EM ENERGIAS ACIMA DO PICO DO ESPECTRO TÉRMICO

### 4.2.1 INTRODUÇÃO

Na fig. 16 do item 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  $\lambda$ . Contudo, para a medida de uma ressonância nuclear, nessa região, o problema torna-se particularmente importante (Ha59), e o obje

tivo 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 no feixe, uma vez que algumas aproximações podem ser feitas, aproveitando a variação quase linear da refletividade (fig.9), e do espectro (fig.15), em relação a  $\lambda$ .

Para êsse estudo, foi feita a medida da ressonância do Iriúdio em  $E_0 = 0.654$  eV (ou  $0.353\text{\AA}$ ), utilizando um cristal de Al (111), 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 (Hu 58)— 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.

#### 4.2.2 CURVA DA RESSONÂNCIA PADRÃO

Cada ressonância representa um estado excitado do núcleo composto, formado após a adição de um neutron 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 (Br36).

$$(4.7) \quad \sigma_T = \sigma_o \Gamma^2 (E_o/E)^{1/2} \left[ 4(E - E_o)^2 + \Gamma^2 \right]^{-1} + \sigma_{f_a}$$

onde  $\sigma_T$  é a secção de choque total na energia  $E$ ,  $\sigma_{f_a}$  é a secção de choque de espalhamento para o átomo livre,  $\sigma_o$  é a secção de choque exatamente na energia da ressonância  $E_o$ , e  $\Gamma$  é a largura total da ressonância na metade do máximo. A quantidade  $\sigma_o$  é realmente a quantidade que envolve os parâmetros mais fundamentais, ou seja:

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

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

Nas proximidades de 1.0 eV, o Iridio possui duas ressonâncias (La55): a primeira, na energia  $E_o = 0.654$  eV, é devida ao isótopo  $\text{Ir}^{191}$ , e a segunda, na energia  $E_o = 1.303$  eV, é atribuída ao isótopo  $\text{Ir}^{193}$ . 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:

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

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

A curva da secção de choque total para neutrons para a primeira ressonância do Iridio em  $E_0 = 0.654$  eV foi construida adicionando as contribuições de todas as ressonâncias que aparecem nesse elemento. Para esse cálculo foram usados parâmetros, anteriormente publicados (Hu58), e a curva resultante calculada, A, é vista na fig. 21.

#### 4.2.3 ALARGAMENTO DOPPLER

##### a) Forma usual do Alargamento Doppler

A fórmula de secção de choque, do item 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 neutrons, foram Bethe e Placzek (Be37) em 1937, tratando os átomos como um gás ideal.

A secção de choque em uma dada energia, para átomos não es tacionários, é obtida efetuando-se uma média da secção de choque primitiva sôbre a distribuição térmica de velocidades dos nú--- cleos do alvo.

Pela convolução dessa distribuição de velocidades, com a - expressão que descreve a curva da ressonância natural, se obtêm a secção de choque afetada com o efeito Doppler (Be64).

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

Para um gás livre a largura de Doppler  $\Delta$  é dada por:

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

onde  $m$  e  $M$  são as massas do neutron e do núcleo, respectivamen-

te;  $k$  constante dos gases, e  $T$  a temperatura da amostra.

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

Introduzindo variáveis adimensionais, tais como:

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

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

e

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

a eq. (4.10) torna-se:

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

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

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

#### b) ALARGAMENTO DOPPLER PARA UM ABSORVEDOR SÓLIDO

Um dos primeiros a considerar uma teoria para captura de neutrons por átomos ligados em um cristal foi Lamb (La39), 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  $\Delta$  deve ser apresentada. Para esse caso de ligação cristalina fraca, o  $\Delta$  depende da energia média por grau de vibração e não mais da temperatura da amostra como está expresso na eq.(4.11).

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 (Ly57) pela eq.(4.14), onde  $\theta$  é a temperatura de Debye da amostra e os valores de  $C_v = f(\theta/T)$  são encontrados na referência (Ro60).

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

Utilizando a eq.(4.14), e o valor de  $\theta = 285^\circ\text{K}$  (Ho57), foi determinada a temperatura efetiva para o irídio  $T' \approx 1.04 T$ .

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 (Be64), 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 seção

da 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 ( $\Gamma + \Delta / (2\theta) \approx 2$ ).

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 fig. 21.

#### 4.2.4 EFEITO DA RESOLUÇÃO INSTRUMENTAL

Se o feixe de neutrons fôsse 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:

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

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:

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

onde

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

A equação (4.17) representa a função resolução do espectrômetro, que dá a distribuição em energia do feixe de neutrons refletidos. Um cálculo detalhado da função  $R(E'-E)$  pode ser encontrado no Apêndice A da referência (Fu67). 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  $\Delta E$ , e seu valor é dado por

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

obtido da diferenciação da equação de Bragg, onde  $E$  é expresso em eV e  $d$  em unidades de  $10^{-8}$  cm. O  $\Delta \theta$  representa a largura total na metade do máximo da função resolução do instrumento em termos da distribuição em ângulo de Bragg (Fu67).

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

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

A largura de 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 item 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 (111),  $\Delta\theta = 0.177^\circ \approx 10$  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 fig.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, (Be64), 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  $\sigma_m$  observada, quando é medida uma curva  $\sigma_R$  conhecida, é dada pela eq.(3.45); reescrevendo-a, tem-se:

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

ou ainda

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

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

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

No intervalo das energias primárias, onde é medida a ressonância do Ir em 0.654 eV, o valor da secção de choque na ener--

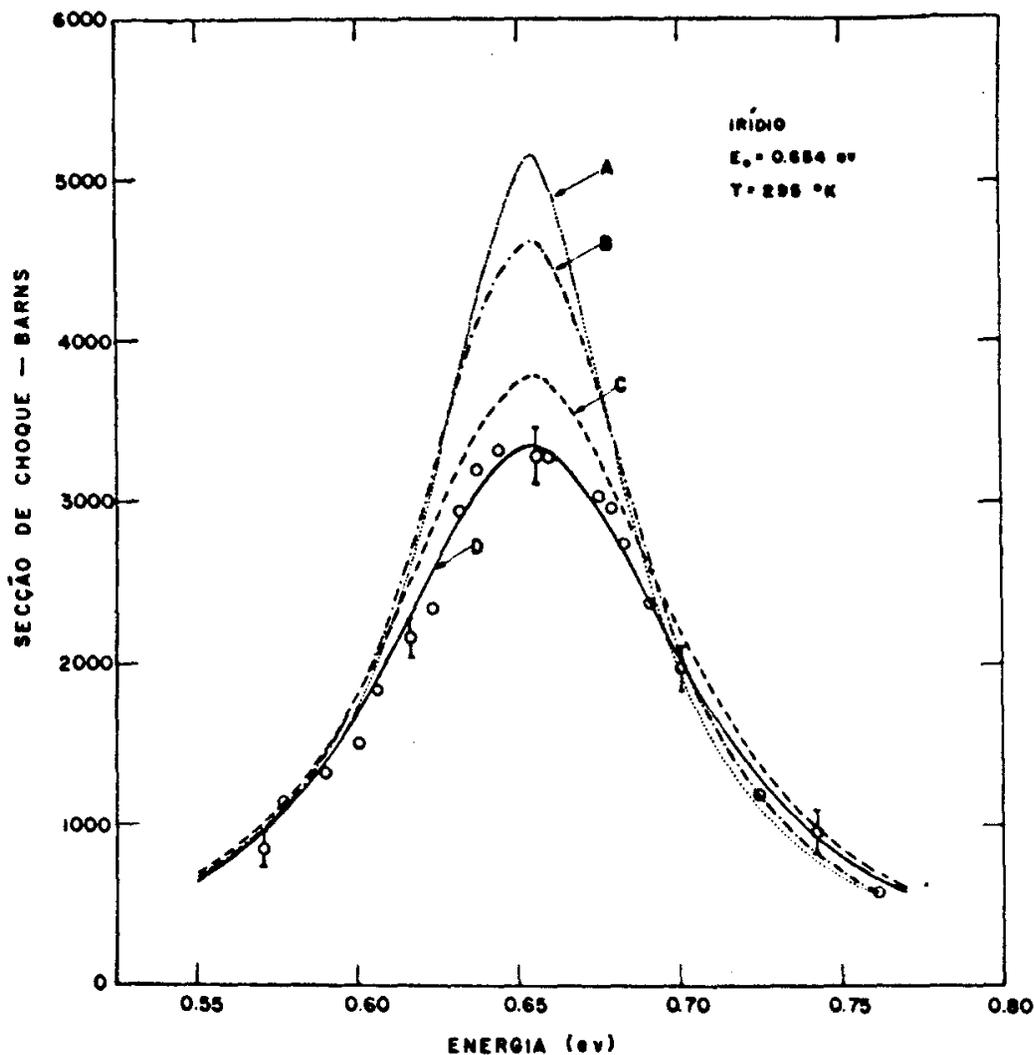


FIGURA 21 - Seção de choque total do irídio, em função da energia do nêutron. A curva A é a ressonância padrão construída por Breit-Wigner. A curva B é resultante da consideração do efeito Doppler em A. A curva C é obtida considerando o efeito da resolução instrumental em B. A curva D, é obtida a partir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

gia  $4E$  pode ser considerado constante (Hu58),  $\sigma_2 \approx 25$  barns. Nessas condições, para o cálculo de  $\sigma_m$  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 item 3.3.2, uma expressão para  $k$  pode ser escrita na forma (Bo53):

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

onde os índices referem-se à ordem.

De acordo com a fig.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  $\epsilon_2/\epsilon_1$  é igual a  $(E_2/E_1)^{-0.5}$ .

Retornando à eq. (4.18) pode-se determinar que  $\Delta E/E = 2\Delta\theta \cotg \theta \approx 2\Delta\theta/\theta$ , 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 (Wa60),  $R' = e^{-2M} R$  (fig.9), como o espectro de neutrons (fig. 15) são aproximadamente lineares em relação a  $\lambda$ ; e sendo que  $e^{-2M}$  só depende da ordem (eq.3.3), a dependência com a energia do produto  $\phi R = I/\epsilon \Delta E$  pode ser determinada experimentalmente, pela colocação dos pontos  $\phi R$ , em função da energia, em uma escala logarítmica.

A intensidade  $I$  acima de 0.5 eV foi medida e corrigida para  $\epsilon$  e  $\Delta E$ , que possuem expressões bem conhecidas (eq.2.3 e eq. 4.18); foi ajustada uma curva aos pontos experimentais de  $I/\epsilon \Delta E$ ,

por mínimos quadrados (fig.22), obtendo-se  $\phi_{RaE}^{-2.7}$ .

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

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

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

$$(4.25) \quad k = \left(\frac{E_2}{E_1}\right)^{-2.2} e^{-6M_1}$$

O valor de  $M = 0.0414$ , para o cristal na temperatura ambiente ( $295^\circ\text{K}$ ) 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 (Ho57).

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 seção de choque  $\sigma_m$  é o valor teórico, que deve ser medido, e esta representado pela curva D, fig.21.

A seção 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 fig. 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 (Sa56); contudo, os resultados experimentais da fig.21 indicam uma boa estimativa da função resolução, da contaminação de segunda ordem e dos parâmetros usados.

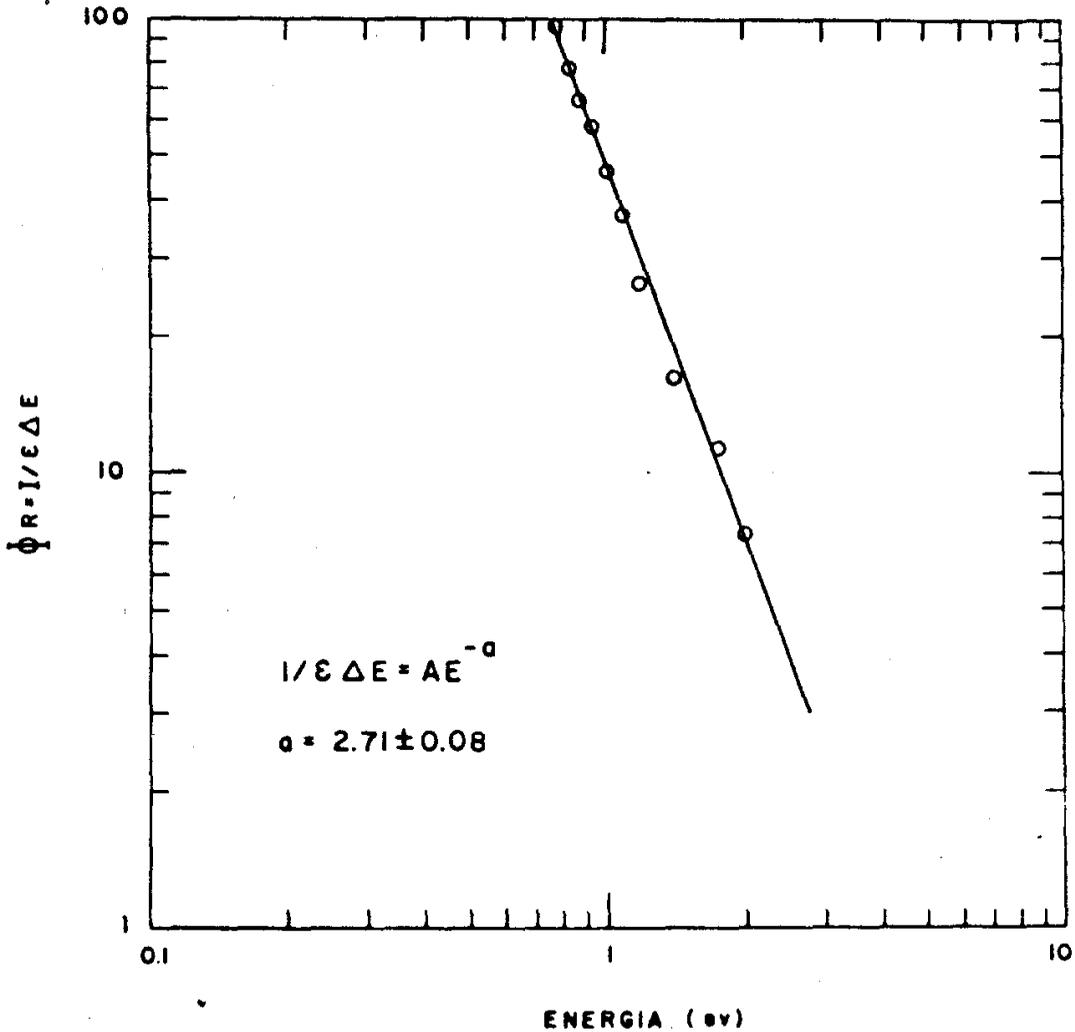


FIGURA 22 - Intensidade dos nêutrons em função da energia. Os pontos foram corrigidos para a eficiência do detector e largura de resolução  $\Delta E$ . O ajuste por mínimos quadrados determina  $\phi_R \propto E^{-2.7}$ .

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 (We67), 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 item 4.1.6, ou seja, sua seção 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 neutrons com energia compreendida nesse intervalo. Além disso, o telúrio possui uma ressonância (Hu58) cuja seção 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 neutrons 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

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

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

Quando o filtro é usado, a seção de choque  $\sigma_m$  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 fig. 21, ou pela eq. (4.26), quanto mais a relação  $t_2/t_1$  minimizar o valor de k, calculado no item 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  $\text{cm}^3$ ,  $N = \rho N_0/A$ , 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  $10^{-24} \text{ cm}$ , foram obtidos da referência (Hu58).

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

$$(4.27) \quad C_2 = 0.03697 \exp \left\{ - 5.3175(\sigma_2 - \sigma_1) \right\}$$

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 fig. 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 (111), 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 calcula

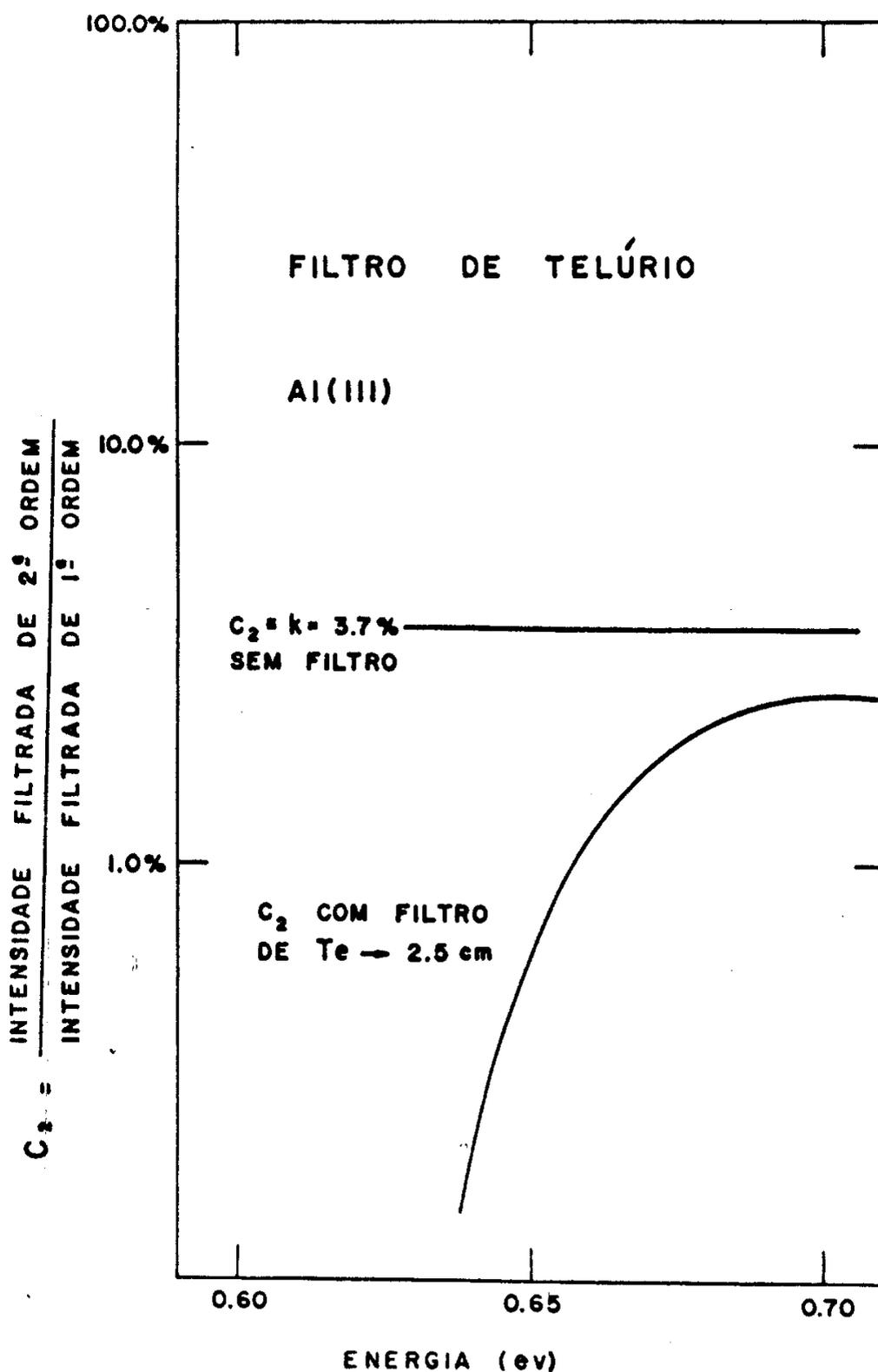


FIGURA 23 - Relação entre as intensidades filtradas pelo filtro de telúrio com 2.5 cm de espessura. Na energia do pico da ressonância do irídio,  $E = 0.654$  eV, a contaminação é menor do que 1% .

da está representada pela curva E na fig. 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.

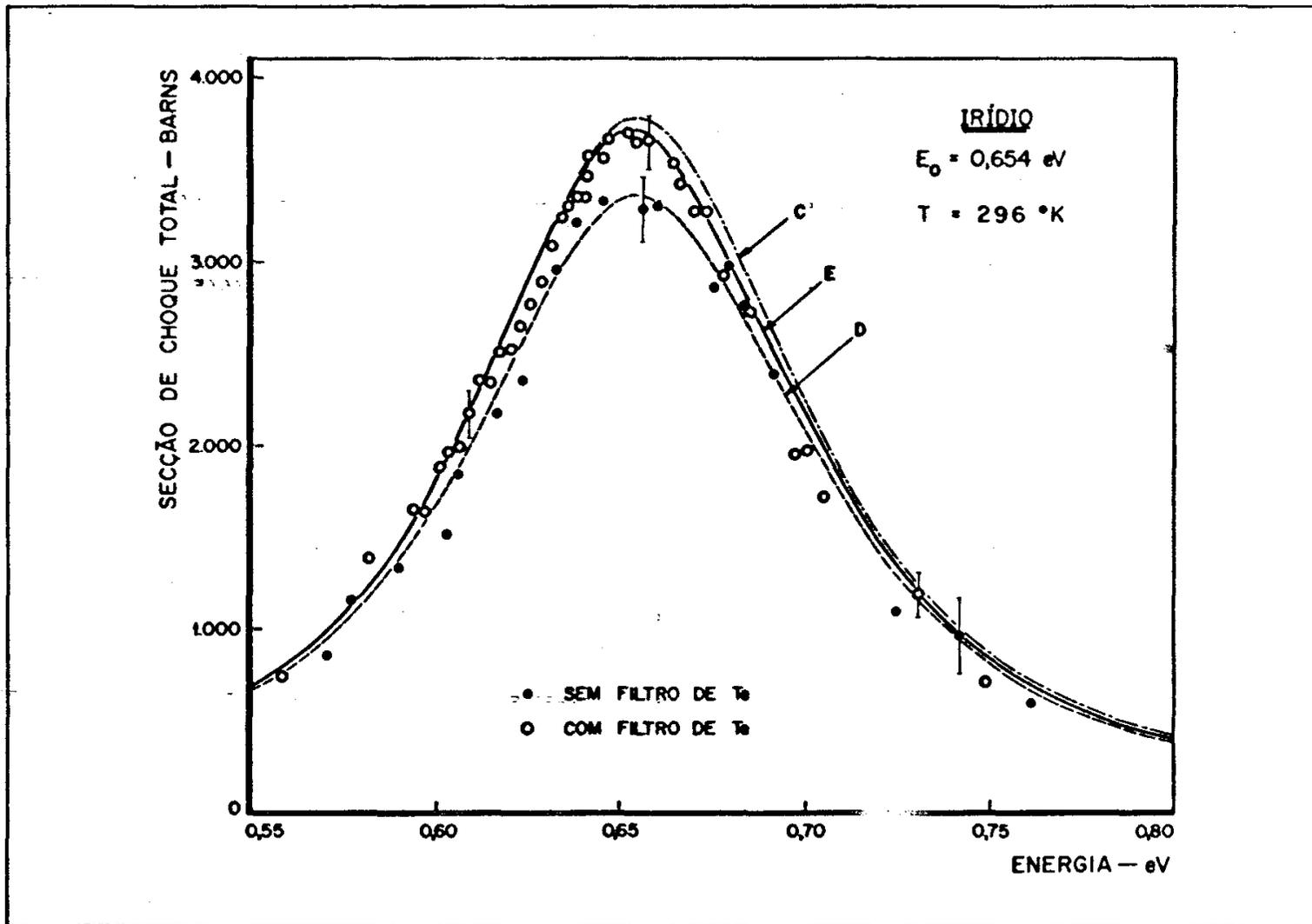


FIGURA 24 - Secção de choque total do irídio, em função da energia, utilizando filtro de telúrio com 2.5 cm de espessura. A curva esperada é E; as curvas C e D já foram discutidas na figura 21.

## 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 (Wa6) e (Br66), porém utilizaram as expressões apresentadas nas referências -

(Ba48) e (Ba62), nas quais o efeito da colimação finita do feixe não é considerado. Além disso, para a obtenção das curvas de refletividade do Ge (111), êsses autores seguiram um critério, já adotado por Holm (Ho55) e por Pattenden (Pa57), 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.

Na verdade, em estudos realizados em cristais de chumbo, Jones (Jo63) e Leser (Le68) 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 (111) foi calculado com base na referência (Jo63), e no comprimento de onda  $\lambda = 1.0\text{\AA}$ , êste coeficiente coincide com o valor obtido por Popovici (Po63).

Em seu trabalho, Brocker (Br66), 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  $\Theta_D = 370^0\text{K}$ , também é possível verificar que a secção de choque de um monocristal comporta-se realmente do modo previsto nas referências (Jo63) e (Le68); êsse 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 neutrons emergentes do reator. A obtenção de uma expressão que descreve o espectro de neutrons 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 neutrons. A energia mais provável associada à temperatura da distribuição ( $T = 351 \pm 8^\circ\text{K}$ ), é de particular interesse para a padronização de fôlhas de materiais usados como detectores de neutrons; estes padrões são fundamentais para o desenvolvimento de técnicas de medidas de fluxo, por ativação de fôlhas.

O método para eliminação de ordens superiores, por correções calculadas, pode ser usado quando a porcentagem total de contaminação não é muito grande (Bj61) (Ha59). No caso da medida da secção de choque total do ouro, com o cristal de Ge (111) pode-se aplicar o método perfeitamente até  $\lambda = 2.2 \text{ \AA}$ , ou seja, corrigir uma contaminação total de até 15% (fig.17). Para correções maiores do que esta pode-se aplicar o método no caso de uma avaliação preliminar do comportamento, em relação a  $\lambda$ , 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 (111) 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 êsse cristal e filtros de quartzo, mostrou-se eficiente para medidas diretas da secção de choque total, no intervalo de comprimentos de onda de  $0.5\text{\AA}$  a  $3.0\text{\AA}$  (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 êsses 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 êsse 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 dêsses, 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. Êsses programas podem ser utilizados para ressonâncias de qualquer elemento.

Para calcular a contaminação de segunda ordem do Al (111) nessa região, foram feitas algumas aproximações não tendo sido necessário o cálculo da refletividade para êsse 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 (Sa56). A con

cordância entre a curva esperada do irídio e os pontos experimentais obtidos (fig.21), indica : a validade da função resolução, uma boa análise da contaminação de segunda ordem para o Al (111) 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 seções 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 ASolução do sistema de equações (3.7) e (3.8)

Pode-se reescrever as equações na seguinte forma:

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

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

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  $-\left(\frac{S}{\gamma}\right)$ , obtêm-se:

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

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

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

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

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

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), obtêm-se:

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

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

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

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

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

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

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

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

(A.2).

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

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

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

$$\frac{dP_H}{dt} = \frac{A}{t_o} \left[ (1 + a)P_H - aP_o \right]$$

Portanto:

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

Como foi visto no Ítem 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:

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

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

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

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

Portanto:

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

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

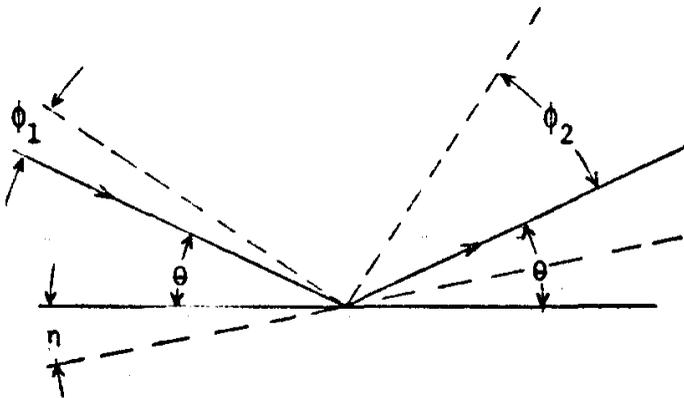
$$(A.9) \quad \frac{P_H(\Delta, 0)}{P_o(\Delta, 0)} = \frac{a}{(1 + a) + \sqrt{1+2a} \coth \left[ A \sqrt{1+2a} \right]}$$

Esta eq. (A.9) é idêntica à expressão apresentada por -- Bacon (Ba62), para o caso de reflexão simétrica.

APÊNDICE BExpressão para a curva de "rocking" do cristal  
(sem considerar extinção) (Sa56)(Po68)

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:  $\theta$  é o ângulo de Bragg para um raio central refletido de um bloco mosaico central.

$\phi_1$  é o ângulo entre o raio individual incidente e o raio central incidente.

$\eta$  é o ângulo entre o bloco mosaico individual e o bloco mosaico central.

Define-se  $\delta \equiv \theta' - \theta$

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

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

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

Seja a função transmissãõ 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

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

e a transmissão do 2º colimador dada por:

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

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

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

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  $\eta$  por  $\eta + \gamma$ , e integra-se sobre  $\delta$  e  $\eta$ :

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

onde:

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

considera-se

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

a integral torna-se

$$\iint \exp - \left( \frac{A\eta^2 + 2B\eta + C}{D} \right) d\eta d\delta = \iint \exp - \left[ \frac{\eta^2 + 2 \frac{B}{A}\eta + \frac{C}{A}}{\frac{D}{A}} \right] d\eta d\delta =$$

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

onde:

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

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

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

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

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

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

ou

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

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

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

a integral pode ser escrita na forma:

$$\sqrt{\frac{D\pi}{A}} \int \exp - \left( \frac{E\delta^2 + 2F\delta + G}{DA} \right) d\delta = \sqrt{\frac{D\pi}{A}} \int \exp - \left( \frac{\delta^2 + 2 \frac{F}{E}\delta + \frac{G}{E}}{DA/E} \right) d\delta$$

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

portanto, escreve-se:

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

onde:

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

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:

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

Substituindo A e D, obtêm-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  $J(\gamma)$ , 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  $J(\gamma)$ , 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  $\alpha$  e  $\beta$  foram expressas em termos dos desvios padrões das distribuições dos colimadores e do mosaico; portanto, substituiu-se  $\alpha_i = a_i / 2\sqrt{2\ln 2}$  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

$$W' = \frac{1}{2\sqrt{2\ln 2}} \sqrt{\frac{a_1^2 + a_2^2}{4} + b^2}$$

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

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

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 ---  $\alpha' = \alpha_e / 2\sqrt{2\ln 2}$ , 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 CTBOL - CONSTANTE DE BOLTZMANN
C TZERO - ESPESURA DO CRISTAL
C B - AMPLITUDE DE ESPALHAMENTO COERENTE
C TEMPD - TEMPERATURA DE DEBYE
C Q - FUNCAO DE DEBYE
C BETA - LARGURA DO MOSAICO DE CRISTAL
C BETAA2 - FATOR QUE CONSIDERA OS COLIMADORES
COMMON FNEG,F2,DP,EMI,FLN,BETR,ALAM,TZERO,BFTAA2
DP=3.2603*10.**(-8)
FNEG=0.55503*10.**22
CTEPL=6.625*10.**(-27)
CTBOL=1.38*10.**(-16)
TEMPD=295
EMEP=12.0487*10.**(-23)
PI=3.1415926
TZERO=1.513
B=.84*10.**(-12)
11 READ 1005,TEMPD,Q,BETA,BFTAA2
BETR=BETA*PI/180.
PRINT 1111,TEMPD,Q,BETA
PRINT 1002
DO 10 NEP=1,5
FLN=NEP
EMEG=6.*CTEPL**2/(EMEP*CTBOL*TEMPD)*(FLN/(2=)4P))**2
1*(.25*(TEMPD/TEMPD)**2*Q)
4F(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+(TEMPD/TEMPD)**2*Q)
EMI=4.44024/(10.*10.)*(.3898/F**.5+.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.*EMEG)
CALL INGHF(20,HINT)
PRINT 1001,NEP,ALAM,EMI,F2,EMEG,HINT
10 CONTINUE
GO TO 11
1001 FORM (6(2X,F14.8))
1002 FORMAT(8X,3HNEP,12X,6HLAMBDA,13X,2HMI,15X,2HF?,13X,1H
1M,11X,8HINTEGRAL)
1005 FORMAT(5E14.8)
1111 FORMAT(1H ,6HTEMPD=,F14.8/1H ,2HQ=,F14.8/1H ,5HBETA=F
14.8//)
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 HERR (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, BETAA?

DDP=DP\*10.\*\*8

SENTET=ALAM/(2.\*DDP)

COSTET=(1.-SENTET\*SENTET).\*\*.5

A=FMI\*TZERO/SENTET

D=8.\*FNEG\*\*2\*FFE\*DP\*\*3\*SQRT( LOG(2.))/(SQRT(3.1416)\*E  
141\*FNEP\*\*3\*BETA)\*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(-BETAA2\*X\*X)

RETURN

END

BIBLIOCRAFIA

- (Ab66) Abreu, H.A.M. de, Publicação IEA nº 125 (1966).
- (Als63) Als-Nielsen, J., Dietrich, O., RISO Report nº 61 (1963).
- (Ba48) Bacon, G.E. and Lowde, R.D., Acta Cryst. 1, 303 (1948).
- (Ba62) Bacon, G.E., Neutron Diffraction, 2nd edition, Oxford University Press (1962).
- (Be37) Bethe, H.A. and Placzek, G., Phys. Rev. 51, 450 (1937).
- (Be64) Bernabei, A., BNL 860 (T-344) (june 1964).
- (Bi64) Bianchini, F.G., Abreu, M., Amaral, L.Q. and Martins, O.W., Publicação IEA 78 (1964).
- (Bj61) Bjerrum Møller, H. Shore, F.J. and Sailor, V.L., Rev. Sci. Instr. 32, 654 (1961).
- (Bl33) Blake, F.C., Rev. Mod. Phys, 5 (1933) 169.
- (Bl61) Blinowski, K. and Sosnowski, J., Nucl. Instr. Methods 10, 289 (1961).
- (Bo53) Borst, L.B. and Sailor, V.L., Rev. Sci. Instr. 24, 141 --- (1953),
- (Br36) Breit, G., and Wigner, E.P., Phys. Rev., 49, 519 (1936).
- (Br47) Brill, T. and Lichtenberger, H., Phys. Rev. 72, 585 (1947).
- (Br59) Brockhouse, B.N., Rev. Sci. Instr. 30, 136 (1959).
- (Br66) Bröcker, B., Atomkernenergie 11, 381 (1966).
- (Ca50) Cassels, J.M., Progress in Nuclear Physics, edited by O.R. Frisch (Butterworth-Springer, London, 1950), Vol. 1, p. 185.
- (Co35) Compton, A.H. and Allison, S.K., X-rays in Theory and Experiment (D. Van Nostrand Company, Inc., New York, 1935), 2nd ed., p. 714.
- (Di64) Dietrich, O.W. and Als-Nielsen, J., RISO Report nº 73, (1964)
- (Di65) Dietrich, O.W. and Als-Nielsen, J., Acta Cryst. 18, 184, (1965).

- (DN60) Directory of Nuclear Reactors, IAEA, Vienna III(1960)25.
- (Do64) Domenici, M., Zucca, T., Rapporto Sorin 44 (1964).
- (Du35) Dunning, J.R., Pegran, G.B., Fink, G.A., Mitchell, D.P. - and Segré, E., Phys.Rev.48, 704 (1935).
- (Du59) Duggal, V.P., Nucl. Sci. Eng., 6, 76, 1959.
- (Fe47) Fermi, E., Marshall, J. and Marshall, L., Phys.Rev. 72, 193 (1947).
- (Fe47-a) Fermi, E. and Marshall, L., Phys. Rev. 71, 666, (1947).
- (Fo50) Fowler, I.L. and Tunncliffe, P.R., Rev.Sci. Instr. 21, 734 (1950).
- (Fu67) Fulfaro, R., Stasiulevicius, R., Publicação IEA nº 150 (1967).
- (Go58) Gould, F.T., Columbia University CU-179 (1958).
- (Go60) Gould, F.T., Taylor, T.I., Havens, Jr., W.W., Rustad, B.M., Melkonian, E., Nucl. Sci. and Eng., 8 (1960) 453.
- (Ha58) "Handbook of Chemistry and Physics", 40<sup>th</sup> ed., Chemical - Rubber Pub. Co. (1958).
- (Ha59) Haas, R. and Shore, F.J., Rev.Sci. Instr. 30, 17 (1959).
- (He67) Herdade, S.B., Amaral, L.Q., Rodriguez, C., and Vinhas, L.A., Publicação IEA 136 (1967).
- (Ho55) Holm, M.W., Phillips Petroleum Cie, Rep. IDO 16115, (1955).
- (Ho57) Holm, M.W., Phillips Petroleum Cie, Rep. IDO 16399, (1957).
- (Ho64) Holmryd, S., Sköld, K., Pilcher, E. and Larsson, K.E., Nucl. Instr. and Methods, 27, 61 (1964).
- (Hu50) Hurst, D.G., Pressesky, A.J. and Tunncliffe, P.R., Rev. Sci. Instr. 21, 705 (1950).
- (Hu53) Hughes, D.J., Pile Neutron Research, Addison Wesley Publishing Company (1953).
- (Hu58) Hughes, D.J., Schwartz, R.B., BNL-325 2<sup>nd</sup> ed. "Barn Book" (1958).

- (Iy65) Iyengar, P.K., Soni, J.M., Navarro, Q.O., Pineda, V.H., Natera, M.G., Lee, T.C., Marsongkohadi, J. Song and Nimwanadon, Philippine Atomic Research Center, Report PAEC-IPA(D) PH 652 (May 1965).
- (Ja58) James, R.W., "The Optical Principles of the Diffraction of X-Rays" (G. Bell and Sons, Ltd., London, 1958).
- (Jo63) Jones, Ian R., Lawrence Radiation Laboratory (Livermore) Rept. UCRL-7611, December (1963).
- (Ke66) Kelber, Charles N., Nuclear News, 9, 22, (May 1966).
- (La39) Lamb Jr., W.E., Phys. Rev. 55, 190 (1939).
- (La55) Landon, H.H., Phys. Rev., 100, 1414 (1955).
- (Le68) Leser, J., tese de mestrado apresentada ao Instituto Tecnológico de Aeronáutica em dezembro de 1968.
- (Ly57) Lynn, J.E., and Rae, E.R., J. Nucl. Energy 4, 418 (1957).
- (Ma59) Marshall, W. and Stuart, R.N., Lawrence Radiation Laboratory (Livermore) Rept. UCRL-5568, April 1969.
- (Mc52) McReynolds, A.W., Phys. Rev. 88, 958, (1952).
- (Mc54) McReynolds, A.W., and Andersen, E., Phys. Rev. 93, 195 (1954).
- (Mo59) Moore, J.A., Rush, J., and Rustad, B.M., Bull. Am. Phys. Soc. 4, 245 (1959).
- (OC61) O'Connor, D.A., Sosnowski, J., Acta Cryst., 14, 292, 1961.
- (Pa57) Pattenden, M.J. and Easton, A.H., UKAEC Report Acre MP/R 2251 (1967).
- (Pe62) Penteado F9, A.C., Souza Santos, M.D. de, "Programming - and Utilization of Research Reactors", IAEA, Vienna Academic Press 2 (1962) 397.
- (P151) Placzek, G., Mijboer, B.R.A., and Van Hove, L., Phys. Rev. 32, 392 (1951).
- (P154) Placzek, G., Phys. Rev. 93, 895 (1954).
- (Po66) Popovici, M. and Gelberg, D., Nucl. Instr. Methods 40, 77 (1966).

- (Po68) Popovici, M., Gheorghiu, Z. and Gelberg, D., Institute for Atomic Physics, Bucharest, Romania, FN-34 (1968).
- (Ri57) Ringo, G.R., Handbuch der Physik, Vol. XXXII, 552 (1957).
- (Ro48) Rose, M.E., and Shapiro, M.M., Phys. Rev. 74, 1853 (1948).
- (Ro60) Roberts, J.K., Heat and Thermodynamics, 5 th ed., p.537, Interscience Publish., Inc. (1960).
- (Sa56) Sailor, V.L., Foote Jr., H.L., Landon, H.H., and Wood, R. E., Rev. Sci. Instr. 27, 26 (1956).
- (Sa60) Safford, G.J., Taylor, T.I., Rustad, B.M., and Havens Jr., W.W., Phys. Rev. 119, 1291 (1960).
- (So58) Souza Santos, M.D. de, Toledo, P.S. de, P/2274, Proc. of - the 2<sup>nd</sup> International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, UN, Geneva, 10 (1958) 259.
- (Sp60) Spencer, R.R., Smith, J.R., Nucl.Sci. Eng. 8, 393 (1960).
- (St47) Sturm, W.J., Phys. Rev. 71, 757 (1947).
- (St68) Stasiulevicius, R. e Fulfaro, R., Ciência e Cultura, 20 (2) (1968) 130.
- (Ta56) Taylor, T.I., and Havens Jr., W.W., "Neutron Spectroscopy and Neutron Interaction in Chemical Analysis" in Physical Methods in Chemical Analysis, Vol.III (Walter C. Berl, Academic Press 1956).
- (Vi67) Vinhas, L.A., Herdade, S.B., Rodriguez, C. e Amaral, L.Q., Publicação IEA n° 152, pag. 83 (1967).
- (Wa60) Wajima, J.T., Rustad, B.M. and Melkonian, E., Jour. Phys. Soc. Japan 15, 630, (1960).
- (We44) Weinstock, R., Phys. Rev. 65 (1944) 1.
- (We58) Weil, J.W., Nuclear Engineering Handbook, edited by H. Etherington (McGraw - Hill Book Co., Inc. 1958) Sec.6, pg.48.
- (We67) Wenzel, R.G., Fulfaro, R. e Stasiulevicius, R., Publicação IEA n° 152, 9 (1967)
- (Za67) Zachariasen, W.H., "Theory of X-Ray Diffraction in Crystals" (Dover Public., Inc., New York, 1967).

- (Zi47) Zinn, W.H., Phys. Rev. 71, 752 (1947).
- (Zi67) Zimmerman, R.L., Amaral, L.Q., Fulfaro R., Mattos, M.C., Abreu, M. and Stasiulevicius, R., Nucl. Physics A95, 683 (1967).