

ALMA MATER STUDIORUM · UNIVERSITÀ DI BOLOGNA

---

Scuola di Scienze  
Corso di Laurea in Fisica

# Fattibilità della misura di cattura neutronica sugli isotopi dispari del gadolinio

Relatore:  
Dott. Cristian Massimi

Presentata da:  
Melinda Jasmine Sirio Li Calzi

Correlatori:  
Prof. Gianni Vannini  
Dott. Sergio Lo Meo

Sessione III  
Anno Accademico 2014/2015



# Abstract

In questo lavoro di tesi ci proponiamo di determinare lo spessore degli isotopi  $^{155}\text{Gd}$  e  $^{157}\text{Gd}$  in vista della misura della sezione d'urto di cattura neutronica presso la facility n\_TOF del CERN. La principale motivazione dell'esperimento è legata alla necessità di ottenere misure più accurate per le applicazioni ai reattori nucleari. Inoltre, i nuovi risultati, potranno essere sfruttati anche per applicazioni ai recenti sviluppi nella Terapia di Cattura Neutronica e per costruire nuovi rivelatori nell'ambito della ricerca del neutrino. La misura sarà effettuata nella prima area sperimentale EAR-1 di n\_TOF, equipaggiata con rivelatori, come per esempio gli scintillatori liquidi al benzene deuterato ( $C_6D_6$ ) particolarmente adatti per questi tipi di misura.

La sezione d'urto di questi due isotopi cambia di molti ordini di grandezza al variare dell'energia dei neutroni incidenti. Per questo motivo, lo studio effettuato in questa tesi ha mostrato che sono necessari due campioni altamente arricchiti per ogni isotopo da misurare: un campione estremamente sottile per energie del neutrone fino a 100 meV, e uno più spesso per energie maggiori. Inoltre per questi campioni sono stati determinati le densità areali necessarie per lo svolgimento dell'esperimento affinché avvenga il fenomeno di trasmissione dei neutroni.

# Indice

<b>Introduzione</b>	<b>4</b>
<b>1 Caratteristiche del Gadolinio e isotopi di Gadolinio</b>	<b>6</b>
1.1 L'elemento chimico Gadolinio . . . . .	6
1.2 Interazione con il neutrone . . . . .	8
1.3 Scelta degli isotopi $^{155}\text{Gd}$ e $^{157}\text{Gd}$ . . . . .	10
1.4 Il Gadolinio naturale . . . . .	16
1.5 Misure in Letteratura . . . . .	17
<b>2 Apparato Sperimentale</b>	<b>18</b>
2.1 Facility $n\_TOF$ . . . . .	18
2.1.1 Produzione del fascio di neutroni . . . . .	20
2.2 La tecnica del Time of Flight . . . . .	21
2.2.1 Monitor di flusso . . . . .	22
2.3 Rivelatori di cattura . . . . .	23
2.3.1 Total Energy Detector: $C_6D_6$ . . . . .	24
<b>3 Calcolo dello spessore</b>	<b>26</b>
3.1 Sezione d'urto di cattura neutronica e yield di cattura . . . . .	26

3.2	Determinazione dello spessore del bersaglio . . . . .	28
3.3	Analisi delle risonanze . . . . .	29
3.3.1	Isotopo $^{155}\text{Gd}$ . . . . .	30
3.3.2	Isotopo $^{157}\text{Gd}$ . . . . .	31
3.4	Risultati . . . . .	33
	<b>Conclusioni</b>	<b>34</b>
	<b>Bibliografia</b>	<b>36</b>

# Introduzione

Nell'ambito della gestione e utilizzo dei reattori di II e III generazione si chiama veleno neutronico (o assorbitore neutronico) una sostanza con una grande sezione d'urto di assorbimento dei neutroni. In questo esperimento sono scelti, come veleno neutronico, isotopi caratterizzati da una sezione d'urto di cattura neutronica alle energie termiche comparabile o più alta rispetto quella di fissione indotta dai neutroni del  $^{235}\text{U}$ , gli isotopi  $^{155}\text{Gd}$  e  $^{157}\text{Gd}$ . Per le reazioni a catena che includono neutroni, i veleni neutronici permettono l'utilizzo di una quantità maggiore iniziale di materiale fissile, inteso come materiale che sviluppa una reazione a catena con neutroni lenti, che non sarebbe permesso utilizzare per motivi di sicurezza.

La sezione d'urto di cattura neutronica dei due isotopi ( $^{155}\text{Gd}$  e  $^{157}\text{Gd}$ ) è dunque estremamente importante per stabilire le prestazioni e le caratteristiche di sicurezza degli elementi di combustione, poiché questi isotopi sono inseriti nei reattori nucleari per abbassare l'alta reattività del carico iniziale del combustibile, il che comporta un aumento di efficienza e una maggiore durata del combustibile nucleare. L'importanza e il ruolo dei due isotopi dispari, con più alta sezione d'urto, è stata valutata dall'analisi SU (Sensitivity and Uncertainty), cosiddetta di sensibilità e incertezza: l'analisi di sensibilità tenta di determinare cosa cambia nei valori di output del modello che stiamo analizzando dopo aver variato di poco i valori in input; l'analisi di incertezza tenta di descrivere l'intero set

di possibili risultati con le relative probabilità che i risultati avvengano. L'analisi mostra che il range di energia più importante per la reazione con gli isotopi  $^{155}\text{Gd}$  e  $^{157}\text{Gd}$  è tra 0.1 eV e 1 eV. Tuttavia ci sono ancora delle incertezze sul valore della sezione d'urto dell'isotopo  $^{157}\text{Gd}$ , usato come veleno neutronico, e un miglioramento di questo valore può avere un significativo impatto nella valutazione globale delle proprietà degli elementi di combustione. Gli esperimenti ad n\_TOF dovrebbero chiarire la situazione fornendo una misura della sezione d'urto accurata e risolvendo la discrepanza nelle regioni di energia termica, migliorando ed estendendo i risultati alle più alte energie delle regioni di risonanza risolte.

# Capitolo 1

## Caratteristiche del Gadolinio e isotopi di Gadolinio

### 1.1 L'elemento chimico Gadolinio

Il Gadolinio è un elemento chimico appartenente alla famiglia dei Lantanidi, con numero atomico pari a 64. E' un metallo delle terre rare e ha un aspetto bianco-argenteo. La caratteristica principale, per i nostri studi, è il valore della sua sezione d'urto delle reazioni di cattura di neutroni termici, che viene stimata essere  $\sim 49\,000$  barn, quindi molto alta. La cattura neutronica è un tipo di reazione nucleare nella quale un neutrone collide con un nucleo atomico, fondendosi per formare l'isotopo più pesante. La sezione d'urto neutronica della reazione nucleare di un elemento chimico è l'area effettiva della sezione che il nucleo presenta all'assorbimento, ed è, anche, una misura della probabilità della cattura neutronica.

I reattori di seconda e terza generazione usano il Gadolinio come veleno neutronico bruciabile (materiale assorbitore di neutroni). Si utilizza il composto Gadolinia  $Gd_2O_3$

come combustibile nei reattori PWR (Reattore nucleare ad acqua pressurizzata), BWR (Reattore nucleare ad acqua bollente) e VVER (serie di Reattori nucleari ad acqua pressurizzata), e il composto Nitrato di Gadolinio  $GdNO_3$  come veleno per lo spegnimento di emergenza per CANDU (CANadian Deuterium Uranium). Nei reattori CANDU viene iniettato il nitrato di Gadolinio nel moderatore a bassa pressione per ridurre, o eliminare, criticità. L'uso del Gadolinio per questi scopi ricopre sempre un ruolo molto importante. Ma i dati presenti in letteratura non raggiungono le accuratezze richieste per aumentare l'efficienza delle misure e la convenienza negli esperimenti.

Il Gadolinio, in natura, si presenta come una miscela di 7 isotopi stabili:  $^{152}Gd$ ,  $^{154}Gd$ ,  $^{155}Gd$ ,  $^{156}Gd$ ,  $^{157}Gd$ ,  $^{158}Gd$ ,  $^{160}Gd$ , di cui alleghiamo tabella con i valori della massa atomica e della abbondanza e della percentuale di arricchimento isotopico disponibile. Esiste un laboratorio specializzato nella produzione di isotopi che produce campioni arricchiti di certi elementi [1]. Le percentuali presenti nella tabella si riferiscono alle percentuali in cui riusciamo a trovare l'isotopo che ci interessa.

Isotopo	Massa Atomica [u.]	Abbondanza nat.	Arricchimento disponibile
$^{152}Gd$	$151,919799494 \pm 0,000001754$	$0,20 \pm 0,01 \%$	$32-51 \%$
$^{154}Gd$	$153,92087406 \pm 0,000001747$	$2,18 \pm 0,03 \%$	$>66 \%$
$^{155}Gd$	$154,922630473 \pm 0,000001742$	$14,80 \pm 0,12 \%$	$>90 \%$
$^{156}Gd$	$155,922131241 \pm 0,000001742$	$20,47 \pm 0,09 \%$	$93-99 \%$
$^{157}Gd$	$156,923968569 \pm 0,000001742$	$15,65 \pm 0,02 \%$	$>90 \%$
$^{158}Gd$	$157,924112348 \pm 0,000001742$	$24,84 \pm 0,07 \%$	$>95 \%$
$^{160}Gd$	$159,927062411 \pm 0,000001842$	$21,86 \pm 0,19 \%$	$95-98 \%$

Tabella 1.1: Isotopi stabili del Gadolinio e alcune delle caratteristiche: massa atomica, abbondanza, arricchimento

## 1.2 Interazione con il neutrone

Nello studio del comportamento dei neutroni nei reattori nucleari è molto importante calcolare il valore del fattore di moltiplicazione "k". Questo fattore serve a valutare la produzione di neutroni nelle reazioni a catena dei reattori nucleari. Il calcolo viene effettuato considerando:

$$k = \frac{\text{Numero di neutroni in una generazione}}{\text{Numero di neutroni nella generazione precedente}} \quad (1.1)$$

se  $k > 1$  il sistema si trova in una situazione di supercriticità perché significa che in ogni reazione si produrranno sempre più neutroni; se  $k = 1$  il sistema è critico ed è la situazione in cui lavora un reattore; se  $k < 1$  il sistema si dice sottocritico in cui la reazione a catena si arresta.

L'interazione del neutrone con gli isotopi di gadolinio produce una cascata elettromagnetica, caratterizzata da un'energia, chiamata Q-valore, di cui alleghiamo il calcolo in Tabella 1.2.

La misura di sezione d'urto di cattura neutronica viene effettuata rilevando i raggi  $\gamma$  emessi successivamente alla cattura del nucleo che in questo modo si porta allo stato fondamentale. Dalla tabella e dai grafici riportati di seguito confrontiamo i valori per ogni isotopo, e come si vede, per gli isotopi dispari l'energia della cascata elettromagnetica è maggiore rispetto al caso degli isotopi pari. Il valore dell'energia non è necessariamente legata alla scelta dei due isotopi, ma è rilevante per quanto riguarda la tecnica di misura della sezione d'urto.

Il calcolo del Q-valore è stato effettuato utilizzando la massa atomica del neutrone e degli isotopi [11], in unità  $c=1$ , tramite la formula

Reazione	Q-Valore
$n + {}^{152}\text{Gd} \rightarrow {}^{153}\text{Gd}^* \rightarrow {}^{153}\text{Gd} + \gamma$	6,208 MeV
$n + {}^{154}\text{Gd} \rightarrow {}^{155}\text{Gd}^* \rightarrow {}^{155}\text{Gd} + \gamma$	6,208 MeV
$n + {}^{155}\text{Gd} \rightarrow {}^{156}\text{Gd}^* \rightarrow {}^{156}\text{Gd} + \gamma$	8,071 MeV
$n + {}^{156}\text{Gd} \rightarrow {}^{157}\text{Gd}^* \rightarrow {}^{157}\text{Gd} + \gamma$	7,140 MeV
$n + {}^{157}\text{Gd} \rightarrow {}^{158}\text{Gd}^* \rightarrow {}^{158}\text{Gd} + \gamma$	7,937 MeV
$n + {}^{158}\text{Gd} \rightarrow {}^{159}\text{Gd}^* \rightarrow {}^{159}\text{Gd} + \gamma$	6,208 MeV
$n + {}^{160}\text{Gd} \rightarrow {}^{161}\text{Gd}^* \rightarrow {}^{161}\text{Gd} + \gamma$	6,208 MeV

Tabella 1.2: Energie delle cascata elettromagnetica risultante della reazione tra neutrone e nuclei degli isotopi di Gadolinio

$$Q = m[n + {}^A\text{Gd}] - m[{}^{A+1}\text{Gd}] \quad (1.2)$$

Più in generale, quando si parla di reazioni indotte da neutroni, questi, interagendo con i nuclei del bersaglio, producono un nucleo composto eccitato che può dar luogo a varie reazioni nucleari (canale di cattura, diffusione, fissione, elastica, inelastica), ognuno caratterizzato dalla sua probabilità. La sezione d'urto totale è la somma di tutte le sezioni d'urto di reazione:

$$\sigma_{totale} = \sigma_{cattura} + \sigma_{diffusione} + \sigma_{fissione} + \sigma_{elastica} + \sigma_{inelastica} \quad (1.3)$$

la sezione d'urto è una grandezza che ha le dimensioni fisiche di una superficie, si esprime in barn ( $1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^{-2}$ ).

La probabilità associata ad uno specifico canale non dipende dal canale di ingresso ed è data da:

$$P_c = P_{CN} \cdot \frac{\Gamma_c}{\Gamma} \quad (1.4)$$

in cui  $P_{CN}$  è la probabilità che si formi il nucleo composto,  $\Gamma_c$  è la larghezza parziale

e  $\Gamma$  è la larghezza naturale e cioè la somma di tutte le larghezze parziali relative ai diversi canali di decadimento del nucleo composto. Tuttavia, nel nostro caso, siamo interessati a calcolare la sezione d'urto di cattura radioattiva (quindi  $\sigma_\gamma$ ), nonostante sia energeticamente possibile la presenza di altri canali. Le reazioni che portano alla formazione di un nucleo composto presentano, in determinati intervalli energetici, numerose risonanze che possono essere parametrizzate secondo la formula di Breit-Wigner:

$$\sigma_\gamma(E) = 4\pi\lambda^2 \frac{g\Gamma_\gamma\Gamma_n}{[E - E_R]^2 + \Gamma^2/4} \quad (1.5)$$

in cui  $g$  è il fattore statistico di spin,  $E_R$  è l'energia della risonanza, e in cui utilizziamo la larghezza della risonanza relativa allo scattering elastico ( $\Gamma_n$ ) e relativa alla cattura radioattiva ( $\Gamma_\gamma$ ).

Definiamo il fattore statistico di spin tramite la formula

$$g = \frac{2J + 1}{(2I + 1)(2i + 1)} \quad (1.6)$$

in cui  $J$  è il momento angolare totale,  $I$  è lo spin del bersaglio e  $i$  è lo spin del proiettile.

### 1.3 Scelta degli isotopi $^{155}\text{Gd}$ e $^{157}\text{Gd}$

La grande sezione d'urto di cattura neutronica dell'elemento Gadolinio è dovuta ai due isotopi dispari  $^{155}\text{Gd}$  e  $^{157}\text{Gd}$ . Agli stessi è dovuto l'assorbimento dei neutroni termici, in misura minore per l'isotopo  $^{155}\text{Gd}$ .

Come già detto, per capire e valutare l'importanza e il ruolo dei due isotopi nei combustibili nucleari, è stata eseguita l'analisi SU alcuni differenti elementi di combustione (FAs: Fuel assemblies). In particolare è stata adottata la sequenza Tsunami-2D [2]:

questa sequenza, è capace di predire la sensibilità  $S$  di un dato parametro che regola la variazione della sezione d'urto. Questo parametro è il fattore di moltiplicazione  $k$  descritto in precedenza [3]. La sensibilità di  $k$  ad una reazione in cui si valuta una sezione d'urto  $\sigma_i$ , funzione dell'energia dei neutroni incidenti  $E$ , è definita come:

$$S_i(E) = \frac{\sigma_i}{k} \frac{\partial k}{\partial \sigma_i} \quad (1.7)$$

La funzione valuta come la presenza del valore della sezione d'urto è importante per stimare  $k$ , come funzione dell'energia dei neutroni incidenti. Questa è capace di dire quanto, e in quali range di energia, un errore sulla sezione d'urto si propaga ad un errore su  $k$ . L'incertezza della sezione d'urto, insieme all'analisi di sensibilità, da l'incertezza relativa finale associata alla stima di  $k$ .

Nuclide-Reaction	Contr. to Uncertainty in $k$ (% $\Delta(k)/k$ )	Rank
$^{235}\text{U } \bar{\nu}$	0.270	1.00
$^{238}\text{U (n,}\gamma)$	0.197	0.81
$^{235}\text{U (n,}\gamma)$	0.143	0.64
$^{235}\text{U (n,f)}$	0.143	0.56
$^{157}\text{Gd (n,}\gamma)$	0.0603	0.26
$^{155}\text{Gd (n,}\gamma)$	0.0448	0.20

Tabella 1.3: Contributo all'incertezza complessiva su  $k$

Nella Tabella 1.3 viene espresso il valore del Rank, parametro che indica l'impatto della reazione sul valore di "k" e quindi sulla sua incertezza. Questo viene calcolato come il rapporto tra il contributo all'incertezza di una certa reazione e il contributo dato dalla reazione che ha un Rank maggiore ( $^{235}\text{U } \bar{\nu}$ ).

Nei grafici che seguono, mettiamo a confronto l'andamento della sezione d'urto totale, elastica, e di cattura radioattiva di tutti gli isotopi del gadolinio. Notiamo che la sezione d'urto totale degli isotopi dispari tende quasi a coincidere con la sezione d'urto

di cattura radioattiva, quella a cui siamo maggiormente interessati. Tutti gli altri isotopi presentano sezioni d'urto inferiori. I grafici sono stati ottenuti estraendo i valori della sezione d'urto da un database online [4].

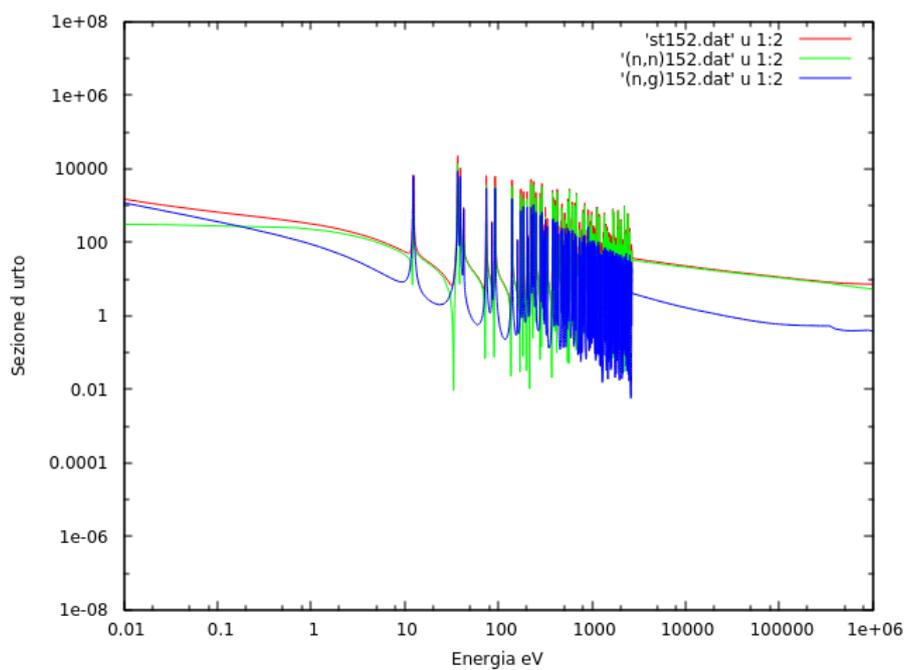


Figura 1.1: Sezione d'urto totale e parziali  $^{152}\text{Gd}$

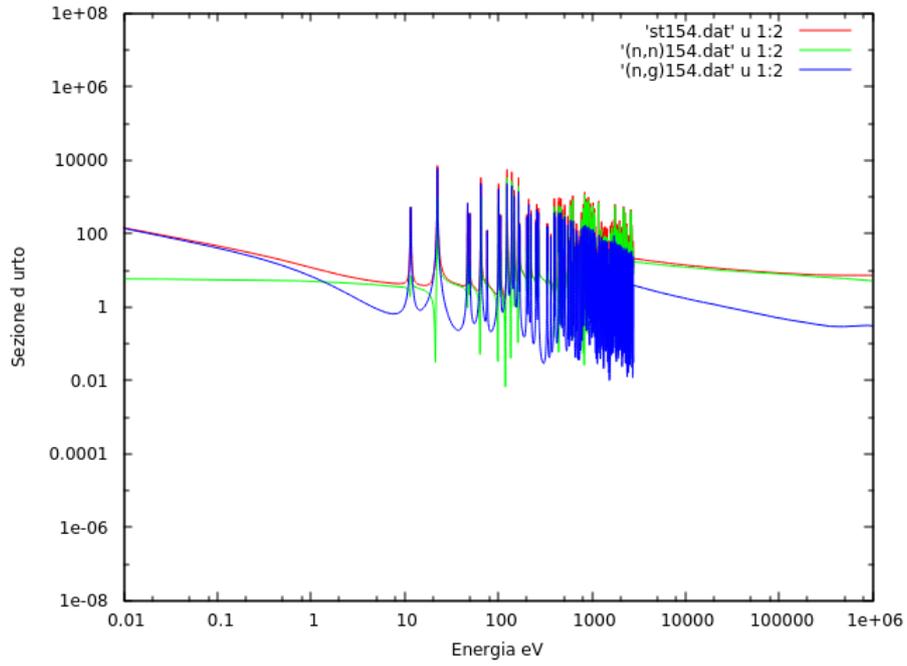


Figura 1.2: Sezione d'urto totale e parziali  $^{154}\text{Gd}$

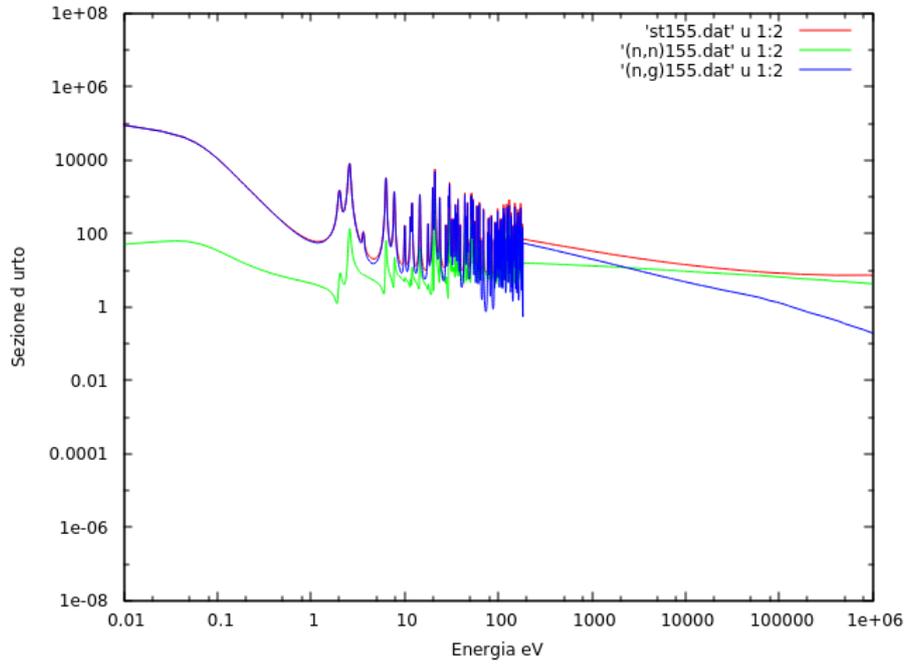


Figura 1.3: Sezione d'urto totale e parziali  $^{155}\text{Gd}$

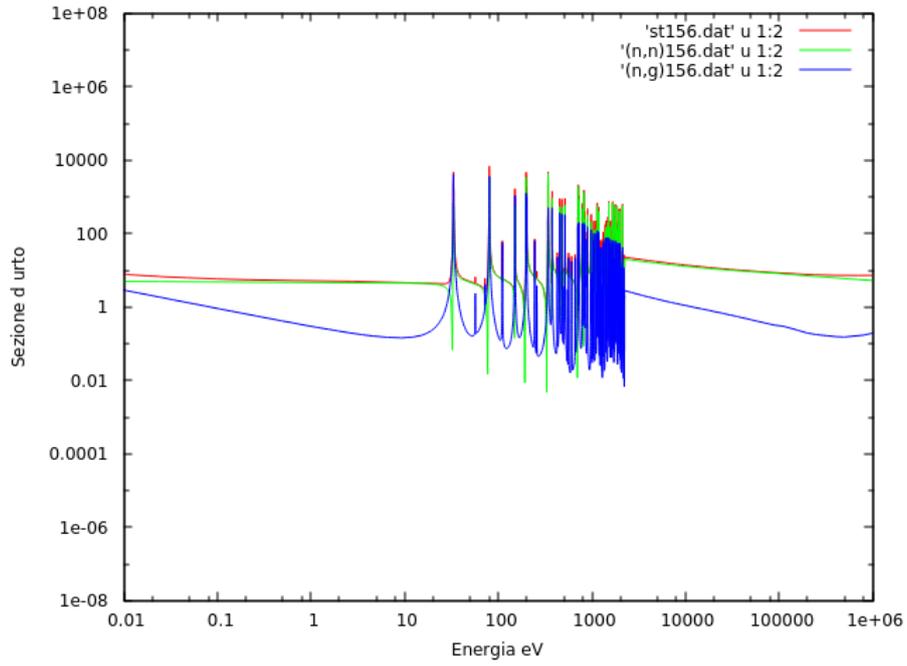


Figura 1.4: Sezione d'urto totale e parziali  $^{156}\text{Gd}$

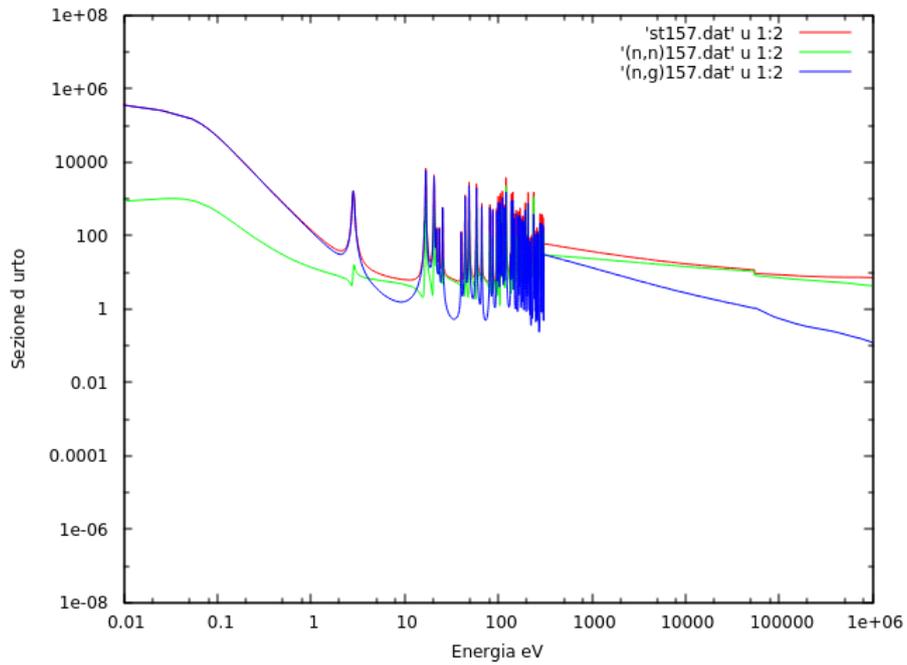


Figura 1.5: Sezione d'urto totale e parziali  $^{157}\text{Gd}$

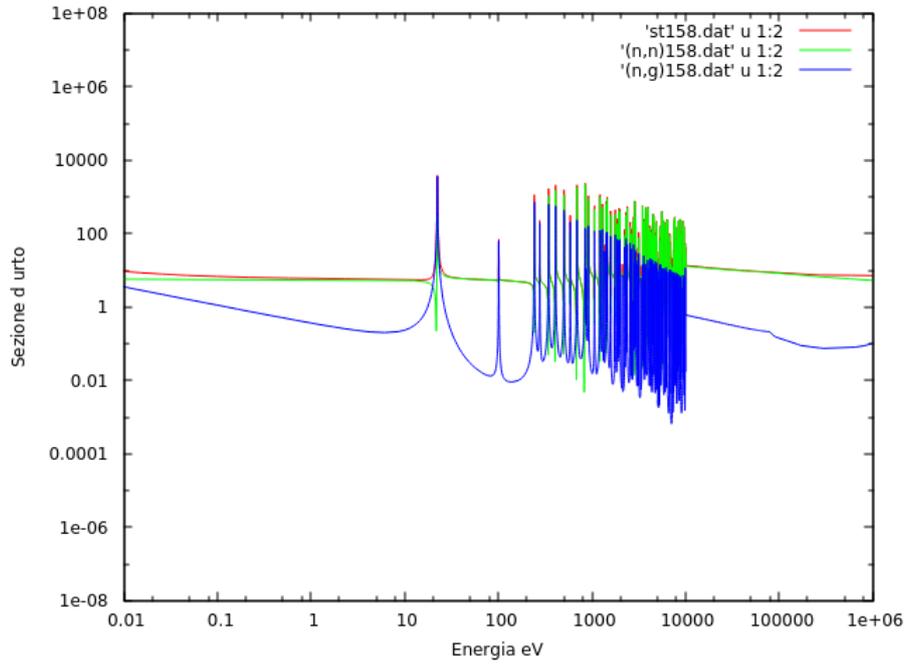


Figura 1.6: Sezione d'urto totale e parziali  $^{158}\text{Gd}$

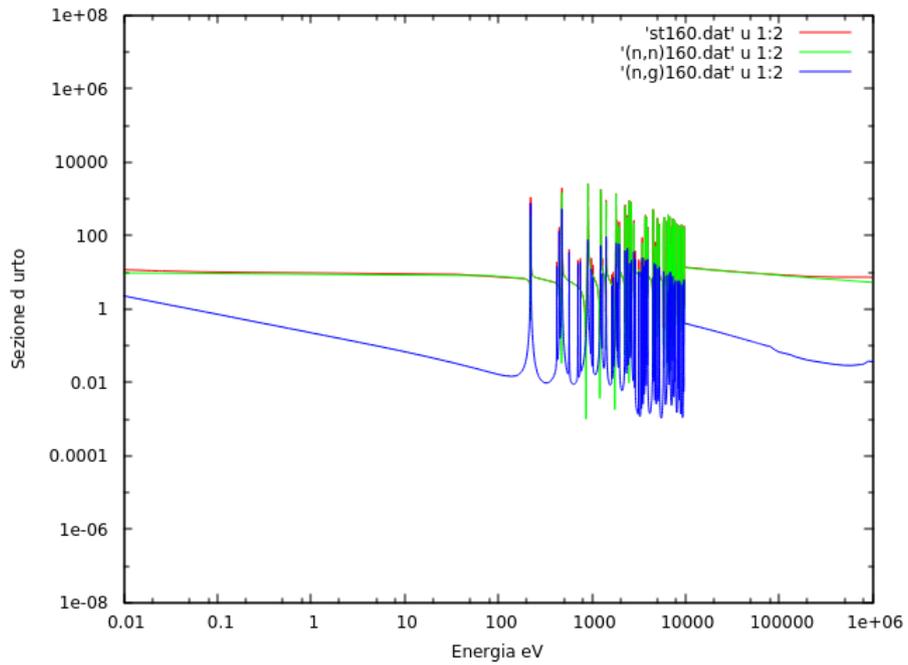


Figura 1.7: Sezione d'urto totale e parziali  $^{160}\text{Gd}$

## 1.4 Il Gadolinio naturale

Nonostante il Gadolinio naturale abbia un'altissima sezione d'urto per la cattura neutronica, questa è il risultato delle sezioni d'urto di cattura nei vari isotopi. Pertanto non è possibile separare gli eventi di cattura ed abbiamo bisogno di fare le valutazioni per ogni isotopo. Inoltre alcuni isotopi sono instabili e, come vedremo dopo, solo i due isotopi dispari,  $^{155}\text{Gd}$  e  $^{157}\text{Gd}$  danno risultati utili per lo scopo dell'esperimento, nelle regioni di nostro interesse.

In particolare nella regione di energia compresa tra 0,01 eV e 100 eV, gli isotopi dispari hanno la sezione d'urto maggiore e studiamo nello specifico questi due.

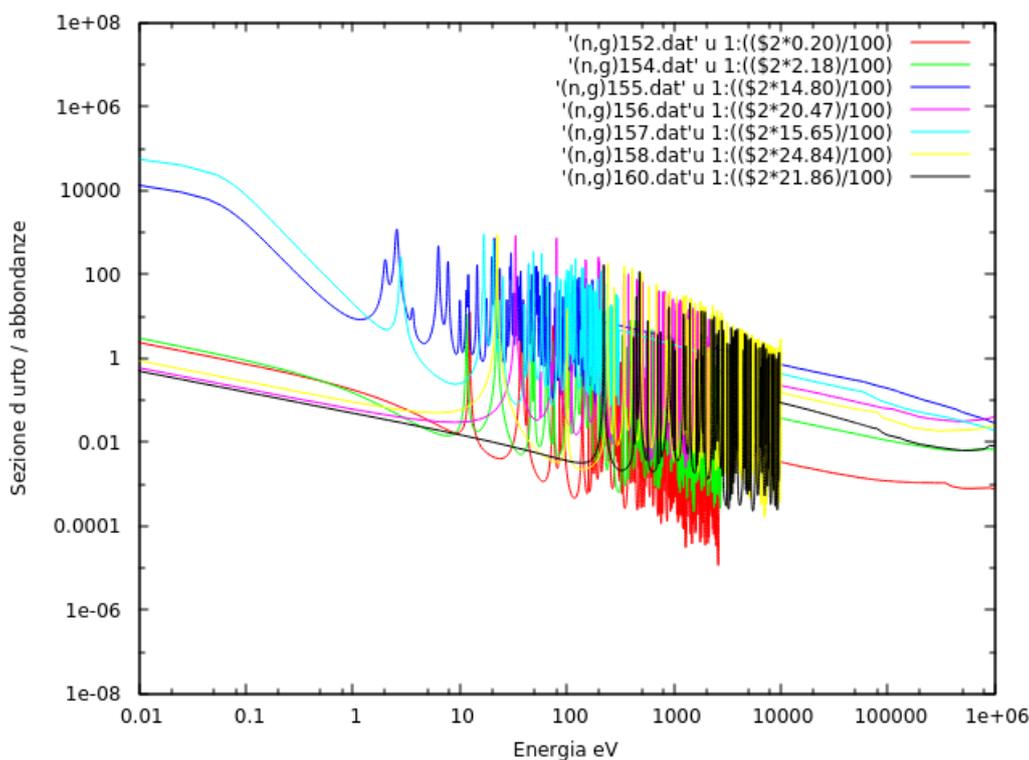


Figura 1.1: Grafico della sezione d'urto del Gadolinio naturale

## 1.5 Misure in Letteratura

Al fine di verificare sperimentalmente le ipotesi fatte sull'efficacia degli isotopi del gadolinio, come veleno neutronico, e verificare la precisione delle sezioni d'urto associate, sono stati eseguiti da CEA una serie di esperimenti, nei quali è stato usato il reattore di ricerca Melusine a Grenoble. Il lavoro più recente che mette a confronto le ricerche e i calcoli è quello del 2015, fatto da Bernard e Santamarina [5]. Per  $^{157}\text{Gd} (n,\gamma)$ , è stato pubblicato un set di dati nel 1958 per la sezione d'urto nel termico che fu determinato essere, approssimativamente, del valore di 264 kb [6]. Nello stesso anno, il rapporto BNL-325 indicava un valore di 240 kb per la stessa sezione d'urto [7], mentre nel 1960 una seconda serie di dati è stato estratto da misurazioni della sezione d'urto totale, che ha dato un valore di 254 kb [8]. Bisogna attendere il 2006 per un, più completo, set di dati sulla misura della sezione d'urto di cattura neutronica dei due isotopi, con il lavoro di Leinweber [9]. Questa misura, sebbene riduca il divario tra i risultati degli esperimenti e i calcoli, non è in grado di risolvere altri problemi legati ai reattori nucleari causati dal gadolinio. Anche la misurazione Choi [10] non può essere considerata definitiva; gli autori affermano che servono altri studi sperimentali accurati per comprendere alcune differenze rispetto ad alle precedenti determinazioni. Inoltre lo stesso lavoro [9] basato sull'utilizzo di un bersaglio dell'isotopo naturale Gadolinio, potrebbe introdurre discrepanze nei risultati sperimentali, poiché non copre l'intervallo 0.1-1 eV che è altrettanto importante nella fisica dei reattori, cioè l'intervallo termico.

# Capitolo 2

## Apparato Sperimentale

### 2.1 Facility *n\_TOF*

La richiesta di misure sempre più precise e accurate per sezioni d'urto di reazioni indotte da neutroni ha portato alla costruzione presso il CERN di Ginevra di una facility innovativa quale *n\_TOF* (Figura 2.1). Una tra le caratteristiche più vantaggiose di *n\_TOF* è l'elevatissimo flusso istantaneo di neutroni: nella facility vengono infatti generati fino a  $2 \cdot 10^{15}$  neutroni per impulso, nella forma di brevi impulsi con estensione temporale di circa 6 ns, con un periodo di ripetizione che può variare da 2.4 s a 16.7 s. Questo risultato è raggiungibile grazie sia all'elevato e preciso flusso ottenibile dal meccanismo di spallazione di protoni a 20 GeV/c su un bersaglio di piombo, sia alla considerevole densità del fascio di protoni del Proto Sincrotrone (PS) del CERN, che può generare pacchetti di intensità fino a  $7 \cdot 10^{12}$  protons per pulse (ppp) con risoluzione temporale di 7 ns. I neutroni così prodotti viaggiano poi per circa 185 m nella linea di volo (TOF tube), inclinata di  $10^\circ$  rispetto all'asse dei protoni incidenti per minimizzare il numero di particelle secondarie lungo il fascio, fino a raggiungere l'area sperimentale EAR-1 (area

in cui si svolge il nostro esperimento). L'elevato flusso di neutroni, insieme all'eccellente risoluzione energetica e alla bassa frequenza di ripetizione fanno di n\_TOF una facility unica al mondo. In attività negli anni dal 2000 al 2004, a causa di problemi legati alla consunzione del bersaglio di piombo e all'attivazione del sistema di raffreddamento l'esperimento n\_TOF è stato fermo per gli anni successivi, sino alla ripresa delle misure nella primavera del 2009. Durante questi anni numerosi studi sono stati eseguiti per capire come migliorare la facility per evitare il ripetersi di questi problemi, studi che hanno portato a un cambiamento nella geometria del bersaglio in piombo di spallazione rendendola più robusta, con un sistema di raffreddamento più efficiente, un circuito di moderazione separato da quello di raffreddamento nonché un impianto di ventilazione nell'area del bersaglio.

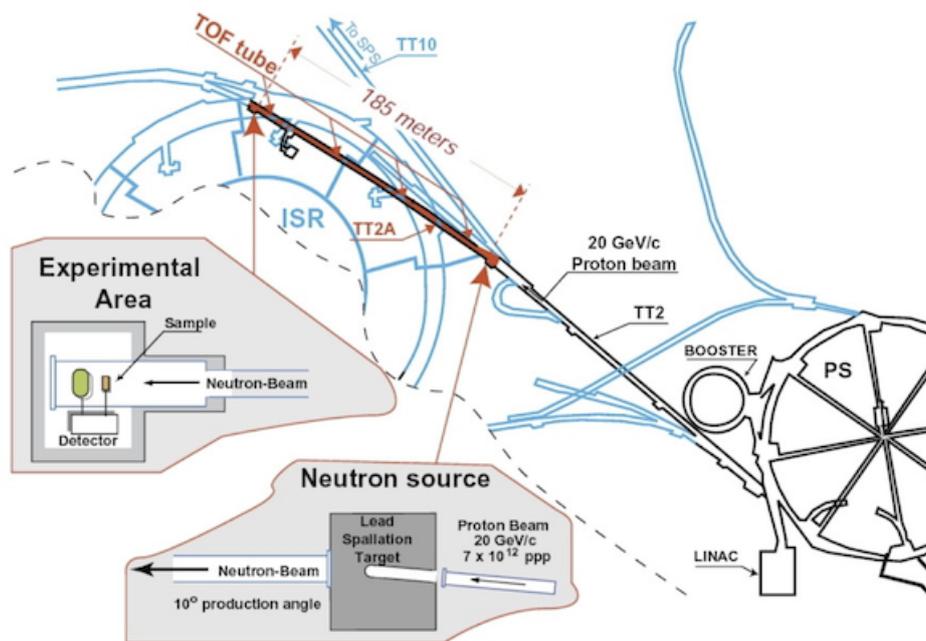


Figura 2.1: Fascio di protoni viene estratto dal PS attraverso la linea di trasferimento TT2 alla cui fine è posto il bersaglio di piombo. Alla fine del TOF tube i neutroni vengono rivelati a circa 185 m dalla zona di produzione, dove inizia l'area sperimentale EAR-1

### 2.1.1 Produzione del fascio di neutroni

I neutroni vengono prodotti attraverso il meccanismo di spallazione del fascio di protoni proveniente dal PS contro un bersaglio di piombo, inducendo così l'emissione di un grande numero di particelle a causa dei molti urti che avvengono tra i protoni e i nuclei pesanti.

Si ottiene in questo modo un fascio energetico di neutroni, che a 185 m dalla zona di produzione può arrivare fino ad un'intensità dell'ordine di  $10^5$  neutroni/cm<sup>2</sup> /impulso, contenente però un gran numero di particelle secondarie ( $\pi^0$ , p,  $\mu$ , ...) emesse per lo più in avanti lungo la direzione del fascio. Le caratteristiche del fascio di neutroni prodotto sono collegate a quelle del fascio incidente e del bersaglio utilizzato. Il numero di neutroni prodotti infatti aumenta all'aumentare dell'energia dei protoni incidenti, raggiungendo la saturazione per energie superiori al GeV. La composizione chimica del bersaglio influenza a sua volta la produzione di neutroni nella misura in cui più pesante è il nucleo, maggiore è il numero di neutroni ottenuti. Inoltre la geometria del target ha effetti sia sulla risoluzione energetica (incertezza legata al cammino delle particelle all'interno del target stesso), sia sulla forma del fascio e dell'alone che lo attornia (maggiori sono le dimensioni laterali del target, maggiore è l'alone che circonda il fascio). Considerando le caratteristiche della facility, ogni protone genera  $\sim 360$  neutroni, alcuni dei quali sono emessi nella giusta direzione per essere incanalati in un tubo a vuoto inclinato, come già detto, di  $10^\circ$  rispetto all'asse dei protoni incidenti attraverso il quale raggiungono la zona sperimentale, il TOF tube.

## 2.2 La tecnica del Time of Flight

Per avere una un'accurata misura delle sezioni d'urto di reazioni indotte da neutroni è necessario in primo luogo avere un'ottima risoluzione energetica degli stessi neutroni. La tecnica del Time of Flight (ToF) misura l'energia cinetica del neutrone basandosi sul tempo che impiega a percorrere una distanza  $L$ . Il tempo determinato sperimentalmente ci permette di determinare la velocità:

$$v = \frac{L}{t} \quad (2.1)$$

Per la determinazione dell'energia dei neutroni si utilizza la formulazione relativistica dell'energia:

$$E_n = mc^2(\gamma - 1) \quad (2.2)$$

dove  $\gamma$  rappresenta il fattore relativistico di Lorentz:  $\gamma = (1 - \frac{v^2}{c^2})^{1/2}$  e  $c$  è la velocità della luce. Per effettuare misura di tempo di volo è necessario che i neutroni siano emessi da una sorgente pulsata. I neutroni vengono prodotti in un tempo relativamente breve che è considerato l'istante iniziale  $t_0$ . Il campione da analizzare viene posizionato ad una distanza  $L$  dalla sorgente. Per le misura di sezioni d'urto si rivelano, con opportuni sistemi, i prodotti della reazione  $n + \text{bersaglio}$  quali particella  $\alpha$ , raggi  $\gamma$  di cattura, frammenti di fissione o neutroni diffusi ad un tempo  $t_n$ , considerato il tempo di arrivo per determinare il tempo di volo del neutrone:

$$t_{obs} = t_n - t_o \quad (2.3)$$

Il meccanismo di spallazione genera non solo il fascio di neutroni ma anche dei raggi

$\gamma$  altamente energetici che viaggiano lungo la linea di fascio producendo il cosiddetto  $\gamma$ -flash nei rivelatori, generalmente saturandoli. Poiché i raggi  $\gamma$  viaggiano alla velocità della luce arrivano ai rivelatori prima dei neutroni ed è possibile utilizzare il  $\gamma$ -flash per valutare l'istante  $t_0$ :

$$t_0 = t_\gamma - \frac{L}{c} \quad (2.4)$$

dove  $t_\gamma$  è il tempo registrato per il  $\gamma$ -flash.

### 2.2.1 Monitor di flusso

Le misure di flusso e di background sono basate su reazioni “standard”, le cui sezioni d’urto sono note con un’accuratezza migliore del 3%, quali  $^{10}\text{B} (n,\alpha) ^7\text{Li}$  e  $^6\text{Li} (n,\alpha) ^3\text{H}$ . Queste sono considerate standard dal punto termico ( $E_n = 0.025$  eV) fino a energie di 250 KeV e di 1 MeV rispettivamente, così come, per energie da 0.15 a 20 MeV, è considerata standard la reazione  $^{235}\text{U} (n,f)$ . Per le alte energie è possibile determinare il flusso di neutroni dalle reazioni  $^{238}\text{U} (n,f)$  e  $^{209}\text{Bi} (n, f)$ , standard rispettivamente da 1 a 200 MeV e da 35 a 130 MeV. I cosiddetti monitor di flusso presenti ad n\_TOF sono i rivelatori SiMON, PPAC, i contatori  $^{10}\text{B F}_3$ , MicroMegas e Medipix.

SiMON: Utilizza la reazione  $^6\text{Li} (n,\alpha) ^3\text{H}$ . Le particelle prodotte dalla reazione sono rivelati all’interno del tubo a vuoto dei quattro sottili rivelatori al silicio.

Parallel Plate Avalanche Counters (PPAC): usano reazioni di fissione di  $^{235}\text{U}$   $^{238}\text{U}$   $^{209}\text{Bi}$

Contatori  $^{10}\text{BF}_3$ : sono tre contatori che usano come gas di riempimento il  $^{10}\text{BF}_3$

MicroMegs: è un rivelatore proporzionale a gas con elettrodi planari costituito da due regioni: il conversion gap, dove la radiazione libera elettroni di ionizzazione, e l'amplification gap, più sottile, dove il segnale viene amplificato

Medipix: installati solo per la seconda fase di n\_TOF

Quelli che si utilizzeranno per il nostro esperimento sono il SiMON e il MicroMegs.

## 2.3 Rivelatori di cattura

L'evento di cattura di un neutrone da parte di un nucleo è caratterizzato dall'emissione immediata di una cascata di raggi  $\gamma$  durante la diseccitazione del nucleo composto, che passa dallo stato eccitato in cui si è formato allo stato fondamentale. L'energia totale disponibile è la somma dell'energia di separazione, che varia da qualche MeV fino a 10 MeV a seconda del nucleo bersaglio, e dell'energia cinetica. Quando il neutrone che viene catturato ha bassa energia, l'energia della cascata di raggi  $\gamma$  è essenzialmente il Q-valore stesso. Un evento di cattura può essere quindi misurato rivelando uno o più dei raggi gamma emessi nella diseccitazione. Un sistema di rivelazione per studiare la sezione d'urto di reazione e in particolare le risonanze indotte dalle reazioni di cattura neutronica deve soddisfare le seguenti richieste:

- l'efficienza di rivelazione deve essere indipendente dalla molteplicità dello spettro di raggi  $\gamma$  e dalla loro distribuzione energetica.
- poichè in competizione con la reazione di cattura vi è sempre la diffusione dei neutroni, la sensibilità ai neutroni scatterati deve essere la più bassa possibile
- la risoluzione temporale deve essere molto buona

La prima richiesta è generalmente soddisfatta attraverso due metodi completamente diversi, che portano alla separazione dei rivelatori in due classi ben definite: Total Absorption e Total Energy Detectors, entrambi presenti ad n\_TOF.

Ci limitiamo a descrivere la classe dei Total Energy Detectors, poiché è il tipo di rivelatore che verrà utilizzato in questo esperimento.

### 2.3.1 Total Energy Detector: $C_6D_6$

I rivelatori utilizzati hanno una bassa efficienza di rivelazione per i  $\gamma$ , che risulta proporzionale all'energia del raggio gamma  $E_\gamma$ :

$$\varepsilon_\gamma = kE_\gamma \quad (2.5)$$

Quando l'efficienza dei raggi  $\gamma$  è così bassa ( $\varepsilon_\gamma \ll 1$ ) è lecito supporre che un solo  $\gamma$  dell'intera cascata venga registrato, l'efficienza di rivelazione di un evento di cattura risulta essere:

$$\varepsilon_c = 1 - \prod(1 - \varepsilon_{i\gamma}) \approx \sum(\varepsilon_{i\gamma}) \quad (2.6)$$

A seguito di queste considerazioni si può notare che l'efficienza di rivelazione di un evento di cattura  $\varepsilon_c$  è direttamente proporzionale solamente all'energia radiativa totale rilasciata nell'evento, ovvero la somma dell'energia di legame  $B_n$  e cinetica  $E_n$  del neutrone nel sistema di riferimento del centro di massa:

$$\varepsilon_c \approx k \sum(E_{i\gamma}) \approx k(B_n + E_n^{cm}) = kE_X \quad (2.7)$$

e indipendente dal percorso reale della cascata.

Il nuovo rivelatore è realizzato interamente in fibra di carbonio (a differenza dei rivelatori commerciali che hanno parti in alluminio), la cella contenente il liquido ha forma cilindrica che termina con un cono a 45° che ha funzione sia di volume attivo sia di guida per la luce. Il volume del liquido è di 1 litro più un 4 % aggiuntivo che permette l'espansione termica. Internamente le pareti sono dipinte con una vernice riflettente per limitare la fuoriuscita dei fotoni attraverso di esse.

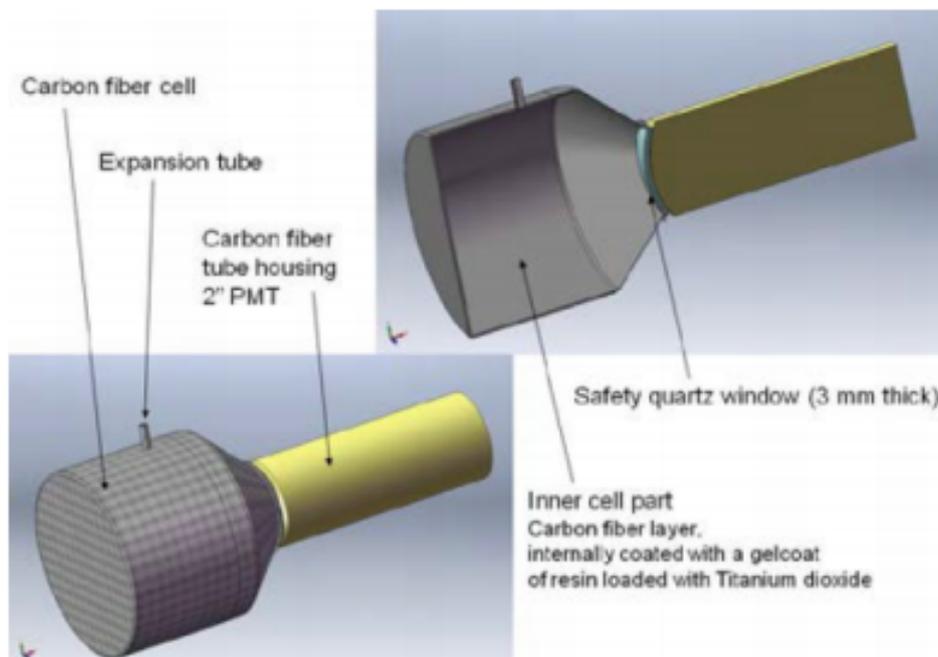


Figura 2.2: Schema sintetico del nuovo rivelatore  $C_6D_6$

# Capitolo 3

## Calcolo dello spessore

### 3.1 Sezione d'urto di cattura neutronica e yield di cattura

Le misure già effettuate in letteratura, che presentano delle discrepanze, e lo studio delle risonanze di reattori, mostrano la necessità di dati più accurati, pertanto è necessario ripetere l'esperimento. Negli esperimenti con bersaglio fisso non si ricava direttamente la sezione d'urto, ma una grandezza ad essa legata, detta yield di cattura, definita come la frazione del fascio di neutroni che dà luogo ad eventi di cattura, la cui espressione è data dalla formula:

$$Y = (1 - e^{-n\sigma_{tot}}) \frac{\sigma_{\gamma}}{\sigma_{tot}} \quad (3.1)$$

Nella conversione tra sezione d'urto e yield di cattura ci sono fattori di cui bisogna tener conto:

- il self-shielding;

- multiple scattering
- la sensibilità neutronica del rivelatore.

Di questi, quello che ci interessa è il fenomeno di self-shielding (autoassorbimento), che è dovuto al fatto che il campione non è un unico strato di atomi bensì ha uno spessore definito, quindi la probabilità di avere un'interazione in uno strato qualsiasi del campione dipende dalla probabilità di interazione del neutrone con tutti gli strati precedenti. Infatti, quando abbiamo una sezione d'urto molto alta i neutroni interagiscono solo con il primo strato del bersaglio, pertanto il fattore di trasmissione (che dipende dalla sezione d'urto in questa maniera:  $e^{-n\sigma_{tot}}$ ) è molto piccolo, pertanto abbiamo bisogno di studiare il valore di uno spessore che ci dia la possibilità di ridurre il fattore del self-shielding. Possiamo scrivere la probabilità che la cattura avvenga a profondità  $z$  nel materiale come:

$$\frac{n}{D} e^{-n\sigma_{tot} \frac{z}{D}} \sigma_c dz \quad (3.2)$$

dove  $n$  è la densità (numeri di nuclei per unità di area), detta areale, del materiale espressa in atomi/barn,  $D$  lo spessore del campione nelle stesse unità di  $z$ ,  $\sigma_{tot}$  è la sezione d'urto totale e  $\sigma_c$  la sezione d'urto di cattura. Integrando, questa quantità, su  $z$  si ottiene il valore teorico dello yield di cattura (funzione sopra).

Nonostante nella sua formulazione più completa lo yield di cattura dipenda non solo dalla sezione d'urto di cattura, ma anche da quella totale, per bersagli sottili ( $n\sigma_{tot} \ll 1$ ) si può applicare una comoda approssimazione:

$$Y \approx n\sigma_{tot} \quad (3.3)$$

che mette in relazione diretta lo yield di cattura con la sezione d'urto di cattura.

Il conteggio  $C_c(t)$  osservato nella misura del flusso può essere usato per determinare il valore dello yield sperimentale che va confrontato con lo yield cattura:

$$Y_{exp}(t) = \frac{C_c(t)}{A\varphi_n(t)\Omega} \quad (3.4)$$

dove  $\varphi_n(t)$  è il flusso dei neutroni incidenti,  $A$  è l'area effettiva del campione intercettata dal fascio di neutroni e  $\Omega$  è l'angolo solido sotteso dal sistema di rivelazione e  $C_c(t)$  è il conteggio dei raggi  $\gamma$ . Nella maggior parte dei casi, la geometria del sistema di rivelazione non è conosciuta con grande precisione, ed è quindi difficile determinare l'angolo solido, l'area effettiva e il flusso assoluto. Pertanto risulta conveniente esprimere lo yield sperimentale solo in funzione della dipendenza energetica del flusso di neutroni, introducendo una normalizzazione  $N_c$ :

$$Y_{exp}(t) = N_c \frac{C_c(t)}{\varphi_n(t)} \quad (3.5)$$

La costante di normalizzazione può venire determinata sperimentalmente quando si conosce il flusso  $\varphi_n(t)$ , misurando uno yield di cattura su bersaglio per il quale la sezione d'urto di cattura, e quindi lo yield, sia nota con grande precisione.

## 3.2 Determinazione dello spessore del bersaglio

Anche per il calcolo della densità areale e della sezione d'urto totale si sfrutta il database online precedentemente citato [4], in cui si trovano i valori sulle sezioni d'urto di ogni isotopo. Il sito mette anche a disposizione i grafici con l'analisi delle risonanze di ogni possibile processo a seguito dell'interazione tra un neutrone e un elemento. Abbiamo

pertanto sfruttato queste informazioni per risalire al valore dello spessore tramite la formula:

$$n = \frac{N_A m}{\rho_m \pi} \quad (3.6)$$

dove  $N_A$  è il numero di Avogadro,  $m$  è la massa del campione di Gadolinio,  $\rho_m$  è la massa atomica e  $\pi$  è l'area. Lo spessore, che dipende dalla massa, lo calcoliamo con la formula:

$$S = \frac{m}{\pi \rho} \quad (3.7)$$

dove la  $\rho$  è la densità del Gadolinio pari a  $7.901 \frac{g}{cm^3}$ .

In maniera molto semplice, quindi, viene dedotto il valore dello spessore, obiettivo dello studio in questa tesi. La massa è la grandezza con cui definiamo lo spessore. Il valore di questa grandezza viene ricavata dall'analisi delle risonanze.

### 3.3 Analisi delle risonanze

Le caratteristiche essenziali di una risonanza risiedono nella determinazione della sua energia e nella larghezza di cattura  $\Gamma_\gamma$  e neutronica  $\Gamma_n$ . Queste grandezze infatti ben misurano la probabilità di avere processi di cattura neutronica per le diverse risonanze. Pertanto una loro valutazione, nel nostro caso, è importante al fine di giustificare il comportamento dei neutroni nelle regioni di energie di nostro interesse. La difficoltà delle misure è dovuta al fenomeno del self-shielding. Per questo motivo sono necessari campioni, cioè bersagli, estremamente sottili. In questo lavoro di tesi sono stati calcolati gli spessori ottimali di campioni di  $^{155}\text{Gd}$  e  $^{157}\text{Gd}$ . In entrambi i casi è risultato necessario

l'impiego di diversi campioni, in base alla regione energetica di interesse. Questo perché la sezione d'urto al termico è, come già detto, elevata.

### 3.3.1 Isotopo $^{155}\text{Gd}$

Nel caso del  $^{155}\text{Gd}$ , abbiamo sfruttato i calcoli matematici effettuati per la densità areale, al fine di calcolare lo spessore. In Tabella 3.1 troviamo i valori delle masse, ricavate dall'analisi delle risonanze della figura 3.1, della densità areale e dello spessore ricavate secondo la formula (3.7). Le curve di maggiore interesse sono la curva rossa e la curva blu. La curva verde mostra come, utilizzando un certo valore di densità areale, la risonanza vada a zero e pertanto non c'è trasmissione di neutroni. Per quanto riguarda i valori della massa ottenuti dall'analisi delle curve rossa e blu, si vede, dalla tabella, come lo spessore debba essere molto sottile al fine di avere trasmissione. Grazie allo studio della curva rossa, possiamo, inoltre, analizzare la trasmissione nel range di energie termiche ma non riusciamo a fare uno studio delle risonanze. Per questo motivo abbiamo ricavato la curva blu che ci aiuta, invece, a studiare le risonanze che rientrano tutti in un range di 0.2-0.8 (valore del fattore di trasmissione).

Curva	Massa (g)	Densità areale (at/barn)	Spessore (cm)
Rossa	0,0757596395	0,000093738	0,0030521506
Verde	1,0000000862	0,001237308	0,0402872945
Blu	0,2489275318	0,000308	0,0100286159

Tabella 3.1: Valori della massa, densità areale e spessore ricavati dall'analisi delle risonanze della figura 3.1

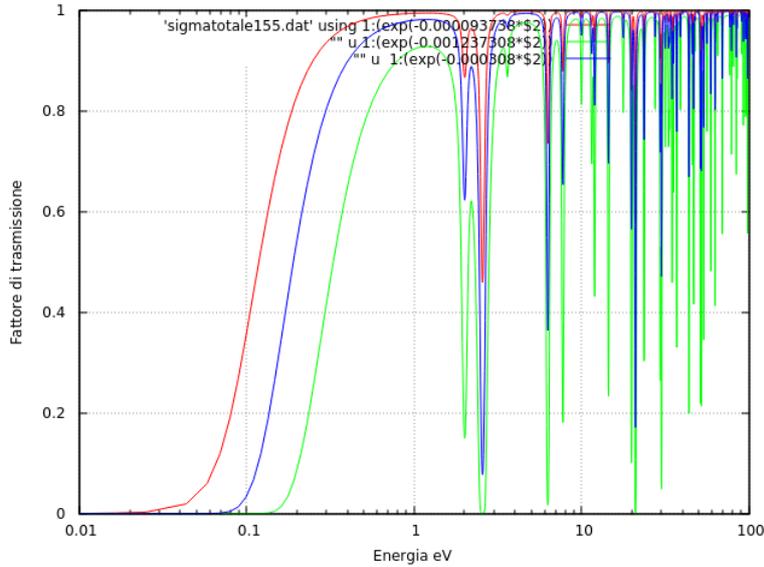


Figura 3.1: Grafico dei tre diversi tipi di trasmissione di neutroni, in base al valore della massa

### 3.3.2 Isotopo $^{157}\text{Gd}$

Nel caso del  $^{157}\text{Gd}$ , abbiamo sfruttato i calcoli matematici effettuati per la densità areale, al fine di calcolare lo spessore. In Tabella 3.2 troviamo i valori delle masse, ricavate dall'analisi delle risonanze della figura 3.2, della densità areale e dello spessore ricavate secondo la formula (3.7). Le curve di maggiore interesse sono la curva rossa e la curva blu. La curva verde mostra come, utilizzando un certo valore di densità areale, la risonanza vada a zero e pertanto non c'è trasmissione di neutroni. Per quanto riguarda i valori della massa ottenuti dall'analisi delle curve rossa e blu, si vede, dalla tabella, come lo spessore debba essere molto sottile al fine di avere trasmissione. Grazie allo studio della curva rossa, possiamo, inoltre, analizzare la trasmissione nel range di energie termiche ma non riusciamo a fare uno studio delle risonanze. Per questo motivo abbiamo ricavato la curva blu che ci aiuta, invece, a studiare le risonanze che rientrano tutti in un range di 0.2-0.8 (valore del fattore di trasmissione).

Curva	Massa (g)	Densità areale (at/barn)	Spessore (cm)
Rossa	0,0156580267	0,000019374	0,0006308195
Verde	1,7904225875	0,002215304	0,0721312758
Blu	0,202051568	0,00025	0,0081401103

Tabella 3.2: Valori della massa, densità areale e spessore ricavati dall'analisi delle risonanze della figura 3.2

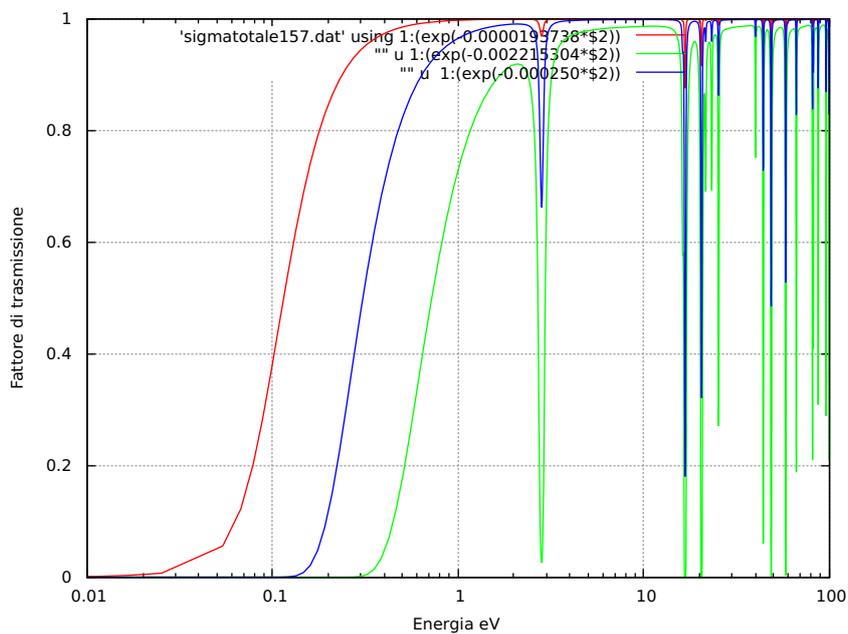


Figura 3.2: Grafico dei tre diversi tipi di trasmissione di neutroni, in base al valore della massa

## 3.4 Risultati

Nonostante durante la trattazione dell'esperimento ci sia riferiti al fenomeno del self-shielding, per fare un'analisi matematica abbiamo utilizzato il fattore di trasmissione, poiché è questo il fattore che ci dà indicazioni circa la trasmissione dei neutroni all'interno dello spessore. Le tabelle 3.1 e 3.2 in cui mostriamo il valore dello spessore, ci danno l'idea di quanto sottile deve essere lo spessore affinché sia ridotto il fenomeno del self-shielding e, contestualmente, ci sia un alto numero di eventi per poter fare più misure.

# Conclusioni

La misura della sezione d'urto neutronica degli isotopi  $^{155}\text{Gd}$  e  $^{157}\text{Gd}$  è rilevante al fine di avere dati sempre più precisi per le applicazioni alle tecnologie nucleari. Alla fine dell'esperimento rileveremo i raggi  $\gamma$  con i rilevatori  $C_6D_6$ , al fine di valutare l'energia della cascata elettromagnetica che è legata alla misura della sezione d'urto. I risultati mostrano come lo spessore dei due isotopi dev'essere molto sottile (dell'ordine di  $10^{-6}$  m) e come, nel caso di masse superiori a 1 g non ci sia trasmissione di neutroni.

# Bibliografia

- [1] <https://www.isotopes.gov/catalog/product.php?element=Gadolinium>.
- [2] [http://web.ornl.gov/sci/scale/pubs/ldoc11583\\_final\\_version.pdf](http://web.ornl.gov/sci/scale/pubs/ldoc11583_final_version.pdf)
- [3] Rocchi et al. ENEA Internal Report UTFISSM-PRONOC 2015.
- [4] <http://www.nndc.bnl.gov/sigma/>.
- [5] D. Bernard, A. Santamarina, A. Qualification of gadolinium burnable poison: Interpretation of MELUSINE GEDEON-II spent fuel analysis. Ann. Nucl. Energy (2015), <http://dx.doi.org/10.1016/j.anucene.2015.02.034>, in print.
- [6] J. Pattenden, Some Neutron Cross Sections of Importance to Reactors  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{143}\text{Nd}$ ,  $^{145}\text{Nd}$ ,  $^{149}\text{Sm}$ ,  $^{152}\text{Sm}$ ,  $^{151}\text{Eu}$ ,  $^{153}\text{Eu}$ ,  $^{155}\text{Gd}$ ,  $^{157}\text{Gd}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  Proceedings of the Second International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva 1958, Neutron Cross Sections, Session A-11, P-11.
- [7] D. J. Hughes, R. B. Schwartz, Neutron Cross Sections, BNL-325, US Government Printing Office, July 1958.
- [8] Bjerrum Moller, F. J. Shore, V. L. Sailor, Low-Energy Neutron Resonances in Erbium and Gadolinium, Nuclear Science and Engineering, 8 (1960) 183-192.

- [9] G. Leinweber, D. P. Barry, M. J. Trbovich, J. A. Burke, N. J. Drindak, H. D. Knox, R. V. Ballard, R. C. Block, Y. Danon, L. I. Severnyak, Neutron Capture and Total Cross-Section Measurements and Resonance Parameters of Gadolinium, Nuclear Science and Engineering, 154, (2006) 261-279.
- [10] H. D. Choi, R. B. Firestone, M. S. Basunia, A. Hurst, B. Sleaford, N. Summers, J.E. Escher, Z. Revay, L. Szentmiklosi, T. Belgya, M. Krticka, Radiative Capture Cross-Sections of  $^{155,157}\text{Gd}$  for Thermal Neutrons, Nuclear Science and Engineering 177 (2014) 219.
- [11] <http://atom.kaeri.re.kr/nuchart/#>.