



F 896 - Monografia

### Medidas de transmitância para o experimento Neutrinos Angra

Aluna: Ohana Benevides Rodrigues - 095909

E-mail: ohana.b.rodrigues@gmail.com

Prof. Ernesto Kemp E-mail: kemp@ifi.unicamp.br

Laboratório de Léptons Departamento de Raios Cósmicos e Cronologia Instituto de Física Gleb Wataghin Universidade Estadual de Campinas

> Campinas, SP Junho 2014

### Agradecimentos

Gostaria de agradecer primeiramente ao meus pais, Andrea de Fátima Benevides e Luis Cláudio Rocha Rodrigues, por sempre me apoiarem e bancarem, tanto financeiramente quanto emotivamente, meus sonhos. À minha família, principalmente às minhas irmãs Natasha Rodrigues, Maria Eduarda Rodrigues e Sophia Caldeira, e à minha avó Wallenir Rocha. Ao meu professor orientador, o Professor Doutor Ernesto Kemp, pelas conversas, orientações e ensinamentos.

Agradeço às pessoas que, com a minha mudança para Campinas, se tornaram a minha família, meus amigos, Andre Fahl, Adinei Hercule, Bruno Miguez, Carlos Sato, David Girardelli, Damaris Maimone, João Diniz, Jefferson Araújo, Katia Muta, Luis Miranda, Larissa Gaydutschenko, Marie Mezher, Marcos Errada, Mônica Nunes, Raquel Lameiras, Robert Gower, Rebecca Sophia, Thallis Santos, Thales Vieira e a todos aqueles que participaram mas não consigo me lembrar no momento.

Gostaria de agradecer especialmente aos amigos Luis Fernando Gomez, Paula Casagrande e Marina Vasques pelo suporte integral durante a maior parte da minha graduação.

Agradeço a todos os professores que tanto me ensinaram durante os anos de minha graduação, especialmente aos Professores Doutores: Newton Cesário Frateschi, Arlene Cristina Aguilar, David Mendez Soares, Marcos Cesar de Oliveira, Professor Doutor Orlando Peres, Richard Landers e Rickson Mesquita.

Gostaria de agradecer ao amigo Carlos Sato pela participação ativa na produção das soluções e medidas feitas nesse trabalho.

Gostaria de agradecer a gentil colaboração do Professor Doutor David Mendes Soares e de sua aluna de graduação Paula Simões Casagrande no planejamento do eletrodo, parte final deste trabalho. O eletrodo foi produzido no Laboratório de Nanoestruturas e Interfaces (LNI) do IFGW com a caridosa ajuda do técnico Luiz Orivado Bonugli, a quem também devo um agradecimento.

Agradeço aos funcionários e professores do IFGW. Agradeço também as agências de fomento FINEP e FAPESP. Além, é claro, de toda a colaboração do projeto Neutrinos Angra, em especial ao professor João dos Anjos, chefe da colaboração.

## Biografia

Nascida em 15 de Abril de 1991, Ohana Benevides Rodrigues sempre se interessou por livros de ficção. Ao ingressar no ensino médio, se apaixonou por física através das aulas ministradas pela professora Daiara Faria. Ingressou no curso de Física da UNICAMP em 2009. Em 2010 conheceu o grupo de léptons, onde começou a cooperar no projeto Pierre Auger. Em 2012 começou a estudar neutrinos de reatores com o projeto Neutrinos Angra, no qual está até a data presente.

### Resumo

Reatores nucleares constituem uma copiosa fonte de antineutrinos, cujo espectro é determinado pelo decaimento beta dos isótopos radioativos presentes no combustível nuclear. A medida que o combustível é consumido sua composição isotópica é alterada, com reflexos diretos no espectro de antineutrinos. Desse modo, detectores de antineutrinos podem ser aplicados no monitoramento da composição isotópica do combustível de reatores nucleares e da taxa de consumo deste combustível de uma forma não intrusiva e independente de informações do operador da usina nuclear.

Diante desse panorama o projeto Neutrinos Angra tem desenvolvido um detector não inflamável, que pode ser instalado em distâncias de dezenas de metros do núcleo do reator de Angra II. Para atender os requisitos de segurança, esse é um detector baseado em Água + Gadolínio, onde esse último é utilizado de forma a aumentar a seção de choque para nêutrons gerados por decaimento beta inverso. Um dos desafios tecnológicos de criar um detector como esse se encontra em determinar a melhor concentração de Gadolínio em água, tal que a transmitância e a captura de nêutrons sejam maximizadas.

Nesse trabalho, foram realizadas medidas da transmitância de luz, em soluções de Gadolínio, em frequências que abrangem desde o ultravioleta até a faixa do visível. O teste foi realizado utilizando concentrações da solução de Gadolínio em água entre 0,25% e 1,0% (massa de Gadolínio por massa de água).

Em perspectivas futuras, visa-se projetar um detector que seja capaz de determinar a concentração de Gadolínio nas soluções citadas acima, afim de utilizá-lo na montagem e monitoramento do detector de antineutrinos.

### Abstract

Nuclear reactors are an abundant source of anti-neutrinos, whose spectrum is determined by the beta decay of radioactive isotopes in the nuclear fuel. As the fuel is consumed, their isotopic composition is altered, with direct consequences on the spectrum of anti-neutrinos. Thus, detection of anti-neutrinos can be applied in monitoring the isotopic composition of fuel in nuclear reactors and their rate of consumption, on a non-intrusive and independent way from the nuclear plant operator information.

The Neutrinos Angra project has been developing a non-inflammable detector, that can be instaled in distances less than a hundred o meters from the reactor core of Angra II. To achieve the safety criteria, this was designed as a water + Gadolinium based detector. The Gadolinium is used to increase the cross section to neutrons that are created from the  $\beta$ -inverse decay. One of the technological challenges to build this kind of detector is to determine the better concentration of Gadolinium in water so the transmittance and neutrons capture are optimized.

In this work, we measured light transmittance, in Gadolinium solutions, with the frequences range from ultraviolet to the visible range. The test was done with the folow concentrations of gadolinium solutions in water: 0,25%, 0,5%, 0,75% and 1% (of mass o gadolinum per mass o water).

In future prospects, we plan to project a detector that be able to determine the Gadolinum concentration in the solutions listed above, so we can use it to build and monitor the antineutrinos detector.

# Sumário

Introdução p. 9					
1	Reatores PWR				
	1.1	O reator	p. 11		
	1.2	O combustível nuclear	p. 12		
2	Rea	ções de fissão nuclear em reatores PWR	p. 14		
	2.1	A energia do núcleo	p. 14		
	2.2	A fissão dos núcleos de Urânio	p. 15		
3	Neu	trinos	p. 17		
		3.0.1 Espectro de neutrinos de reator	p. 19		
4	O experimento Neutrinos Angra				
	4.1	O alvo	p. 22		
	4.2	Veto interno	p. 23		
	4.3	Veto externo	p. 23		
	4.4	Detectando antineutrinos	p. 24		
		4.4.1 Efeito Cherenkov	p. 24		
		4.4.2 Captura de nêutrons pelo Gadolínio	p. 25		
	4.5	A fotomultiplicadora - <i>PMT</i>	p. 26		

5	Med	lidas de	transmitância em soluções aquosas de Gadolínio	p. 30
	5.1	A nece	essidade das medidas de Transmitância	p. 30
	5.2	As sol	uções de Gadolínio	p. 31
		5.2.1	$O \ GdCl_3 \bullet 6H_2O$	p. 31
		5.2.2	A produção das amostras	p. 31
	5.3	Transn	nitância	p. 34
		5.3.1	Espectrofotômetros	p. 35
6	As n	nedidas	de transmitância	p. 37
7	Con	clusão		p. 40
8	Pers	pectiva	s futuras	p. 41
Re	ferên	cias Bil	bliográficas	p. 44

### Introdução

A proposta de construção de um detector de antineutrinos no Brasil surgiu inicialmente em 2004, durante uma conferência realizada em Niigata, chamada *"III Workshop on future Low-Energy Neutrino Experiments"*. A proposta surgiu quando estava sendo estabelecido quais seriam as grandes colaborações internacionais que realizariam as medidas de precisão do ângulo de mistura  $\theta_{13}$  (um dos últimos parâmetros descobertos que descrevem a oscilação de neutrinos).

O complexo nuclear de Angra dos Reis era considerado favorável à esse tipo de experimento devido a uma combinação de fatores, entre eles a proximidade com o Morro do Frade, que serviria de blindagem contra radiação cósmica, reduzindo os erros sistemáticos. (1)

Entretando, as colaborações internacionais focalizaram esforços e recursos em dois grande experimentos: Double CHOOZ (França) e Daya Bay (China). Essa escolha foi feita por se tratarem de experimentos cujos processos estavam em andamento. O grupo brasileiro possui participação direta no experimento Double CHOOZ.

A primeira indicação de um ângulo de mistura  $\theta_{13}$  diferente de zero foi medida pelo experimento Double CHOOZ. A primeira divulgação de  $\theta_{13}$  foi realizada na conferência "6th International Workshop on low energy neutrino", em Novembro de 2011. A segunda divulgação aconteceu através da série de tv americana "The Big Bang Theory", no episódio "The Speckerman Recurrence", em Dezembro de 2011. Veja a imagem do episódio na figura 1. A publicação oficial do resultado foi feito em Março de 2012, na PRL, cujo título foi "Indication for the disappearance of reactor electron antineutrinos in the Double Chooz experiment". (2).



Figura 1: Imagem da série de tv "The Big Bang Theory", episódio "The Speckerman Recurrence", no qual os resultados de  $\theta_{13}$  foram divulgados.

Sendo assim, o experimento Neutrinos Angra não foi descontinuado, mas sofreu uma mudança de direcionamento, focando no monitoramento do reator e no consumo de combustível nuclear através da detecção de antineutrinos.

Atualmente o projeto está em processo de montagem, sendo que vários detalhes ainda estão em fase de estudo e análise. Um dos detalhes em fase de estudo é a concentração da solução de Gadolínio em água que deve ser utilizada no alvo, afim de otimizar os parâmetros detectados.

### 1 Reatores PWR

### 1.1 O reator

Os reatores das usinas Angra I e Angra II são do tipo PWR (*Pressurized water reactor - Reator de água pressurizada*). Pelo menos metade da energia elétrica nuclear gerada no mundo é gerada em reatores PWR. Nesse tipo de reator, primeiramente têm-se calor sendo produzido no núcleo atráves de fissão do combustível nuclear. Esse calor é utilizado para aquecer água, que irá gerar eletricidade. Essa água circula por 3 circuitos. No primeiro, água pressurizada à 15 MPa entra em contato com o núcleo e absorve o calor ali gerado, chegando à uma temperatura de cerca de 315°C. A água do primeiro circuito entra em contato indireto com água do segundo circuito, fazendo-a evaporar. Esse vapor d'água está a 275°C e 6 MPa e é esse vapor que gira a turbina que aciona o gerador de eletricidade. No último circuito, utiliza-se água a temperatura ambiente (geralmente de um rio, lago ou oceano), para resfriar e transformar o vapor que sai da turbina em água novamente. A água é devolvida à sua fonte levemente aquecida. O esquemático desse tipo de reator pode ser visto na figura 1.1. (3)



Figura 1.1: Esquemático do reator nuclear PWR. (4)

### 1.2 O combustível nuclear

Em usinas PWR, é utilizado como combustível, basicamente, Urânio enriquecido, sendo composto por 96% de  $^{238}$ U e 4%  $^{235}$ U.

Originalmente, o Urânio é extraído de um minério chamado uranita ( $UO_2$ ,  $U_3O_8$ ). Em seguida, o Urânio é concentrado na forma de um sal amarelo chamado *yellowcake*, e então transformado no gás hexa-fluoreto de Urânio, que passa pelo primeiro processo de enriquecimento. Posteriormente, o Urânio é novamente convertido ao estado sólido na forma de um pó e moldado em pastilhas de  $UO_2$  que serão inseridas em varetas. Essas varetas são a forma final do combustível nuclear.

Atente ao fato de que, na natureza, as proporções são de 0,72% para o <sup>235</sup>U e 99,27% para o <sup>238</sup>U e que é no processo de enriquecimento que há o aumento na concentração de <sup>235</sup>U.



Figura 1.2: Uranita. (5)



Figura 1.3: Barril de yellowcake (6)



Figura 1.4: Pastilhas de UO<sub>2</sub>. (7)

## 2 Reações de fissão nuclear em reatores PWR

### 2.1 A energia do núcleo

A energia nuclear é a energia que é armazenada no núcleo dos átomos. A massa de um núcleo atômico é diferente da soma da massa de seus constituintes. A energia de ligação do núcleo atômico é a diferença entre a massa do núcleo e a soma da massa de seus contituintes. Quando a energia de ligação é maior que zero, o processo de fissão é exotérmico. Quando a energia de ligação é menor que zero, o processo de fissão é endotérmico. (8) Veja o exemplo abaixo:

Considere as seguintes massas:

(Massa do núcleo de Hélio)

$$(M_{He}) = 3728,75MeV/c^2 \tag{2.1}$$

(Massa do próton livre)

$$(m_p) = 938,27MeV/c^2 \tag{2.2}$$

(Massa do nêutron livre)

$$(m_n) = 939,57 MeV/c^2 \tag{2.3}$$

$$2m_p + 2m_n = 3755,68MeV/c^2 \tag{2.4}$$

Observe que a soma das massas dos constituintes do núcleo de Hélio é maior que a massa do núcleo de Hélio. Ou seja, o processo de fissão do núcleo de Hélio é endotérmico. Para obter energia nos reatores nucleares, fissiona-se núcleos pesados (como Urânio) em núcleos mais leves (como Kriptônio e Bário) em um processo exotérmico que gera tipicamente algo em torno de  $1,6x10^{-11}$  J/fissão.

### 2.2 A fissão dos núcleos de Urânio

No processo de fissão, um núcleo de <sup>235</sup>U absorve um nêutron do meio, se tornando <sup>236</sup>U, que é instável e sofre uma fissão nuclear ao dividir-se em fragmentos não necessariamente idênticos. Nesse processo, energia é liberada na forma de energia cinética dos núcleos produzidos (núcleos filhos) e de radiação  $\gamma$ . Nesse processo também há a produção de nêutrons. Os núcleos filhos são mais leves, mas possuem excesso de nêutrons. Sendo assim, os núcleos filhos sofrem decaimento  $\beta$ , emitindo um elétron e um antineutrino eletrônico. Por fim, os núcleos finais sofrem um rearranjo interno de seus constituintes, liberando raios  $\gamma$ . Os nêutrons emitidos na fissão do <sup>236</sup>U atingem outros núcleos, fazendo-os sofrerem fissão, gerando assim um processo em cadeia. (3)

Já o <sup>238</sup>U absorve um nêutron, sofre decaimento  $\beta$ , gerando um núcleo de Neptúnio (<sup>239</sup>Np), que sofre decaimento  $\beta$  e tem como produto final um núcleo que Plutônio (<sup>239</sup>Pu). A partir de então o <sup>239</sup>Pu passa por um processo similar ao <sup>235</sup>U.



Figura 2.1: Percentual de núcleos formados após a fissão dos isótopos <sup>235</sup>U, <sup>238</sup>U, <sup>239</sup>Pu e <sup>241</sup>Pu.

## 3 Neutrinos

O neutrino é uma das partículas elementares que formam toda a matéria existente, segundo o modelo de partículas mais aceito na atualidade: o modelo padrão. A família dos neutrinos é composta por um neutrino e um antineutrino associado a cada lépton, totalizando seis partículas: o neutrino tauônico, o neutrino muônico, o neutrino eletrônico e seus respectivos antineutrinos. Neste trabalho estudaremos especificamente o antineutrino eletrônico, que é produto da fissão nuclear. (9)

A primeira hipótese da existência do neutrino surgiu em 1930 numa tentativa de explicar o porque as medidas de decaimento  $\beta$  eram diferentes do esperado. Na época, o modelo supunha que no decaimento  $\beta$  havia a emissão de um elétron, com núcleo resultante tendo acréscimo de uma unidade no número atômico. (3)

Se no decaimento houvesse a emissão apenas de um elétron, esperava-se que o espectro de emissão resultante fosse um espectro de linha. O que se observa experimentalmente é um espectro contínuo (figura 3.1), sugerindo assim um decaimento em duas partículas, e não apenas em uma. (9)



Figura 3.1: Espectro do életron emitido em um decaimento  $\beta$ , ocorrido em um núcleo de Bismuto. (10)

Pauli sugeriu então que no decaimento  $\beta$  haveria a emissão de um elétron e de uma outra partícula cuja massa fosse muito pequena e a carga fosse neutra. A princípio nomeou-se essa partícula de nêutron. Em 1934 Fermi desenvolve a teoria para o decaimento  $\beta$ , considerando uma terceira partícula e a nomeia neutrino (11).

Por se tratar de uma partícula extremamente pouco interagente, a detecção dos neutrinos só foi possível em 1950, com o surgimento dos primeiros reatores nucleares. Os reatores nucleares são uma copiosa fonte de antineutrinos, como será mostrado nos capítulo subsequentes. A primeira detecção de neutrinos foi realizada em 1956 por Clyde Cowan e Frederick Reines e documentada em um artigo publicado na revista Science com título: *"Detection of the Free Neutrino: a Confirmation"*. (12)

O modelo padrão descreve o decaimento  $\beta$  como o decaimento de um nêutron tendo como produtos um próton, um elétron e um antineutrino eletrônico. O decaimento é intermediado por um bóson W<sup>-</sup> (Partícula intermediadora da força fraca). O diagrama de Feynman do decaimento pode ser visto na figura 3.2. (9)



Figura 3.2: Diagrama de Feynman do decaimento  $\beta$ . (13)

#### 3.0.1 Espectro de neutrinos de reator

Como mencionado na seção anterior, um dos produtos finais mais abundantes da fissão nuclear é o antineutrino. O antineutrino é pouco interagente o suficente para ser observado fora do reator. Assim sendo, é possível medir nas imediações da usina um fluxo de antineutrinos. Este fluxo será proporcional ao número de fissões que estarão ocorrendo dentro do reator no momento da medida. Em uma usina do tipo de Angra II, os principais responsáveis pela emissão de antineutrinos são o <sup>238</sup>U, <sup>235</sup>U, <sup>239</sup>Pu e o <sup>241</sup>Pu. Em média, cada núcleo fissionado gera 6 antineutrinos ao final da cadeia. O espectro de neutrinos para cada um desses elementos pode ser visto na figura 3.3. (14)



Figura 3.3: Fluxo de antineutrinos considerado para os elementos fissionáveis mais comuns do combustível nuclear. (14)

### 4 O experimento Neutrinos Angra



Figura 4.1: Foto do contêiner do experimento Neutrinos Angra ao lado do reator da usina Angra II. (15)

O projeto Angra Neutrinos é uma colaboração composta por 8 instituições: CBPF, UNI-CAMP, UFABC, UFJF, UFBA, UEFS e PUC-RJ.

A princípio o objetivo do projeto Neutrinos Angra era medir o ângulo  $\theta_{13}$ . Por questões de redirecionamento de recursos internacionais, o projeto sofreu modificações em sua meta final, tendo por novo objetivo produzir um detector de antineutrinos capaz de monitorar com precisão de 1% a potência térmica gerada pelo reator usando a taxa de neutrinos medida para tanto e determinar a composição isotrópica do combustível nuclear através da espectroscopia de neutrinos. Todas essas medidas serão realizadas na usina Angra II. Os novos objetivos do projeto o tornam ideal para ser introduzido às normas de verificação de salvaguardas estabelecidas pelo IAEA para a não-

proliferação de armas nucleares. (3)

A estrutura do experimento também foi alterada para poder se adequar as medidas de segurança da Eletronuclear (empresa subsidiária da Eletrobrás responsável pela operação e construção das usinas nucleares no Brasil). A primeira e pricipal mudança se deu no material proposto para ser o alvo do detector. A princípio seria usado cintiladores líquidos, que são substâncias inflamáveis. Esses, em caso de explosão, poderiam danificar a redoma de contenção da usina. O cintilador foi substituido por uma solução de água com  $GdCl_3 \bullet 6H_2O$  (Cloreto de Gadolínio Hexahidratado).

O detector é constituido pelas seguintes subestruturas: o alvo, o veto interno e o veto externo.

### **4.1 O alvo**



Figura 4.2: Alvo do projeto Angra Neutrinos. (15)

O alvo é volume central do detector, dedicado à detecção de neutrinos. O alvo possui a forma de um paralelepípedo com 1,3  $m^3$  de volume. O paralelepípedo é completamente preenchido com soluções de água e  $GdCl_3 \bullet 6H_2O$ . Essa solução aquosa é propícia para detecção de antineutrinos via decaimento  $\beta$ -inverso, representado na equação 4.1 (14). O Gd possui uma alta seção de choque para nêutrons. Quando o neutrino interage com os prótons da água, gera-se um

pósitron e um nêutron. O pósitron é gerado com uma energia entre 1 e 12 MeV e é facilmente detectável por se tratar de uma partícula carregada e estar em velocidades superiores a do luz no meio, gerando luz Cherenkov no meio. Já o nêutron é capturado pelo Gd e, na desexcitação, libera radiação  $\gamma$  totalizando 8 MeV.

$$\bar{v_e} + p \to e^+ + n \tag{4.1}$$



Figura 4.3: Esquemático das reações ocorridas dentro do detector.(9)

### 4.2 Veto interno

O veto interno é um paralelepípedo concêntrico ao alvo que é preenchido apenas com água ultra-pura e 8 fotomultiplicadoras (uma em cada vértice). As do vértice superior apontadas para baixo e as do vértice inferior apontadas para cima. Quando alguma partícula carregada passa e deixa um sinal no veto, o sistema contabiliza esse evento como não sendo um antineutrino, facilitando a análise de dados.

#### 4.3 Veto externo

O veto externo é similar ao veto interno, com as fotomultiplicadoras dos vértices apontadas para as diagonais (2 apontado para a diagonal principal e 2 apontadas para diagonal secundária). O veto externo possui uma segunda função: a blindagem de nêutrons, por esses possuirem uma alta seção de choque com água.



Figura 4.4: Esquemático do detector do projeto Angra Neutrinos, com a distribuição de fotomultiplicadoras otimizada para maior captura de eventos. (15)

### 4.4 Detectando antineutrinos

A assinatura de um antineutrino é dada pela detecção em coincidência temporal do pósitron e do nêutron, dentro de uma janela de tempo. Ao interagir com os prótons do alvo, o antineutrino sofre um decaimento  $\beta$ -inverso, produzindo um nêutron e um pósitron. O sinal deixado pelo pósitron e pelo nêutron são dados por efeito Cherenkov e por captura de nêutrons pelo Gadolínio, respectivamente. Ambos os fenômenos serão melhor explicados a seguir.

#### 4.4.1 Efeito Cherenkov

O efeito Cherenkov foi primeiramente medido em 1956 por Pavel Alekseyevich Cherenkov. O fenômeno ocorre quando uma partícula carregada atravessa um meio dielétrico com uma velocidade maior que a velocidade de fase da luz nesse meio.

Ao passar pelo dielétrico com uma velocidade maior que a luz no meio, a partícula polariza o dielétrico, levando-o a um estado excitado. Na desexcitação, o dielétrico libera fótons na faixa do visível ao ultravioleta. Como a partícula se propaga mais rápido que a luz no meio, seu rastro forma um "cone" de fótons. Essa radiação é nomeada radiação Cherenkov. (14)

O espectro de radiação Cherenkov já corrigido considerando o espectro de absorção da água, para o detector de Angra, pode ser observado na figura 4.5. Observe também que o corte do gráfico foi feito tal que mostrasse apenas a faixa de visibilidade da fotomultiplicadora. As cores no gráfico correspondem aos seus respectivos comprimentos de onda.



Figura 4.5: Espectro de radiação Cherenkov corrigido considerando o espectro de absorção da água. (14)

#### 4.4.2 Captura de nêutrons pelo Gadolínio

O Gadolínio é um metal do grupo dos lantanídeos que se apresenta na natureza na forma sólida ou como sal. Possui uma alta seção de choque para nêutrons térmicos. Ao capturar um nêutron térmico, o Gadolínio passa por uma reestruturação de seus componentes nucleares, gerando raios  $\gamma$  que, em sua soma, possuem cerca de 8 MeV.

No experimento Neutrinos Angra, utilizamos o sal  $GdCl_3 \bullet 6H_2O$ , um composto solúvel que, ao ser misturado na água ultra-pura do alvo, aumenta a probabilidade de captura do nêutron térmico gerado no decaimento  $\beta$ -inverso e diminui a janela de tempo entre a detecção do pósitron e do nêutron. A diminuição da janela de tempo entre a detecção das duas partículas aumenta a confiabilidade do evento. A equação que descreve a captura do nêutron térmico pode ser vista na figura 4.2. Para mais informações sobre a captura de nêutrons térmicos por Gd, veja o artigo (16). A forma como a captura de nêutrons aumenta em função do percentual de Gadolínio em água pode ser visto na figura 4.6.



$$^{158}Gd + n \to ^{159}Gd + \gamma \tag{4.2}$$

Figura 4.6: Captura de nêutrons pelo Gadolínio por percentual de Gadolínio em água. (17)

Dentro do alvo, os raios  $\gamma$  produzidos na captura do nêutron sofrem efeito compton, tendo como produto elétons. Os elétrons produzem radiação Cherenkov (explicada na subseção anterior).

#### 4.5 A fotomultiplicadora - *PMT*

A fotomultiplicadora é o equipamento utilizado para realizar as medidas dos eventos de antineutrinos. A PMT converte a luz gerada por efeito Cherenkov em um pulso elétrico. Essa ferramenta consiste basicamente de um fotocatodo, diversos estágios de multiplicação (dinodos) alimentados por uma fonte de alta tensão e um ânodo para coletar os elétrons, como ilustrado pela figura 4.7. A PMT que será utilizada no detector de Angra é a Hamamatsu R5912, que pode ser vista na figura 4.8. Quando um fóton incide sobre o cátodo e existe uma probabilidade (que no



Figura 4.7: Esquema geral de uma fotomultiplicadora (18).

caso da R5912 é aproximadamente de 15% para fótons entre 300 nm e 550 nm) de este liberar um *fotoelétron*, ou seja um elétron liberado por efeito fotoelétrico. Essa probabilidade é chamada eficiência quântica da fotomultiplicadora. O gráfico de eficiência quântica da fotomultiplicadora R5912 por comprimento de onda pode ser visto na figura 4.9. Os elétrons gerados no fotocatodo são acelerados por um campo elétrico em direção ao primeiro dinodo onde estes se chocam arrancando elétrons secundários. Os elétrons resultantes do processo são novamente acelerados por outro campo elétrico até o segundo dinodo, onde se chocam e arrancam mais elétrons. Assim, esse processo se repete para todos os dinodos da fotomultiplicadora chegando ao anodo um número de elétrons muito superior, porém proporcional, ao que foi gerado no catodo por efeito fotoelétrico. Desse modo, pode-se observar que o *fator de ganho*, ou seja, quantos elétrons chegam ao anodo para cada fotoelétron emitido pelo catodo, depende de quantos estágios (dinodos) há na PMT e da tensão utilizada para acelerar os elétrons entre os dinodos. O efeito da tensão é ilustrado na figura 4.10 em um gráfico feito com a utilização de uma PMT R1398 (também da Hamamatsu), um cintilador plástico NE110 e uma fonte radioativa de Césio (*Cs*<sup>137</sup>).



Figura 4.8: Foto da fotomultiplicadora R5912 da Hamamatsu (retirada do site da empresa). (14)



Figura 4.9: Interpolação da eficiência quântica da fotomultiplicadora R5912.



Figura 4.10: Espectros de Césio ( $Cs^{137}$ ) para diferentes tensões na PMT. (14)

O sinal de saída da PMT é um sinal analógico cuja amplitude depende do número de fótons incidentes e do fator de ganho da fotomultiplicadora. É importante ressaltar que esse ganho é bem próximo da linearidade, ou seja: o sinal de saída é proporcional ao sinal de entrada. Existem outros parâmetros que devem ser estudados na PMT R5912, que será utilizada no detector do projeto, como a sensibilidade em função da posição no fotocatodo, a linearidade e o ganho, que devem ser testados experimentalmente para cada PMT utilizada. (14)

# 5 Medidas de transmitância em soluções aquosas de Gadolínio

### 5.1 A necessidade das medidas de Transmitância

Considerando as informações apresentadas nas últimas três seções, pode-se concluir que a boa propagação da radiação Cherenkov é de extrema importância para a execução do projeto. Sendo assim, os teste de transmitância para várias concentrações de Gadolínio em água possui relevância significativa para determinação da melhor concentração a ser utilizada no experimento, visando o ponto ótimo entre propagação da radiação Cherenkov e máxima captura de nêutrons.

### 5.2 As soluções de Gadolínio

#### **5.2.1 O** $GdCl_3 \bullet 6H_2O$



Figura 5.1: Imagem do  $GdCl_3 \bullet 6H_2O$  utilizado neste trabalho.

No experimento Neutrinos Angra será utilizado Gadolínio na forma de Cloreto de Gadolínio hexahidratado. O Cloreto de Gadolínio hexahidratado ( $GdCl_3 \bullet 6H_2O$ ) é um sal de coloração branca, higroscópico e hidrosolúvel. Sua utilização no experimento só é possível por sua propriedade hidrosolúvel. O composto possui massa molar de 371,7 g/mol e densidade 2.42 g/cm<sup>3</sup> a 25 °C. (19)

#### 5.2.2 A produção das amostras

Neste trabalho consideramos 5 concentrações diferentes: 1%, 0,75%, 0,5% e 0,25%. As porcentagens são de massa de Gadolínio por massa de água.

Por se tratar de uma substância higroscópica, o primeiro passo para a produção das soluções foi realizar a secagem do  $GdCl_3 \bullet 6H_2O$ , afim de garantir a precisão na concentração das soluções. A secagem precisa ser realizada deixando a amostra em uma câmara de aquecimento a vácuo, nunca ultrapassando 90 °C. A partir dessa temperatura, o composto começa a perder as moléculas de água, chegando a possuir apenas uma molécula a 210 °C ( $GdCl_3 \bullet H_2O$ ). Entre 270 °C e 330 °C, temos  $GdCl_3 + GdOCl$ , ou seja, o composto já perdeu todas as moléculas de água e começa a oxidar. A 445 °C, temos apenas GdOCl. O gráfico 5.2 mostra o como varia a massa do composto com a temperatura. As imagens da câmara de aquecimento à vácuo utilizada podem ser vistas na figura 5.3 e 5.4



Figura 5.2: Variação de massa de vários hidratos com a temperatura. A curva A corresponde ao  $ScCl_3 \bullet 6H_2O$ , a curva B ao  $NdCl_3 \bullet 6H_2O$ , a curva C ao  $SmCl_3 \bullet 6H_2O$  e, finalmente a **curva D ao**  $GdCl_3 \bullet 6H_2O$ . (20)



Figura 5.3: Câmara de aquecimento à vácuo utilizada.



Figura 5.4: Câmara de aquecimento à vácuo utilizada, com as barcas preenchidas com  $GdCl_3 \bullet 6H_2O$ , para secagem.

Após a secagem, é necessário produzir rapidamente as soluções afim de evitar que o  $GdCl_3 \bullet$  $6H_2O$  absorva água ambiente e prejudique a concentração da solução. Para diminuir as chances de a absorção de água acontecer, produz-se primeiramente a solução de maior concentração e obtêmse as outras soluções por dissolução da primeira. Ou seja, produz-se primeiramente a solução cuja concentração é 1%, retira-se uma dada quantidade dela e adiciona-se  $\frac{1}{4}$  desse volume de água ultra-pura, obtendo assim a solução de 0,75% de concentração, etc.

Concentração	1%	0,75%	0,5%	0,25%	
Massa de $GdCl_3 \bullet 6H_2O(g)$	0,9455	0,7091	0,4727	0,2364	

Tabela 5.1: Massa de  $GdCl_3 \bullet 6H_2O$  necessária para produzir soluções de 40 ml considerando todas as concentrações.

Concentração	1%	0,75%	0,5%	0,25%
Volume de solução de $GdCl_3 \bullet 6H_2O$ de 1% (ml)	40	30	20	10
Volume de água (ml)	0	10	20	30

Tabela 5.2: Volume de solução de 1% de gadolínio e volume de água ultra-pura necessários para produzir, por dissolução, soluções de 40 ml considerando todas as concentrações.

O método utilizado neste trabalho foi o da tabela 5.2. Ou seja, produziu-se 100 ml de solução de 1% e misturou-se frações dessa solução com água, da forma indicada na tabela 5.2.

#### 5.3 Transmitância

Transmitância é definido como a parcela da luz, considerando um comprimento de onda específico, que ultrapassa um determinado meio. Colocando de forma matemática:

$$T_{\lambda} = \frac{I}{I_0} = e^{-\sigma lN} \tag{5.1}$$

Onde  $T_{\lambda}$  é a transmitância para um dado comprimento de onda, *I* é a intensidade da luz após ultrapassar o meio,  $I_0$  é a luz que entra no meio,  $\sigma$  é a seção de choque de atenuação, *l* é a distância da amostra que a luz atravessa e *N* é a concentração da amostra. Observe que transmitância é uma grandeza adimensional. A equação 5.1 é chamada Lei de Beer-Lambert. (21)

#### 5.3.1 Espectrofotômetros

Espectrofotômetros são equipamentos capazes de medir o espectro de absorbância ou transmitância de uma dada amostra, na faixa de radiação que vai do ultravioleta próximo até o infravermelho próximo. Em espectrofotômetros pode-se usar amostras sólidas, líquidas ou gasosas, mas as mais comuns são as líquidas. Quando testes são realizados em amostras líquidas e gasosas na faixa do ultravioleta, deve-se tomar o cuidado de utilizar recipientes de quartzo, para que o recipente não absorva a luz e altere as medidas. (22)

Os espectrofotômetros são formados, de forma simplificada, por cinco componentes: fontes de radiação, monocromador, recipientes para conter as soluções, detectores e indicadores de sinal. Seu funcionamento básico consiste em um feixe que passa por um monocromador e incide na amostra que queremos analisar. Depois de passar pela amostra, mede-se a intensidade da luz restante e calcula-se a transmitância utilizando a lei de Beer-Lambert. Para mais detalhes veja (23).

Os espectrofotômetros podem ser divididos em dois tipo: o de feixe único e o de feixe duplo. A diferença entre os dois está na calibração de referência da amostra. O de feixe único compara a intensidade da luz antes e depois de a amostra ser inserida no espectrofotômetro. O de feixe duplo comparada a intensidade da luz de uma amostra de referência a e a amostra de teste. (23)

Neste trabalho, utilizou-se um espectrofotômetro de feixe único, com uma cubeta (recipiente que contém a amostra) de quartzo. Mais especificamente utilizou-se o Agilent 8453 UVvisible Spectroscopy System, modelo G1103A. Para mais detalhes, veja o manual do equipamento em (24). O esquemático do equipamento pode ser visto na figura 5.5. A imagem do equipamento pode ser vista na figura 5.6.



Figura 5.5: Sistema óptico do espectrofotômetro Agilent 8453. (24)



Figura 5.6: Imagem externa do espectrofotômetro Agilent 8453. (25)

### 6 As medidas de transmitância

Como mencionado nos capítulos anteriores, as medidas de transmitância foram realizadas em um espectrofotômetro Agilent 8453 UV-visible Spectroscopy System, modelo G1103A. O conjunto de medidas paras as quatros concentrações testadas pode ser visto na figura 6.1.



Figura 6.1: Transmitância por comprimento de onda para as concentrações de 0,25%, 0,5%, 0,75% e 1,0%.

Observe que na figura 6.1, o espectro vai do ultravioleta próximo ( $\sim 200 \text{ nm}$ ) até o infravermelho ( $\sim 950 \text{ nm}$ ). Observe também que, a medida que a concentração da solução aumenta, a transmitância diminui, e que essa diminuição é mais significativa na faixa do ultravioleta.

Considerando que a fotomultiplicadora possui visibilidade limitada do espectro eletromagnético (eficiência quântica), para a determinação da melhor concentração, fez-se a convolução dos dados de transmitância com a eficiência quântica da fotomultiplicadora modelo R5912. Veja o gráfico da convolução na figura 6.2.



Figura 6.2: Transmitância convoluída com a eficiência quântica da PMT R5912, para as concentrações de 0,25%, 0,5%, 0,75% e 1,0%.

Observe que, considerando os parâmetros eficiência quântica da fotomultiplicadora e transmitância, a eficiência varia de forma inversamente proporcional à concentração.

Por último, devemos considerar também o espectro de produção de luz Cherenkov. Dessa forma, consideramos na próxima análise a transmitância das soluções, a eficiência quântica da fotomultiplicadora usada no experimento e o espectro de produção de luz Cherenkov. O resultado pode ser visto na figura 6.3.



Figura 6.3: Transmitância convoluída com a eficiência quântica da PMT R5912 e com o perfil de luz Cherenkov, para as concentrações de 0,25%, 0,5%, 0,75% e 1,0%.

Observe que na figura 6.3, a eficiência ainda é inversamente proporcional à concentração, mas a diferença entre uma curva e outra diminui consideravelmente se comparado a figura 6.2, tornando a diferença de probabilidade de detecção média inferior a 1%.

## 7 Conclusão

Após todos os testes e análises de dados realizados no capítulo anterior, pode-se observar que a concentração da solução a ser utilizada no alvo do detector não é relevante, se considerado os parâmetros transmitância, eficiência quântica e o espectro de luz Cherenkov. Logo a determinação da melhor concentração deve ser feita considerando outros fatores que não cabem a este trabalho, como tempo médio de captura do nêutron pelo Gadolínio. Além do aumento da eficiência, aumentar a concentração de Gadolínio em água diminui o tempo de captura (pois aumenta o número efetivo de alvos). O tempo de captura ideal deve ser escolhido de forma a minimizar o ruído gerado por eventos correlacionados no tempo como, por exemplo, decaimento de múons.

## 8 Perspectivas futuras

Como visto nos capítulos anteriores, apesar da concentração não ser fator determinante para a propagação e detecção de luz, existem outros fatores que devem ser levados em conta para a aquisição de dados, como o tempo de captura.

Pelo fato de o  $GdCl_3 \bullet 6H_2O$  ser higroscópico e considerando a inviabilidade de produzir grandes quantidades de soluções em ambiente com umidade controlada, afim de evitar perda de precisão na concentração das soluções, surgiu a proposta de produzir-se um equipamento capaz de medir a concentração da solução no momento da produção, tal que fosse possível adicionar o composto na água do tanque até que o detector indicasse que foi atingido a concentração desejada.

Sendo assim, surgiu a proposta de utilização de um circuito eletrônico, no qual uma das partes seria um eletrodo que fosse colocado dentro da solução em fase de produção, tal que pudessemos medir a resistividade da solução. Para tanto, há a necessidade de realizar previamente a calibração do eletrodo, para que tenhamos acesso a curva de concentração por resistividade.

> C0 Iu Iu DC D AC 1 STM(0 1 100K V) C0 D AC 1 STM(0 1 100K) C0 D AC 1 STM(0 1 100K V) C0 D AC 1 STM(0 1 100K) C0 D AC 1 STM(0 1 10K) C0 D AC 1 STM(0 1 10K) C0 D AC 1 STM(0 1 10K) C0 D AC

O esquemático prévio do circuito do detector pode ser visto na figura 8.1.

Figura 8.1: Esquemático do circuito projetado para medição da resistência de soluções.

Como o projeto deve medir a resistência da solução em função da concentração de Gadolínio, não devemos permitir que durante o processo haja eletrólise da água. Logo, alguns cuidados

41

com o projeto do circuito devem ser tomados: Primeiramente, a solução precisa estar submetida a corrente alternada, e a alimentação nunca deve passar o valor de pico de 1V. Isso se deve ao fato de a água sofrer eletrólise a partir de  $\sim 1, 2V$ . O gráfico de oxidação/redução da água por tensão aplicada pode ser visto na figura 8.2.



Figura 8.2: Reações de coordenação da água por tensão aplicada.(26)

É necessário que o eletrodo seja produzido a partir de um metal pouco reagente, para reduzir ao máximo erros associados à oxidação e redução do metal do mesmo. No caso, utilizamos ouro. A área do metal do eletrodo também deve ser bem conhecida, já que resistência é inversamente proporcional a área. O eletrodo foi produzido por deposição de ouro em duas lâminas de vidro, utilizando uma máscara circular, tal que a superfície de ouro fosse circular e de área conhecida. A imagem do eletrodo pode ser vista na figura 8.3.



Figura 8.3: Imagem do eletrodo que será utilizado no projeto.

Outro elemento fonte de erros no circuito é a impedância capacitiva do eletrodo. A capacitância parasita do eletrodo é inversamente proporcional à frequência da alimentação. Logo, afim de reduzirmos a impedância capacitiva, utilizaremos a maior frequência possível no circuito (cerca de  $10^5$  Hertz).

O projeto ainda está na fase final de elaboração. Após essa fase, o montaremos e testaremos sua sensibilidade à concentração de soluções de cloretos. Os primeiros testes serão realizados com soluções de Cloreto de Sódio. Se confirmada a sensibilidade do equipamento, será realizada a calibração para soluções de Gadolínio com diferentes concentrações, produzidas em ambiente de atmosfera controlada.

## Referências Bibliográficas

1 ANJOS, J. C. et al. Angra dos reis reactor neutrino oscillation experiment. *Braz. J. Phys.*, v. 36, p. 1118–1123, 2006.

2 ABE, Y. et al. Indication of reactor ve disappearance in the double chooz experiment. *Phys. Rev. Lett.*, American Physical Society, v. 108, p. 131801, Mar 2012. Disponível em: <a href="http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.108.131801">http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.108.131801</a>.

3 BEZERRA, T. J. de C. *Estudo da Sensibilidade do Detector de Neutrinos do Projeto ANGRA aos Efeitos da Queima do Combustível Nuclear*. Dissertação (Mestrado), Campinas - Brasil, 2009. Dissertação de Mestrado.

4 PRESSURIZED Water Reactors. Disponível em: <a href="http://www.nrc.gov/reactors/pwrs.html">http://www.nrc.gov/reactors/pwrs.html</a>.

5 EL (segundo) elemento más escaso. Disponível em: <a href="http://cienciadesofa.com/2013/10/el-segundo-elemento-mas-escaso.html">http://cienciadesofa.com/2013/10/el-segundo-elemento-mas-escaso.html</a>>.

6 URANIUM Enrichment. Disponível em: <a href="http://geoinfo.nmt.edu/resources/uranium/enrichment.html">http://geoinfo.nmt.edu/resources/uranium/enrichment.html</a>>.

7 FCN Pastilhas. Disponível em: <http://www.inb.gov.br/ptbr/WebForms/interna2.aspx?secao\_id=58>.

8 WILLIANS, W. S. C. Nuclear and particle physics. Third edition. [S.l.: s.n.].

9 NUNES, M. G. *Estimativa das Contribuições do Sinal de Antineutrinos e Ruído Cósmico no Detector de Angra*. Dissertação (Mestrado), Rio de Janeiro- Brasil, 2011. Dissertação de Mestrado.

10 Neary, G. J. "the  $\beta$  -ray spectrum of radium e". *Royal Society of London Proceedings Series* A, v. 175, p. 71–87, mar 1940.

11 FERMI, E. Versuch einer theorie der -strahlen. Zeitschrift für Physik, v. 88, p. 161–177, 1934.

12 REINES, F.; COWAN, C. L. Detection of the free neutrino. *Phys. Rev.*, American Physical Society, v. 92, p. 830–831, Nov 1953. Disponível em: <a href="http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.92.830">http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.92.830</a>>.

13 BETA Negative Decay. Disponível em: <a href="http://en.wikipedia.org/wiki/Beta\_decay">http://en.wikipedia.org/wiki/Beta\_decay</a>>.

14 GONZALEZ, L. F. G. *Estudo da Resolução em Energia do Detector de Neutrinos do Projeto ANGRA para Medidas de Composição do Combustível Nuclear*. Dissertação (Mestrado), Campinas - Brasil, 2009. Dissertação de Mestrado. 15 NEW simulation of the Angra Neutrino Detector. Disponível em: <a href="http://indico.cern.ch/event/234536/session/1/contribution/86">http://indico.cern.ch/event/234536/session/1/contribution/86</a>>.

16 LEE YEONGDUK KIM, W. K. M.-S. K. J.-Y.; SUN, G.-M. Measurements of thermal neutron capture cross sections of low abundance stable isotopes. *Journal of the Korean Physical Society*, v. 59, p. 1932–1935, 2011.

17 JR, R. K. L. Experimental and Theoretical Studies of a Gadolinium-Water Neutron Detector for Cosmogenic Neutron Flux Measurements. Tese (Doutorado) — UNIVERSITY OF CALIFORNIA, 2008.

18 LEO, W. R. Techniques for nuclear and particle physics experiments: a how-to approach; 2nd ed. [S.1.: s.n.].

19 GADOLINIUM(III) Chloride Hexahydrate. Disponível em: <a href="http://www.americanelements.com/gdclx.html">http://www.americanelements.com/gdclx.html</a>.

20 WENDLANDT, W. W. The thermal decomposition of yttrium, scandium, and some rare-earth chloride hydrates. *J. Inorg. Nucl. Chem.*, v. 05, p. 118–122, 1957.

21 ULTRAVIOLET-VISIBLE (UV-Vis) Spectroscopy - Derivation of Beer-Lambert Law. Disponível em: <a href="http://pharmaxchange.info/press/2012/04/ultraviolet-visible-uv-vis-spectroscopy-">http://pharmaxchange.info/press/2012/04/ultraviolet-visible-uv-vis-spectroscopy-</a>

22 SPECTROPHOTOMETRY. Disponível em: <a href="http://www.nist.gov/pml/div685/grp03/spectrophotometry.cfm">http://www.nist.gov/pml/div685/grp03/spectrophotometry.cfm</a>>.

23 ESPECTROSCOPIA VISÍVEL E ULTRAVIOLETA. Disponível em: <a href="http://w3.ufsm.br/piquini/biomol09/espectroscopia\_UV\_Visivel.doc.">http://w3.ufsm.br/piquini/biomol09/espectroscopia\_UV\_Visivel.doc.</a>>.

24 AGILENT 8453 Spectrophotometer operator's Manual. Disponível em: <a href="http://www.chem.agilent.com/Library/usermanuals/Public/G1115-90042\_OperatorManual.pdf">http://www.chem.agilent.com/Library/usermanuals/Public/G1115-90042\_OperatorManual.pdf</a>>.

25 AGILENT 8453 Spectrophotometer. Disponível em: <a href="http://www.ecs.umass.edu/eve/facilities/equipment/Agilent8453resources.html">http://www.ecs.umass.edu/eve/facilities/equipment/Agilent8453resources.html</a>>.

<sup>26</sup> \* A. LOGADOTTIR, J. N. J. R. Electrolysis of water on (oxidized) metal surfaces. *Chemical Physics*, v. 319, p. 178–184, 2005.