AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**Desenvolvimento de um detector de nêutrons por meio da deposição
de filme fino de boro via laser**

PRISCILA COSTA

**Tese apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Doutor em Ciências na Área de
Tecnologia Nuclear - Aplicações**

**Orientador:
Frederico Antonio Genezini**

**São Paulo
2019**

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Autarquia Associada à Universidade de São Paulo

**Desenvolvimento de um detector de nêutrons por meio da deposição de
filme fino de boro via laser**

Versão Corrigida

Versão Original disponível no IPEN

PRISCILA COSTA

**Tese apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Doutor em Ciências na Área
de Tecnologia Nuclear - Aplicações**

**Orientador:
Frederico Antonio Genizini**

**São Paulo
2019**

Fonte de Financiamento: CNPq

Autorizo a reprodução e divulgação total ou parcial deste trabalho, para fins de estudo e pesquisa, desde que citada a fonte

Como citar:

COSTA, P. ***Desenvolvimento de um detector de nêutrons por meio da deposição de filme fino de boro via laser***. 2019. 98 p. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN CNEN/SP, São Paulo. Disponível em: <www.teses.usp.br> (data de consulta no formato: dd/mm/aaaa)

Ficha catalográfica elaborada pelo Sistema de geração automática da Biblioteca IPEN/USP, com os dados fornecidos pelo(a) autor(a)

Costa, Priscila

Desenvolvimento de um detector de nêutrons por meio da deposição de filme fino de boro via laser / Priscila Costa; orientador Frederico Antonio Genezini. -- São Paulo, 2019.

98 p.

Tese (Doutorado) - Programa de Pós-Graduação em Tecnologia Nuclear (Aplicações) -- Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo, 2019.

1. Detectores de nêutrons térmicos. 2. filme de boro. 3. Fotodiodo. 4. Deposição a laser pulsada. I. Genezini, Frederico Antonio, orient. II. Título.

AGRADECIMENTOS

Agradeço,

Primeiramente a Deus, a minha família, em especial aos meus pais Marcos Antônio Costa e Maria Eunice de Lima Costa e aos meus sobrinhos: Gustavo Silva Costa, Lucas Silva Costa, Arthur de Barros Costa e Alice Costa por todo amor, carinho e compreensão. Aos meus amigos pelo apoio e companhia.

À *CNPQ - Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico* – pela bolsa de doutorado a mim concedida.

Ao *IPEN – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares* - pela oportunidade de realização deste trabalho e por toda infraestrutura disponibilizada.

Em especial ao *Prof. Frederico Antonio Genezini* e *Prof. Marcus Paulo Raele* pela oportunidade e ao pela orientação neste trabalho.

Aos *Profs.* Helio Yoriyaz, Paulo de Tarso Dalledone Siqueira, Tufic Madi Filho, Guilherme Soares Zahn, Cláudio Domienikan, Mauricio Morales, Fabio Eduardo da Costa, Marina F. Koskinas, Ricardo Elgul Samad e o Nilson Dias Vieira Junior do Instituto de Pesquisa Energéticas e Nucleares (IPEN-CNEN) pela ajuda durante o trabalho.

As colaborações feitas no Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes (LNMRI - CNEN/RJ), na estação de caracterização de detectores do NCNR (NIST Center for Neutron Research) e do Laboratório de Materiais e Feixes Iônicos (LAMFI/IFUSP).

Por fim, a todos que contribuíram, diretamente ou indiretamente, para o desenvolvimento deste trabalho.

“Mil cairão ao teu lado, e dez mil à tua direita, mas não chegará a ti”
(Salmo 91:7)

RESUMO

COSTA, Priscila. ***Desenvolvimento de um detector de nêutrons por meio da deposição de filme de boro via laser***, 2019. 98 p. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN – CNEN/SP, São Paulo.

O protótipo de um detector de nêutrons térmicos portátil foi desenvolvido no Instituto de Pesquisa Energéticas e Nucleares (IPEN-CNEN/SP), utilizando um fotodiodo de Si do tipo PIN associado a um filme de boro enriquecido. O filme de boro foi fabricado por meio da técnica de Deposição a Laser Pulsado, considerando duas possibilidades para depositar o boro: deposição direta do boro na face do fotodiodo e deposição na lâmina de vidro. Foram desenvolvidos dois protótipos, no primeiro foi possível ler apenas o sinal elétrico do sistema fotodiodo-boro no qual o filme está depositado na lâmina de vidro. Para aprimorar a resposta do sistema de detecção, outro circuito foi desenvolvido e permitiu contar nêutrons em ambas as situações tanto do filme na lamínula quanto do filme direto no fotodiodo. A caracterização dos protótipos foi feita via irradiação de feixes de nêutrons predominantemente térmicos e frios, por meio de quatro experimentos principais: reposta do sistema ao fluxo de nêutrons, teste de linearidade, resposta angular e o teste de reprodutibilidade. Os protótipos apresentaram uma resposta linear à variação do fluxo, reprodutibilidade, e a resposta angular não foi isotrópica. A eficiência intrínseca em porcentagem do protótipo 1 para um espectro de nêutrons predominantemente térmicos e frios foi $(1,17 \pm 0,01) \%$ e $(1,37 \pm 0,01) \%$, respectivamente. No protótipo 2 foram feitas medições de nêutrons com os dois sistemas fotodiodo-boro (lâmina de vidro, direto no fotodiodo), porém nas medidas com o boro direto no sensor houve um aumento significativo no ruído eletrônico. A eficiência intrínseca do protótipo 2 para os nêutrons frios foi de $(5,2 \pm 0,4) \%$.

Palavras-chave: detector nêutrons térmicos, fotodiodo, filme de boro, deposição a laser pulsado (PLD).

ABSTRACT

COSTA, Priscila. ***Development of a thermal neutron detector by boron film deposition using laser***, 2019. 98 p. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN – CNEN/SP, São Paulo.

A portable thermal neutron detector prototype, using a silicon photodiode type PIN coupled to a boron converter, was developed at Nuclear and Energy Research Institute (IPEN-CNEN/SP). The boron layers were made by Pulsed Laser Deposition method using two configurations: directly deposited on the surface of photodiode and at a glass surface. Two prototypes were made in this study using two different associated electronics, in the first prototype is only possible reads signs from the photodiode coupled to boron film and in the second one reads both types of configurations (directly on the photodiode, boron glass). The prototypes were characterized using thermal and cold neutron beam. Four experiments were performed: response of the detection system at neutron beam, linearity test, angular response and repetitive test. The prototypes present a linear behavior, were reproducible and the angular response of the prototypes was not isotropic. The values of intrinsic efficiency from the prototype 1 for thermal and cold neutron were respectively: $(1.17 \pm 0.01) \%$ e $(1.37 \pm 0.01) \%$. In the prototype 2 it was performed an experiment for compare the read out in the detection system for the two possible configuration of system photodiode-boron, in the situation that the boron is part integrant of the system there was an significant increase in the electronic noise, therefore the characterization of this prototype were made using the boron film coupled to the photodiode, and intrinsic efficiency for cold neutron beam was $(5.2 \pm 0.4) \%$.

Keywords: thermal neutron detector, photodiode, boron film, Pulsed Laser Deposition (PLD).

LISTA DE TABELAS

Tabela 1 - Parâmetros dos filmes para o estudo da taxa de deposição: energia do laser, fluência, relação (F/F_0) entre a fluência aplicada (F) e a limiar (F_0), tipo de alvo, tempo de deposição (T_d) e energia do laser (E).	31
Tabela 2 – Técnicas utilizadas na análise dos filmes de boro: Microscopia de Varredura Eletrônica (MEV), perfilometria óptica, Análise de Matérias por Feixes Iônicos (IBA – Ion Beam Analysis), Difração de Raios X (DRX) e Neutron Depth Profiling (NPD).	36
Tabela 3 - Valores das concentrações, razão estequiométrica O/B (%) nas amostras analisadas.	40
Tabela 4 - Filmes produzidos de boro natural (B) - boro enriquecido ^{10}B e seus respectivos propósitos.	46
Tabela 5 - Classificação dos nêutrons em função das faixas de energias.	47
Tabela 6- Características das principais interações do nêutron com a matéria.	48
Tabela 7 - Materiais conversores e suas respectivas reações nucleares para a detecção de nêutrons térmicos.	49
Tabela 8 – As principais características dos detectores de nêutrons térmicos construídos que utilizam o semicondutor de Si do tipo PIN e os vários tipos de matérias conversores de boro.	51
Tabela 9 – As principais características dos detectores de nêutrons térmicos construídos que utilizam diversos tipos semicondutores de Si e os vários tipos de materiais conversores de boro	52
Tabela 10 – Valores das contagens da radiação de fundo (B_g) e contagem líquida para o fotodiodo diretamente depositado com o ^{10}B e o fotodiodo com o filme de boro acoplado.	75
Tabela 11 - Alcance das partículas α e dos núcleos de Li em função da energia (E), obtidos com os métodos SRIM (A_s) e TRIM (A_{TRIM}).	90
Tabela 12 – Valores dos alcances no fotodiodo (A_f) em função da espessura da camada de boro (e_f) e da energia das partículas alfa (E_α) obtidos com o software TRIM.	90
Tabela 13 – Valores do alcance no fotodiodo (A_f) em função da espessura da camada de boro (e_f) e da energia do lítio (E_{Li}) obtidos com o software TRIM..	91

Tabela 14 – Valores de espessura obtidos pelos métodos empírico (R_A), SRIM (A_S) e o TRIM (A_{Trim}) em função da energia (E).	91
---	----

LISTA DE FIGURAS

Figura 1 - Reação nuclear do ^{10}B com o nêutron térmico.	17
Figura 2 - Interação dos nêutrons no fotodiodo sem (esquerda) e com (direita) a camada de boro.	17
Figura 3 - Relação entre o número de nêutrons (esquerda) e a eficiência de detecção (%) em função da às espessuras obtidas nos códigos GEANT4 e MCNP6.	22
Figura 4 - Fluxograma do arranjo experimental da deposição a laser.	24
Figura 5 - Arranjo experimental da ablação a laser feita por pulsos de femtossegundos.	25
Figura 6 - Alvo de boro natural ablacionado com pulso de ns e de fs.	26
Figura 7 - Ablação do material em função do tipo de bombeamento do laser: nanosegundos (ns), picosegundos (ps) e femtossegundos (fs).	27
Figura 8 – Ablação do disco de boro enriquecido via técnica de D-Scan (A), disco de boro enriquecido antes (B) e depois (C) da ablação com os traços.	28
Figura 9 – Exemplo de um perfil da amostra formado a partir da ablação do material.	29
Figura 10 - Gráfico do limiar de ablação em função do numero de pulsos (N) para o disco metálico de boro enriquecido.	30
Figura 11 - Filmes de boro natural (B) e enriquecido (^{10}B) depositados na lamina de microscópio, tempo de deposição de 60 min, para as diferentes energias.	31
Figura 12 - Exemplo de imagem de um desnível de um filme de boro obtida no perfilômetro com espessura de $\sim 0,1 \mu\text{m}$ (*).	32
Figura 13 - Metodologia usada para medir a espessura do filme. Os filmes foram cuidadosamente riscados, e a altura do degrau foi escolhida a partir da região de maior deposição indicada pela linha vermelha.	32
Figura 14 - Perfil dos filmes de boro em função da posição do risco, para a energia de $530 \mu\text{J}$ em diferentes tempos.	33
Figura 15 - Relação entre o tempo de deposição e a espessura média para as diferentes energias do laser na região de maior deposição (RMD).	34
Figura 16 - Relação entre o tempo de deposição e a espessura média para as diferentes energias do laser área total depositada.	34

Figura 17 - Relação entre a taxa de deposição (T_d) em função da energia do laser para região de maior deposição.....	35
Figura 18 - Relação entre a taxa de deposição (T_d) em função da energia do laser para área total depositada.	35
Figura 19 - Imagens obtidas no MEV dos filmes de boro enriquecido com energia de 177(6) μ J para diferentes tempos de deposição.	37
Figura 20: Imagens obtidas no MEV dos filmes de boro enriquecido após seis meses tempo de fabricação para a energia de 177 com diferentes tempos de fabricação.....	37
Figura 21 - Difração de raios-X do alvo de boro (área cinza) e do filme depositado (linha preta).	38
Figura 22 - Concentração (%) dos elementos em função do valor da espessura em massa de um filme de boro natural obtida via análise de feixes iônicos (LAMFI/USP).	39
Figura 23 - Suporte para posicionar o fotodiodo sem (a) e com o fotodiodo, posição na qual o suporte foi encaixado durante a deposição a laser.	41
Figura 24 – Variação da temperatura em função do tempo de deposição para diferentes valores de energia.	42
Figura 25 - Pontos irradiados do filme de boro (área azul) pelo fluxo de nêutrons. Os pontos 2 e 5 estão localizados a aproximadamente 2,5 mm do ponto 1. Ponto 6 está à ~1 mm do ponto 3.	43
Figura 26 – Exemplo de uma imagem do MEV utilizado para medir a espessura do filme de boro.	44
Figura 27 - Deposição do ^{10}B direta na superfície do fotodiodo.	45
Figura 28 - Filme de boro enriquecido (1 x 1 cm^2) para ser usado na detecção de nêutrons.	45
Figura 29 – Fluxograma do arranjo experimental da caracterização do sistema fotodiodo-boro.	55
Figura 30- Espectro do filme A com a fonte AmBe e os blocos de parafina de 4 e 6 cm.	56
Figura 31 – Fonte ^{241}Am e colimador utilizada na caracterização do fotodiodo.	57
Figura 32 - Relação entre altura de pulso em função da tensão para dois fotodiodos do modelo S3590-09.	58
Figura 33 – Protótipo 1 visão frontal (esquerda) e visão de trás (direita).	60

Figura 34 - caixa de alumínio (esquerda), fotodiodo (meio) e conversor (direita).	60
Figura 35 - Esquema da eletrônica do amplificador.	61
Figura 36 - Visão frontal do protótipo 2.	62
Figura 37 - Esquema da eletrônica do amplificador do protótipo 2.	63
Figura 38 - Arranjo experimental do LEN: blindagem (esquerda) e visão de cima do detector-fonte (direita).	64
Figura 39 - Espectro experimental obtido do protótipo 1 no LEN.	64
Figura 40 - Visão esquemática da instalação do LFT/LN/IRD/CNEN.	65
Figura 41 – variação da distância fonte–detector de 25 a 200 cm no LFT.	66
Figura 42 – Detector posicionado na mesa (esquerda), marcas feitas na mesa com a variação dos ângulos (direita).	66
Figura 43 – Relação entre as contagens em função da distância fonte detector.	67
Figura 44 – Relação entre as contagens em função do tempo de irradiação do protótipo 1 na posição de 50 cm. As barras de erro são menores que os pontos no gráfico.	68
Figura 45 – Relação entre as contagens e o número de medidas (N) na distância de 50 cm com o tempo de irradiação de 10 min.	69
Figura 46 – Relação entre as contagens em função da variação dos ângulos.	70
Figura 47 - Conceito do arranjo experimental utilizado na estação PHADES para a caracterização do protótipo 1.	71
Figura 48 - Espectro do protótipo 1 irradiado com nêutrons frios por 120 s. As barras de erro são menores que os pontos no gráfico (1).	72
Figura 49 - Relação entre a contagem e o tempo de irradiação por nêutrons frios na posição de 0°. As barras de erro são menores que os pontos.	73
Figura 50 - Relação entre as contagens e os ângulos para o tempo de aquisição de 10 min.	74
Figura 51 - Contagens experimentais em função do número de medidas na posição de 0°.	74
Figura 52 – Arranjo experimental da caracterização do protótipo 2.	75
Figura 53 – Relação entre a contagem e o tempo de irradiação por nêutrons frios na posição de 0° para o protótipo 2. As barras de erro são menores que os pontos	76
Figura 54 - Contagens experimentais em função do número de medidas na posição de 0° do protótipo 2.	77

Figura 55 - Alcance das partículas alfa no boro e Si em função da energia obtidos com o SRIM.	88
Figura 56 - Alcance do núcleo de lítio no boro e Si em função da energia obtidos com o SRIM.	89
Figura 57 – Exemplo de uma das modelagens do sistema-fotodiodo-boro feita com o TRIM.....	89
Figura 58 - Secção de choque do ^{10}B para a reação nuclear (n, α).	93

LISTA DE SÍMBOLOS

CVD – Deposição Química de Vapor

fs- femtossegundos (10^{-15} s)

LAMFI - Laboratório de Materiais e Feixes Iônicos

LNMRI - Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes

MC – Método de Monte Carlo

NCNR - NIST Center for Neutron Research (NCNR)

NDP - Neutron Depth Profile

NIST –National Institute of Standards and Technology

ns – nanosegundos (10^{-9} s)

PHADES (Polarized ^3He and Detector Experiment Station)

PLD – Deposição a laser pulsado

ps – picossegundos (10^{-12} s)

SRIM – Stopping and Range of Ions in Matter

TRIM – Transport of Ions in Matter

SUMÁRIO

CAPÍTULO 1: INTRODUÇÃO E OBJETIVOS.....	16
CAPÍTULO 2: FABRICAÇÃO DO MATERIAL CONVERSOR VIA PLD	21
2.1 Determinação do valor teórico ótimo da espessura do filme de boro	21
2.2 Fabricação e caracterização do material conversor	23
2.2.1 Teste preliminar com pulsos de nanosegundos.....	23
2.2.2 Arranjo experimental com pulsos de femtossegundos.....	25
2.2.3 Deposição de filme de boro com pulsos de femtossegundos	27
2.2.3.1 Determinação do limiar de ablação.....	28
2.2.3.4 Fabricação de filmes para utilização no protótipo	44
2.2.4. Considerações gerais sobre a produção dos conversores	45
CAPÍTULO 3: DETECTOR DE NÊUTRONS TÉRMICOS.....	47
3.1 Nêutrons e sua interação com a matéria – Uma breve introdução.....	47
3.2 Revisão da literatura.....	50
3.3. Caracterização do sistema de detecção.....	54
3.3.1 Caracterização da resposta do sistema fotodiodo-boro	55
3.3.2 Protótipos desenvolvidos	59
3.3.2.1 Protótipo 1.....	64
3.3.2.1.1 Caracterização por nêutrons predominantemente térmicos.....	64
3.3.2.1.2 Caracterização com nêutrons frios.....	70
3.3.2.2 Protótipo 2.....	75
3.3.3 Análise da caracterização do sistema de detecção e consolidação dos resultados	77
CAPÍTULO 4: CONCLUSÕES E DISCUSSÕES GERAIS	80
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	82
APÊNDICE A - Técnicas utilizadas na determinação da espessura do filme	88
APÊNDICE B - Cálculo da eficiência intrínseca no arranjo do IRD.....	92
ANEXO A - Certificados do disco metálico.do boro natural	95

ANEXO B - Certificado do disco metálico de boro enriquecido.....	96
--	----

CAPÍTULO 1: INTRODUÇÃO E OBJETIVOS

O uso de dispositivos para a detecção de nêutrons tem sido crescente nos últimos anos. Em parte, isso é consequência direta do desenvolvimento tecnológico, como por exemplo, em hospitais, onde novos aceleradores para produção de radiação aceleram partículas em alta energia, produzindo reações nucleares que resultam na emissão de nêutrons, que, para fins de proteção radiológica precisam ser medidos (FALCÃO; FACURE; SILVA, 2007). Também há nos últimos anos crescente preocupação com proteção física na área nuclear. A situação geopolítica mundial tem levado à aplicação de procedimentos de segurança mais rígidos, como por exemplo, as inspeções em aeroportos ou em eventos de grande visibilidade. Nessas aplicações, o uso de detectores de fácil manuseio como detectores portáteis que podem ser levados para o campo sem muita dificuldade é extremamente interessante (MANFREDOTTI et al., 2005).

Para suprir essa nova demanda por detectores portáteis de nêutrons, especialmente para os nêutrons térmicos, novos dispositivos para a detecção têm sido desenvolvidos, particularmente os baseados em materiais compostos por isótopos mais acessíveis do que o ^3He (nos últimos anos a venda de ^3He tem sofrido muitas restrições devido à escassez deste isótopo (KOUZES, 2009)). Além do fator de acessibilidade, detectores que utilizam o ^3He são gasosos, o que limita sua portabilidade.

O ^{10}B possui alta secção de choque de captura de nêutrons térmicos ($\sigma_c = 3840$ barn) e, ainda que menor que a secção de choque do ^3He ($\sigma_c = 5330$ barn) (ZAMBONI, 2007), é um forte candidato para desenvolvimento de novos detectores. Os materiais conversores são utilizados na detecção de nêutrons pois permite detectá-los de forma indireta, por meio de reações nucleares que liberam partículas ionizantes e estas então podem ser detectadas em meios apropriados, como por exemplo, detectores gasosos, cintiladores e semicondutores (KNOLL, 2010). Na Figura 1 estão ilustrados por meio de uma representação simplificada, os processos da reação nuclear do $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$.

Figura 1 - Reação nuclear do ^{10}B com o nêutron térmico.

Fonte: autor da tese.

Neste trabalho, foi desenvolvido um dispositivo para detecção de nêutrons térmicos portátil utilizando uma camada conversora de boro enriquecido (^{10}B) e um fotodiodo de silício (Si) como meio detector. Na escolha do uso de ^{10}B , foram avaliados alguns parâmetros, a saber: o fato de ser comercialmente disponível, seu custo, a seção de choque, a técnica de fabricação do filme de ^{10}B e sua atoxicidade (WANG; MORRIS, 2011). Alguns trabalhos (CHAUDHARI et al., 2015; WALKER et al., 1998) reportaram o uso do boro e seus compostos associados a detectores de Si (NELSON et al., 2014). O Si apresenta algumas vantagens como ter disponibilidade comercial e funcionar em temperatura ambiente (ADAMIEC et al., 2004; MANFREDOTTI et al., 2005). O processo de detecção de nêutrons utilizando um semicondutor associado ao isótopo conversor ^{10}B é ilustrado na Figura 2.

Figura 2 - Interação dos nêutrons no fotodiodo sem (esquerda) e com (direita) a camada de boro.

Fonte: autor da tese.

A incidência direta dos nêutrons térmicos em um meio detector composto por Si, como os fotodiodos (Figura 2 A), apesar de produzir algumas reações nucleares não produz sinais elétricos que permitam a detecção de nêutrons. Já quando se acoplar o boro (material conversor), ocorre a reação nuclear $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ (Figura 1) que emite partículas ionizantes (α , Li) que são emitidas praticamente em direções opostas (Figura 2 B). Essas partículas, ao entrarem em contato com o fotodiodo, depositam energia criando pares elétron-lacuna que induzem cargas produzindo um sinal elétrico. Portanto, a detecção é observada a partir dessa carga induzida que é integrada em um pré-amplificador e medida em eletrônica associada (MCGREGOR et al., 2003).

Este tipo de dispositivo já foi desenvolvido e proposto em outros trabalhos (CHAUDHARI et al., 2015; TOMOV et al., 2008; WALKER et al., 1998). O material conversor associado aos detectores de estado sólido pode ser acoplado como sendo um componente à parte do semicondutor ou como uma parte integrante do mesmo. Porém, filmes de boro não são prontamente adquiridos (NELSON et al., 2014) devido ao seu alto custo e à dificuldade de preparação usando os métodos tradicionais de evaporação (SONG et al., 2011). Filmes desses materiais conversores têm sido fabricados utilizando, por exemplo, a deposição química a partir da fase do vapor CVD (Deposição Química de Vapor), por espalhamento magnético, evaporação por feixe de elétrons e a Deposição a Laser Pulsado (PLD) (CELENTANO et al., 2015; DELLASEGA et al., 2017; HÖGLUND et al., 2012; NIKOLIC et al., 2010; TATSCH, 2000). Em relação às técnicas citadas para fabricar os filmes conversores de boro, é importante ressaltar que a deposição a laser pulsado, apresenta algumas vantagens em relação à CVD, já que os materiais são produzidos sem necessidade do uso de gases nocivos (por exemplo, o diborano) e de altas temperaturas (o boro possui um alto ponto de ebulição $\sim 4000\text{ }^{\circ}\text{C}$) (DELLASEGA et al., 2017), ou seja, permite a produção da camada conversora em temperatura ambiente (CELENTANO et al., 2015; WANG et al., 2004). Para as demais técnicas, como por exemplo, a evaporação por feixes de elétrons, os filmes reportados não são estáveis, apresentam rachaduras, não apresentam boa aderência e taxa de deposição da ordem de décimos de nanômetros (DELLASEGA et al., 2017; SONG et al., 2011). Para o caso do espalhamento magnético, os filmes produzidos visam aplicações industriais

(KELLY; ARNELL, 2000), porém filmes puro de boro são difíceis de pulverizar devido ao seu baixo número atômico (DELLASEGA et al., 2017; KODAMA et al., 2004). Além disso, para melhorar a adesão do material nesta técnica é preciso usar altas temperaturas. (LEE et al., 2013). Outra vantagem da técnica PLD em relação ao espalhamento magnético é que a PLD pode ser aplicada em qualquer pressão, fato que permite melhor controle da densidade do material depositado (RIABININA; CHAKER; ROSEI, 2006).

Por conta destas características citadas acima, neste trabalho optou-se por fabricar o filme de boro utilizando a técnica PLD. (COSTA et al., 2019), técnica que já foi empregada em um trabalho prévio na fabricação de um conversor de boro. (SONG et al., 2011). No entanto, este trabalho não objetivou a montagem de um detector de nêutrons térmicos, ainda que tenha sido uma das motivações para a produção desse filme.

O objetivo geral desse trabalho é a construção e caracterização de um detector de nêutrons térmicos, baseado num filme conversor de boro (^{10}B) fabricado via PLD, acoplado a um fotodiodo de Si e associado a uma eletrônica portátil.

Para alcançar esse propósito, foram estipulados alguns objetivos específicos:

- ❑ Obtenção do valor teórico da espessura do conversor (^{10}B) via modelagem do detector de nêutron térmico utilizando métodos numéricos;
- ❑ Fabricação do filme de ^{10}B via PLD depositados na lâmina de vidro e na superfície do fotodiodo, obtenção dos parâmetros da taxa de deposição e caracterização;
- ❑ Construção e caracterização do sistema de detecção:
 - Desenvolvimento da eletrônica associada;
 - Caracterização do sistema fotodiodo-boro;
 - Caracterização do detector nos fluxos de nêutrons térmicos e frios.

Esta tese foi dividida em quatro capítulos, dois apêndices e dois anexos. O capítulo 2 descreve o processo de fabricação e caracterização do filme de boro de forma detalhada, discutindo todo o processo experimental adotado e técnicas utilizadas para caracterizar a morfologia, composição e a estrutura deste material. O capítulo 3 apresenta as informações sobre a construção e caracterização do sistema de detecção no qual estão descritos os processos de caracterização da eletrônica portátil, do sistema fotodiodo-boro e do protótipo desenvolvido; no capítulo 4 estão à discussão e conclusão geral, de modo a reunir os resultados obtidos para cada objetivo específico visando à análise de todo o processo proposto neste trabalho.

Figuras, tabelas e fórmulas são numeradas, dentro de cada capítulo, na sequência de citação. As referências bibliográficas são indicadas no texto pelo nome da citação em ordem alfabética.

CAPÍTULO 2: FABRICAÇÃO DO MATERIAL CONVERSOR VIA PLD

Neste capítulo são abordados os principais tópicos referentes aos filmes de boro que foram fabricados e caracterizados neste estudo, divididos em duas secções principais:

- ❑ Determinação do valor teórico ótimo da espessura do filme de boro: com o intuito de maximizar a eficiência de detecção, otimizando o uso do material conversor, levando-se em conta o efeito de auto-absorção das partículas no próprio filme (seção 2.1);
- ❑ Fabricação e caracterização do filme via PLD: Nesta seção são apresentadas as técnicas empregadas, metodologia e os resultados obtidos neste processo (seção 2.2).

2.1 Determinação do valor teórico ótimo da espessura do filme de boro

Na fabricação do filme um parâmetro fundamental é o valor da espessura ótima que está diretamente associado ao alcance das partículas ionizantes produzidas na reação nuclear $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$. Como as partículas perdem energia ao atravessar esse filme de material conversor, a condição que o alcance dessas partículas seja maior que a espessura do filme de boro é importante, caso contrário, há um decréscimo na eficiência de detecção de nêutrons devido à absorção destas partículas no próprio filme, não alcançando assim o meio detector (NELSON et al., 2014).

A espessura ótima foi determinada utilizando o método de Monte Carlo. Outros métodos foram utilizados e estão descritos no apêndice A, cujo resultado foi similar ao obtido no de Monte Carlo.

A simulação do sistema fotodiodo-boro (COSTA et al., 2015) foi feita com o método de Monte Carlo, com o código MCNP6. Nela, o sistema foi irradiado por fluxo de nêutrons térmicos e o filme foi posicionado em frente ao fotodiodo. Nesta modelagem foram incluídas as dimensões do fotodiodo e do filme, assim como as suas respectivas composições e o valor de espessura do filme que foi variado. Nesta simulação que resultou no valor de espessura ótima de aproximadamente de 3,18 μm , foram transportadas apenas as partículas alfa. O código MCNP6 utilizado neste trabalho não permitiu o transporte do lítio com o valores de energia inferiores a 5 MeV.

Para verificar a influência do núcleo de Li na eficiência de detecção foi feita uma nova simulação do sistema boro-fotodiodo por meio dos códigos MCNP6 e GEANT4, para fins de comparação já que o GEANT4 permite o transporte do Li. A eficiência de detecção, em porcentagem (Figura 3), foi obtida a partir da relação entre o número de nêutrons detectados pelo número total que foi emitido pela fonte. O número de nêutrons detectados foi determinado de forma indireta, ou seja, a partir da quantidade de partículas alfa e de núcleos de lítio presentes na região do meio detector.

Figura 3 - Relação entre o número de nêutrons (esquerda) e a eficiência de detecção (%) em função da às espessuras obtidas nos códigos GEANT4 e MCNP6.

Fonte: autor da tese.

A contribuição das partículas alfa é maior na detecção de nêutrons em relação ao lítio, devido ao alcance da partícula alfa ser maior. Por isso, apesar do código MCNP6 não transportar o lítio, nota-se na comparação entre os resultados da eficiência de detecção (Figura 3) que as curvas obtidas apresentam forma similar com valores de eficiência próximos. Além disso, a eficiência aumentou rapidamente (Figura 3) até atingir o valor de espessura de 4,0 μm , porém a partir daí apresenta uma ligeira queda. A maior eficiência ocorre entre os valores 3,5 e 4,0 μm . Em filmes mais espessos, a eficiência de detecção não será maximizada, apenas ocorrerá aumento na auto-absorção das partículas no próprio filme e efeito de atenuação do feixe de nêutrons.

Desse modo a partir dos resultados obtidos de eficiência na Figura 3 (MCNP6 e GEANT4) é possível concluir valores de espessura do filme de boro entre 3,5 e 4,0 μm produzem o melhor resultado.

2.2 Fabricação e caracterização do material conversor

Uma vez que a faixa de valores de espessura ideal foi definida, a etapa de fabricação dos filmes foi iniciada. Os filmes de boro foram fabricados utilizando dois tipos de pulsos de lasers: nanosegundos (ns) e de femtossegundos (fs), localizados no Centro de Lasers e Aplicações (CLA), do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN). Nesses experimentos foram utilizados dois discos metálicos de boro: o natural (B: 99%) e o enriquecido (^{10}B : 96%). Os alvos foram fabricados pela American Elements, possuem o diâmetro de 25,4 mm e espessura de 2 mm, cujos certificados são apresentados nos anexos A e B.

2.2.1 Teste preliminar com pulsos de nanosegundos

O laser de Nd:YAG da marca Quantel Brilliant 360 mJ, pode emitir os comprimentos de onda 1064 e 532 nm, com a duração de pulso de 4-6 ns no regime Q-switch. A energia por pulso máxima é de 350 mJ para 1064 nm e sua taxa de repetição é de até 10 Hz.

A representação esquemática do arranjo experimental está indicada na Figura 4, no qual o feixe do laser de Nd:YAG foi direcionado por meio de espelhos planos refletore e focalizado por uma lente (distância focal=150 mm) no interior de uma câmara de vácuo. Dentro dessa câmara foi posicionada uma lâmina de microscópio à distância de 20 mm do alvo acoplado a um motor rotatório. A pressão foi de 1×10^{-2} Pa. Para aprimorar o processo, em um dos espelhos, foi posicionado um motor de passos para variar a posição do feixe de laser incidente no alvo para minimizar o desgaste no alvo.

Figura 4 - Fluxograma do arranjo experimental da deposição a laser.

Fonte: autor da tese.

Neste arranjo foram fabricados três filmes de boro variando o tempo de deposição (30 min a 2h), no primeiro harmônico ($\lambda = 1064$ nm) para diferentes energias do laser (80 mJ e 30 mJ). Esses filmes apresentaram uma espessura muito fina e não foram reprodutíveis. Além disso, observou-se que o alvo sofreu um desgaste grande na superfície. Este fenômeno ocorreu devido ao fato de que para este tipo de duração de pulso (ns) ocorre uma contribuição de efeitos térmicos significativa durante o processo de ablação (BULGAKOVA et al., 2008; SCHNEIDER; LIPPERT, 2010; WILLMOTT; HUBER, 2000). Por esses motivos decidimos por utilizar um laser com pulsos de menor duração, conforme detalhado na seção 2.2.2.

2.2.2 Arranjo experimental com pulsos de femtossegundos

No laser de femtossegundos, do Laboratório de Lasers de Pulsos Ultracurtos de Alta Potência foram utilizados pulsos de um sistema laser amplificado (CPA) de Ti:Safira, do modelo Femtopower Compact Pro HP/HR, da empresa Femtolasers. Os pulsos têm energia máxima de 800 μJ , duração de 25 fs, estão centrados em 785nm com 40nm de largura espectral (FWHM), operando com taxa de repetição de até 4 kHz.

O arranjo experimental para fabricação dos filmes (Figura 5) consistiu numa câmara de vácuo, na qual o feixe foi alinhado, passando por uma lente focalizadora (150 mm). No interior desta ocorre a ablação do alvo que produz uma pluma, que em contato com o substrato produz a camada de material conversor. A distância alvo-substrato foi fixada em 3,5 cm e usou-se uma bomba de vácuo (marca ^{Hi}Clube, Pfeiffer Vacuum) atingindo a pressão de 1×10^{-02} Pa. Para minimizar o desgaste na superfície do material ablacionado variou-se a posição de incidência do feixe utilizando o oscilador de feixe (NSC 200 New Step Controller Utility) e o alvo foi rotacionado por um motor (Digital DC Power Supply DRP-3003D).

Figura 5 - Arranjo experimental da ablação a laser feita por pulsos de femtossegundos.

Fonte: autor da tese.

A comparação entre o desgaste no alvo de boro natural via ablação do pulso de ns e de fs está ilustrada na Figura 6. Nota-se que houve a formação de buracos na superfície do material devido à ablação com o pulso de ns, por outro lado, o pulso de fs - não provocou este tipo de dano no alvo.

Figura 6 - Alvo de boro natural ablacionado com pulso de ns e de fs.

Fonte: autor da tese.

A principal diferença entre os efeitos da ablação na superfície do alvo (Figura 6) está no processo de interação dos dois tipos de pulsos com o material. Na interação do pulso de fs ocorre apenas o aquecimento dos seus elétrons por excitação direta, promovendo os processos de espalação e/ou explosão de fase, ou seja, o material é liberado e se expande, liberando energia térmica antes que ocorra uma condução térmica significativa (BULGAKOVA et al., 2008; BULGAKOVA; BOURAKOV, 2002; CHICHKOV et al., 1996; KUDRYASHOV et al., 2012; LEITZ et al., 2011; LORAZO; LEWIS; MEUNIER, 2003; SCHNEIDER; LIPPERT, 2010; ZHIGILEI; LIN; IVANOV, 2009). O processo de condução térmica é o responsável pela formação dos buracos no alvo observados a direita da Figura 6. Na Figura 7 estão indicados os efeitos do calor e das ondas de choque para os pulsos de ns e ps/fs e num laser do tipo contínuo.

Figura 7 - Ablação do material em função do tipo de bombeamento do laser: nanossegundos (ns), picossegundos (ps) e femtossegundos (fs).

Fonte: autor da tese.

Como o disco de boro enriquecido é um material que possui um alto custo (^{10}B : US\$ 3.781,30), optou-se pelo uso do laser com pulsos de femtossegundos visando um aproveitamento maior deste material.

2.2.3 Deposição de filme de boro com pulsos de femtossegundos

Dando continuidade para o desenvolvimento dos filmes via pulsos ultracurtos (fs) foram realizados os seguintes passos:

- ☐ Determinação do limiar de ablação: para aprimorar o processo de ablação do alvo ao se determinar o valor de energia mínimo necessário para evaporar o material (seção 2.2.3.1);
- ☐ Determinação de taxa de deposição (seção 2.2.3.2);
- ☐ Caracterização do filme (seção 2.2.3.3);
- ☐ Fabricação de filmes para utilização no protótipo (seção 2.2.3.4).

2.2.3.1 Determinação do limiar de ablação

O limiar de ablação, ou seja, a energia mínima de evaporação do disco metálico de boro enriquecido (COSTA et al., 2018) foi determinado utilizando a técnica Diagonal Scan que foi desenvolvida pelo grupo do Laboratório de Lasers de Pulsos Ultracurtos de Alta Potência (MACHADO et al., 2012; SAMAD; VIEIRA, 2006). No disco de boro (^{10}B) foram feitos traços em diferentes posições na superfície da amostra via ablação do material (Figura 8 A) variando a taxa de repetição do laser (100 Hz a 4 kHz) e a energia do feixe (74 a 109 μJ), cujo dano no material gera o “perfil da amostra” (SAMAD; VIEIRA, 2006), conforme ilustra a Figura 9, na qual o parâmetro $2\rho_{\text{max}}$ representa a dimensão da largura do perfil.

Figura 8 – Ablação do disco de boro enriquecido via técnica de D-Scan (A), disco de boro enriquecido antes (B) e depois (C) da ablação com os traços.

Fonte: autor da tese.

Figura 9 – Exemplo de um perfil da amostra formado a partir da ablação do material.

Fonte: autor da tese.

Para medir os valores de $2\rho_{\max}$ foi utilizado um microscópio óptico (marca Leica) e o software ImageJ. A partir dos valores da largura de perfil, foi obtida a relação entre a fluência do limiar de ablação em relação ao número de pulsos sobrepostos para o alvo de boro, - indicada na Figura 10.

A fluência do limiar de ablação (F_{th}) dada em J/cm^2 foi calculada por meio da equação 1 e o número de pulsos sobrepostos (N) pela equação 2 (MACHADO et al., 2012), onde: E_0 é a energia do pulso, ϑ_3 é a função Teta do jacobiano de terceiro tipo, f é a taxa de repetição do laser e V_y é a velocidade de deslocamento transversal da amostra.

$$F_{th} \cong 0,117 \frac{E_0}{\rho_{\max}^2} \quad (1)$$

$$N = \vartheta_3 \left(0, e^{-\left(\frac{V_y}{f\rho_{\max}}\right)^2} \right) \quad (2)$$

Figura 10 - Gráfico do limiar de ablação em função do numero de pulsos (N) para o disco metálico de boro enriquecido.

Fonte: (COSTA et al., 2018).

Como nos experimentos feitos no arranjo da Figura 5 foi utilizado o número de pulsos sobrepostos de 15, a fluência de ablação mínima correspondente é de $0,57 \text{ J.cm}^{-2}$ e valor de energia mínima de $4,0 \mu\text{J}$ para a evaporação do boro. (COSTA et al., 2019).

2.2.3.2 Determinação de taxa de deposição

Nesta etapa foi feito o estudo da taxa de deposição dos filmes, no qual o processo de deposição foi caracterizado em função da energia do feixe e do tempo de deposição, sendo então verificada a reprodutibilidade do processo. No estudo da taxa de deposição, os filmes foram depositados em lâmina de microscópio (área: $26,0 \times 76,0 \text{ mm}^2$; espessura: $1,2 \text{ mm}$) em triplicata, utilizando o arranjo da Figura 5, variando a energia do laser e o tempo de deposição.

Na Tabela 1 estão relacionados os seguintes parâmetros usados no estudo da taxa de deposição: a energia do pulso do laser (E), fluência aplicada (F), relação entre os valores de fluência aplicada e o limiar de ablação (F_0), tipo de alvo e tempo de deposição (T_d).

Tabela 1 - Parâmetros dos filmes para o estudo da taxa de deposição: energia do laser, fluência, relação (F/F_0) entre a fluência aplicada (F) e a limiar (F_0), tipo de alvo, tempo de deposição (T_d) e energia do laser (E).

E (μJ)	F (J/cm^2)	F/F_0	Alvo	T_d (min)
37 (6)	5,2 (8)	9	^{10}B	20, 35, 60 e 75
177 (6)	25,0 (8)	44	^{10}B	20, 35, 60 e 75
533 (6)	169,0 (1)	296	B	5, 10, 15, 30, 60, 75 e 90

Fonte: autor da tese.

Na Figura 11

Figura 11, estão exemplificados três filmes de boro feitos no mesmo tempo de deposição (60 min) para diferentes energias do laser. Comparando os aspectos desses filmes, nota-se que para as energias maiores (177 μJ e 530 μJ) os filmes são mais espessos e apresentaram um aspecto similar. A espessura está associada ao valor da energia do laser e à quantidade de boro evaporada, que resulta numa pluma de densidade maior e, portanto numa taxa de deposição maior para as energias maiores.

Figura 11 - Filmes de boro natural (B) e enriquecido (^{10}B) depositados na lamina de microscópio, tempo de deposição de 60 min, para as diferentes energias.

Fonte: autor da tese.

Para estudar e determinar a taxa de deposição desses filmes, de modo a verificar a reprodutibilidade desse processo, a espessura foi o principal parâmetro adotado. Para medir essa espessura foi utilizado o perfilômetro óptico (ZeGage – Zygo). Com este tipo de equipamento, para a análise da profundidade da amostra (Figura 12), é necessário criar desníveis (riscos) no material (Figura 13). A metodologia adotada foi de espaçar os riscos, que foram feitos utilizando um estilete, na amostra numa distância fixa de 5 mm ao longo da região depositada, de modo a garantir que todo material fosse removido sem causar nenhum dano à superfície do substrato.

Figura 12 - Exemplo de imagem de um desnível de um filme de boro obtida no perfilômetro com espessura de $\sim 0,1 \mu\text{m}$ (*).

Fonte: autor da tese.

Figura 13 - Metodologia usada para medir a espessura do filme. Os filmes foram cuidadosamente riscados, e a altura do degrau foi escolhida a partir da região de maior deposição indicada pela linha vermelha.

Fonte: autor da tese.

Na Figura 14 está indicado o perfil para a energia de 530 μJ , que foi obtido por meio da média dos valores de espessura, para cada posição X (Figura 13), dos três filmes, em diferentes tempos de deposição. Este perfil apresentou nas posições entre -10 a 5 os seus maiores valores de espessura. Esse valor de espessura aumenta com o tempo de deposição. Este mesmo comportamento foi observado também nos perfis das energias de 37 μJ e 177 μJ .

Figura 14 - Perfil dos filmes de boro em função da posição do risco, para a energia de 530 μJ em diferentes tempos.

Fonte: autor da tese.

A partir das informações obtidas no perfil (Figura 14), foi estabelecida a relação entre a espessura do filme e o tempo de deposição para as diferentes energias do laser, para obter o valor da espessura do filme foi feita a média e o desvio padrão considerando duas regiões: região de maior deposição (intervalo dos valores de -10 a 5 mm) e o filme todo (média de todos os valores do eixo X). Estas relações estão indicadas na Figura 15 (região de maior deposição) e Figura 16 (filme todo).

Figura 15 - Relação entre o tempo de deposição e a espessura média para as diferentes energias do laser na região de maior deposição (RMD).

Fonte: autor da tese.

Figura 16 - Relação entre o tempo de deposição e a espessura média para as diferentes energias do laser área total depositada.

Fonte: autor da tese.

A relação entre a espessura em função do tempo de deposição (Figura 15, Figura 16) apresentou um aspecto aproximadamente linear. Desse modo, a partir do ajuste linear para cada energia foi obtida a relação do valor da taxa de deposição ($\text{nm} \cdot \text{min}^{-1}$) para os três valores de energia do laser considerando as duas situações: a região de maior deposição (Figura 17) e o filme todo (Figura 18), que também apresentou um aspecto linear.

Figura 17 - Relação entre a taxa de deposição (T_d) em função da energia do laser para região de maior deposição.

Fonte: autor da tese.

Figura 18 - Relação entre a taxa de deposição (T_d) em função da energia do laser para área total depositada.

Fonte: autor da tese.

2.2.3.3 Caracterização do filme

Para caracterizar os filmes foram utilizadas algumas análises, tais como: Microscopia de Varredura Eletrônica (MEV), perfilometria óptica, Análise de Matérias por Feixes Iônicos (IBA – Ion Beam Analysis), Difração de Raios-x (DRX) e a técnica NPD (Neutron Depth Profiling). Na Tabela 2 são apresentadas as técnicas e as respectivas informações obtidas.

Tabela 2 – Técnicas utilizadas na análise dos filmes de boro: Microscopia de Varredura Eletrônica (MEV), perfilometria óptica, Análise de Matérias por Feixes Iônicos (IBA – Ion Beam Analysis), Difração de Raios X (DRX) e Neutron Depth Profiling (NPD).

Informação	Análise
Superfície/ morfologia	MEV, DRX
Profundidade	MEV, perfilometria, NPD
Composição	IBA
Concentração	IBA, NPD

Fonte: autor da tese.

Para verificar se o tempo de deposição influencia na superfície depositada no filme, imagens dos filmes de boro enriquecido com energia de 177(6) μJ foram obtidas via MEV (modelo TM300) para diferentes tempos de deposição, mostradas na Figura 19. A partir dessa figura pode-se notar que a superfície apresenta o aspecto de flocos, além de ser possível perceber o mesmo comportamento verificado no perfilômetro, com regiões centrais com maior deposição, fato que pode ser atribuído ao processo de expansão da pluma durante a deposição na técnica de PLD que segue o modelo de Anisimov, ou seja, uma distribuição elipsoidal (ANISIMOV; BÄUERLE; LUK'YANCHUK, 1993). Além disso, o aspecto da superfície não apresentou alteração significativa com o aumento do tempo de deposição.

Figura 19 - Imagens obtidas no MEV dos filmes de boro enriquecido com energia de 177(6) μ J para diferentes tempos de deposição.

Fonte: autor da tese.

Após seis meses foram obtidas novas imagens desses filmes (Figura 20) que revelam uma mudança, apresentando ausência de flocos, fato que pode ser atribuído ao processo de oxidação do boro. Portanto, foi possível notar pelas imagens do MEV que não houve alterações na superfície devido à variação do tempo de deposição.

Figura 20: Imagens obtidas no MEV dos filmes de boro enriquecido após seis meses tempo de fabricação para a energia de 177 com diferentes tempos de fabricação.

Fonte: autor da tese.

Para investigar a natureza dos flocos foi feita a Difração de Raios X, no Laboratório de Difração do Centro de Combustíveis Nucleares (CCN-IPEN), do alvo de boro enriquecido e de um dos filmes de boro, conforme ilustrado na Figura 21. Nesta análise, foi feita a comparação dos difratogramas do alvo de boro com o do filme, já que o alvo utilizado possui uma estrutura cristalina (powder diffraction file—PDF—#80-0322). Desse modo foi possível notar que o filme (powder diffraction file—PDF—#13-0570) não reproduziu o mesmo comportamento do alvo, e o contínuo indica que a estrutura do filme é amorfa e os dois picos (setas) evidenciam que houve a presença de óxidos de boro.

Figura 21 - Difração de raios-X do alvo de boro (área cinza) e do filme depositado (linha preta).

Fonte: autor da tese.

De forma complementar foi feito um estudo para verificar a composição e concentração dos elementos presentes do filme via análise por feixes iônicos (IBA), no Laboratório de Materiais e Feixes Iônicos (LAMFI/IFUSP) (TABACNIKS, 1997). Neste arranjo usado, há uma limitação do tamanho da amostra, portanto não foi possível usar os filmes depositados nas lâminas de vidro. Nesta análise foram analisados oito filmes de boro natural depositado numa lamínula (área: 1 x 1 cm²) utilizando a mesma energia do laser 530 μJ e o mesmo tempo de deposição de 60 min.

Na IBA foram utilizadas três técnicas:

- ❑ Espectrometria por retroespalhamento de Rutherford (RBS): que fornece a composição e a profundidade do material ($\mu\text{g}/\text{cm}^2$);
- ❑ EBS (Elastic Backscattering Spectrometry): que permitiu quantificar a concentração de oxigênio no filme utilizando um feixe de He^+ ;
- ❑ NRA (Nuclear Reaction Analysis): permitiu quantificar a concentração de boro por meio do feixe H^+ .

O resultado destas técnicas, a relação entre a concentração dos elementos (%) em função da espessura em massa ($\mu\text{g}/\text{cm}^2$), é exemplificado na Figura 22. Nesta análise, o filme de boro foi dividido em três partes, sendo a primeira e a segunda representando a região de boro e a terceira a transição entre a região com boro e o substrato. A última região indica a composição do substrato.

Figura 22 - Concentração (%) dos elementos em função do valor da espessura em massa de um filme de boro natural obtida via análise de feixes iônicos (LAMFI/USP).

Fonte: autor da tese.

A superfície do filme é composta por boro e oxigênio (Figura 22) indicando que houve oxidação na superfície, fenômeno que já foi reportado nos filmes feitos via PLD (COSTA et al., 2018; DELLASEGA et al., 2017; WANG et al., 2004). Essa oxidação pode ser atribuída à presença de vapores residuais de água e oxigênio na câmara de vácuo, e também associado à exposição do material na atmosfera (ar). Para estimar a concentração de oxigênio nas camadas conversoras analisadas via IBA, foi feita uma média entre a razão estequiométrica entre a concentração de oxigênio e boro (O/B), conforme mostrado na Tabela 3. A média obtida foi de $(25 \pm 5) \%$, valor compatível com os 20% reportados na literatura consultada (DELLASEGA et al., 2017; SONG et al., 2011) para filmes fabricados utilizando o laser de Nd:YAG.

Tabela 3 - Valores das concentrações, razão estequiométrica O/B (%) nas amostras analisadas.

Amostra	B (10^{15} átomos/cm ²)	O (10^{15} átomos/cm ²)	O/B (%)
1	13412 ± 335	1923 ± 106	$14,3 \pm 1,0$
2	4179 ± 105	631 ± 36	$15,0 \pm 1,0$
3	11741 ± 294	2511 ± 137	$21,4 \pm 1,3$
4	8300 ± 199	1809 ± 99	$21,8 \pm 1,3$
5	10597 ± 265	4088 ± 222	$38,6 \pm 2,3$
6	8605 ± 215	2929 ± 172	$34,0 \pm 2,2$
7	13732 ± 343	4671 ± 250	$34,0 \pm 2,0$
8	6900 ± 173	1453 ± 84	$21,1 \pm 1,3$

Fonte: autor da tese.

Além disso, um dos filmes foi utilizado para estimar a densidade a partir da combinação entre os resultados obtidos pela técnica IBA e pela perfilometria. Na técnica IBA foi fornecido o valor de profundidade do filme dado em $\mu\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$ que associado a área depositada do filme (1 cm^2) resultou no valor de massa de $3,94 \times 10^{-4} \text{ g}$. A espessura do filme foi medida no perfilômetro resultando no valor de $(2,2 \pm 0,1) \mu\text{m}$. Portanto, o valor de densidade do filme obtido foi de $(1,74 \pm 0,08) \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ que corresponde à presença do boro e do oxigênio na sua superfície. Como a contribuição específica do boro em concentração é de aproximadamente 74% (média das três regiões do filme, Figura 22), a densidade estimada do boro é de $(1,29 \pm 0,06) \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$.

De forma complementar foi feito um experimento para verificar a variação da temperatura do substrato durante o processo de deposição para diferentes energias do laser utilizando uma lamínula (1 cm^2) com a mesma dimensão do fotodiodo (TSTG, 2018). A motivação deste experimento está associada ao fato de que como o arranjo experimental utilizado é versátil, é possível fazer a deposição no próprio fotodiodo de Si. Porém, neste tipo de substrato o aumento da temperatura poderia afetar as suas propriedades eletrônicas. Neste experimento optou-se pelo uso da lamínula no lugar do fotodiodo, devido ao fato desse material ser constituído praticamente de Si. Na deposição da lamínula foi utilizado o suporte ilustrado na Figura 23, que foi produzido para encaixar especificamente o fotodiodo de modo que apenas na região de interesse (área ativa do fotodiodo) haja deposição.

Figura 23 - Suporte para posicionar o fotodiodo sem (a) e com o fotodiodo, posição na qual o suporte foi encaixado durante a deposição a laser.

Fonte: autor da tese.

Neste experimento, as lamínulas foram coladas a um termopar (36 AWG) e as leituras de temperatura foram feitas em um computador. A variação da temperatura em relação ao tempo de deposição para diferentes valores da energia do laser está ilustrada na Figura 24. Após o tempo de deposição de 20 min ocorre a formação de um plateau e o aumento da temperatura foi de aproximadamente 8°C para a energia de $(273,01 \pm 3,6) \mu\text{J}$. Apesar do processo de deposição ter sido feito à temperatura ambiente (21°C), neste gráfico foi feita uma normalização nos valores de temperatura. Esse aumento de temperatura observado na Figura 24 não é suficiente para degradar no fotodiodo (MIRABELLA et al., 2013).

Figura 24 – Variação da temperatura em função do tempo de deposição para diferentes valores de energia.

Fonte: autor da tese.

Para se determinar a profundidade do filme, foi feita uma análise via NDP - Neutron Depth Profile (WEAVER; H. CHEN MAYER; G DOWNING, 2018) no NIST Center for Neutron Research (NCNR) em um dos filmes de boro enriquecido. Nesta técnica foram escolhidos seis pontos diferentes (Figura 25) que foram irradiados e após análise dos espectros produzidos pelo filme, foi obtida a relação da concentração de boro em função da espessura, cujo valor obtido nesses perfis apresentou variação entre $\approx 2,0 \mu\text{m}$ e $\approx 2,3 \mu\text{m}$. Após essa análise, o filme foi partido em 14 pedaços (Figura 26), que foram analisados via MEV (Zeiss Ultra 60). A espessura de cada um deles foi medida e o valor médio foi $(2,04 \pm 0,53) \mu\text{m}$. Os resultados do valor da espessura do filme obtidos por essas duas técnicas são similares, e compatíveis com a previsão de espessura usando o valor da taxa de deposição para a energia usada e usando as medidas via perfilômetro.

Figura 25 - Pontos irradiados do filme de boro (área azul) pelo fluxo de nêutrons. Os pontos 2 e 5 estão localizados a aproximadamente 2,5 mm do ponto 1. Ponto 6 está a ~ 1 mm do ponto 3.

Fonte: NCNR.

Figura 26 – Exemplo de uma imagem do MEV utilizado para medir a espessura do filme de boro.

Fonte: NCNR.

2.2.3.4 Fabricação de filmes para utilização no protótipo

Na fabricação de filmes para serem utilizados no protótipo do detector de nêutrons foram feitos dois tipos de deposições

- ☐ Deposição direta no fotodiodo;
- ☐ Deposição em lamínula de vidro que posteriormente seria sobreposta ao fotodiodo.

No processo de deposição direta do boro no fotodiodo foram testados 3 diferentes fotodiodos, usando a energia de 177(6) μJ com diferentes tempos de deposição para cada um. Na Figura 27 está apresentada uma imagem da face ativa de um dos fotodiodos depositado com ^{10}B ao lado de um sem deposição. Após essa deposição foram feitos testes para verificar se houve alteração na sua resposta eletrônica, cujos detalhes estão descritos no capítulo 3 e o resultado foi que houve alteração no valor de sua tensão de trabalho e um aumento na corrente de fuga. Foi feita uma medida utilizando a técnica NDP, e nesta análise foram comparados os perfis de profundidades de um fotodiodo sem e com deposição de boro e o resultado obtido mostrou que não houve migração do boro para a região de depleção do detector, o que poderia ser uma das causas das alterações. Portanto, novos testes devem ser feitos para estudar a causa dessa alteração.

Figura 27 - Deposição do ^{10}B direta na superfície do fotodiodo.

Fonte: autor da tese.

Para a deposição na lamínula foram produzidos filmes de boro enriquecido, conforme exemplificado na Figura 28, com a dimensão de 1 cm^2 (igual à área ativa do detector), espessura de $(2,4 \pm 0,3)\text{ }\mu\text{m}$, utilizando os seguintes parâmetros experimentais: $177\text{ }\mu\text{J}$ e $1\text{h}15\text{ min}$.

Figura 28 - Filme de boro enriquecido ($1 \times 1\text{ cm}^2$) para ser usado na detecção de nêutrons.

Fonte: autor da tese.

2.2.4. Considerações gerais sobre a produção dos conversores

A técnica de PLD para a fabricação dos filmes de boro mostrou-se versátil ao permitir o uso de diferentes tipos de substratos (lâmina de microscópio, lamínula e o fotodiodo). Foram fabricados ao todo 69 materiais conversores, especificamente 45 para o estudo do perfil de deposição. Na Tabela 4 estão relacionados os filmes que foram produzidos, assim como os seus respectivos propósitos.

Tabela 4 - Filmes produzidos de boro natural (B) - boro enriquecido ^{10}B e seus respectivos propósitos.

Quantidade de filmes	Alvo	Substrato	Propósito
45	^{10}B e B	Lâmina	Taxa de deposição
14	B	Lamínula	Conversor do detector
3	^{10}B e B	Fotodiodo	Conversor do detector
7	^{10}B	Lamínula	Conversor do detector

Fonte: autor da tese.

A metodologia para medir a espessura desenvolvida neste trabalho, por meio do perfilômetro, foi validada por comparação com os valores de NPD e MEV. A técnica proposta para fabricar os filmes mostrou-se reprodutível (todas as deposições de teste foram feitas em triplicata e tiveram a espessura medida) possibilitando deposição com os valores de espessura desejados, ou seja, na faixa entre 3,5 e 4,0 μm .

CAPÍTULO 3: DETECTOR DE NÊUTRONS TÉRMICOS

Neste capítulo serão abordados os principais tópicos referentes à detecção de nêutrons térmicos assim como à caracterização do protótipo desenvolvido, divididos em três partes principais:

- ❑ Conceitos teóricos sobre os nêutrons, como são classificados e os seus principais modos de interação com a matéria (seção 3.1);
- ❑ A revisão da literatura referente aos detectores de nêutrons térmicos baseados no boro (seção 3.2);
- ❑ Caracterização do sistema de detecção, composto pela eletrônica associada ao fotodiodo-boro (seção 3.3).

3.1 Nêutrons e sua interação com a matéria – Uma breve introdução

O nêutron possui a massa atômica de $1,674927471(21) \cdot 10^{-27}$ kg (“CODATA”, 2019), não têm carga elétrica, quando livre decai (ZAMBONI, 2007) com a meia-vida de 10,235(23) min em um próton (p), um elétron (e) e um antineutrino ($\bar{\nu}$). Os nêutrons podem ser classificados de diversas formas, neste trabalho a classificação dos nêutrons foi feita de acordo com a sua energia (CURTIS, 1959), conforme ilustra a Tabela 5.

Tabela 5 - Classificação dos nêutrons em função das faixas de energias.

Tipos de nêutrons	Faixas de energia
Lentos	0 a 1000 eV
Intermediário	1000 eV a 0,5 MeV
Alta energia	0,5 a 10 MeV

Fonte: (CURTIS, 1959).

Os nêutrons lentos podem ser subdivididos (CURTIS, 1959) em três grupos principais:

- ❑ Epitérmico: sua energia é maior que 0,5 eV e não seguem a distribuição de Maxwell;
- ❑ Térmicos: possuem a energia média de 0,025 eV, seguem a distribuição de Maxwell e estão em equilíbrio térmico com o meio;
- ❑ Frios: possuem energia menor que a dos nêutrons térmicos.

Os nêutrons interagem com os núcleos por quatro processos (CURTIS, 1959) principais: espalhamento elástico e inelástico, reações de absorção e fissão nuclear. Na Tabela 6 estão indicadas as características das principais interações possíveis do nêutron com a matéria.

Tabela 6- Características das principais interações do nêutron com a matéria.

Espalhamento elástico	O núcleo não sofre nenhuma mudança em sua composição isotópica ou na sua energia interna após a colisão. A energia cinética do sistema se conserva.
Espalhamento inelástico	O núcleo não sofre nenhuma modificação em sua composição isotópica. O nêutron transfere energia para o núcleo deixando o mesmo em estado excitado.
Reações de absorção	Podem ser divididas em função da energia do nêutron incidente e do produto final: a) Captura Radioativa: (n,γ) ; b) Partícula Carregada (n,p) , (n,α) ; c) Nêutrons de Alta Energia $(n,2n)$, $(n,3n)$.
Fissão	O nêutron ao colidir com certos núcleos pesados pode provocar a fragmentação nuclear em dois, sendo liberada considerável energia neste processo. Como por exemplo, a fissão do ^{235}U na qual podem ser produzidos, por exemplo, o ^{141}Ba e o ^{92}Kr , liberando energia e de dois a três nêutrons.

Fonte: (KNOLL, 2010).

Todas as emissões subsequentes à captura dos nêutrons, assim como o recuo de um núcleo leve após o espalhamento, são radiações ionizantes que podem ser facilmente detectadas. Sendo assim, levando em conta os principais processos de interação dos nêutrons com a matéria, a sua detecção pode ser feita por alguns processos (PRICE, 1964), especificamente: reações de absorção, fissão nuclear e espalhamento elástico (usado para nêutrons rápidos).

A secção de choque (CURTIS, 1959) é um parâmetro que expressa a probabilidade de interação do nêutron com o alvo e dependente da energia do nêutron incidente (ZAMBONI, 2007), é necessário que o material conversor tenha uma alta probabilidade de interação com o nêutron (alta secção de choque). A secção choque microscópica (σ) é dada em *barn* (b) que equivale a 10^{-24} cm^2 . Os principais isótopos utilizados na detecção de nêutrons térmicos com suas respectivas reações nucleares estão indicados na Tabela 7.

Tabela 7 - Materiais conversores e suas respectivas reações nucleares para a detecção de nêutrons térmicos.

Conversor	Reação nuclear
^3He	$^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$ ($\sigma_c = 5330 \text{ barn}$)
^6Li	$^6\text{Li}(n,\alpha)^3\text{H}$ ($\sigma_c = 940 \text{ barn}$)
^{10}B	$^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ ($\sigma_c = 3840 \text{ barn}$)
^{235}U	$^{235}\text{U} + n \rightarrow ^{141}\text{Ba} + ^{92}\text{Kr}$
^1H	$^1\text{H}(n,n)^1\text{H}$

* σ_c é a secção microscópica de captura

Fonte: (ZAMBONI, 2007).

3.2 Revisão da literatura

Os detectores baseados em semicondutores revestidos com materiais conversores já vêm sendo investigados por muitas décadas. Esses detectores são formados principalmente por diodos planares revestidos com boro enriquecido (^{10}B), fluoreto de ^6Li (^6LiF) ou gadolínio (Gd). Essa configuração apresenta algumas limitações associadas à eficiência de detecção (^{10}B , ^6LiF) e à capacidade de distinguir radiações de fundo das interações induzidas por nêutrons (no caso do Gd) (MCGREGOR; BELLINGER; SHULTIS, 2013). Pode-se utilizar uma camada conversora adequada juntamente com semicondutor ou uma camada conversora como parte integrante do dispositivo semicondutor.

Um estudo teórico sobre a detecção de nêutrons foi feito por MCGREGOR e colaboradores (MCGREGOR et al., 2003) considerando diversas configurações do sistema de detecção, inclusive a mesma deste estudo, diodos planares revestidos com boro enriquecido. Para este caso, o valor de espessura do filme em função do alcance das partículas ionizantes (α, Li) foi estimado (espessura de 2,5 μm) e sua eficiência de detecção foi calculada para a configuração de irradiação frontal de nêutrons no filme de boro, chegando a um valor de eficiência de detecção de ~4%.

No trabalho de GAO (GAO et al., 2015), uma alternativa para aumentar a eficiência de detecção de nêutrons para diodos planares foi proposta utilizando fotodiodos do tipo PIN associados em série ou em paralelo. Neste trabalho conclui-se que essas configurações apresentaram aumento da eficiência de conversão sendo a configuração com os detectores empilhados em série apresentando os melhores resultados.

Novos semicondutores vêm sendo desenvolvidos visando alcançar aumento na eficiência de detecção de nêutrons e as propostas baseiam-se em produzir fotodiodos com uma matriz com padrões microestruturados gravados no substrato e, posteriormente, preenchidos com materiais conversores. Em um desses dispositivos com menos de 1 mm de espessura em menos de 5 volts já foram alcançados valores de eficiência intrínseca superiores a 40% (MCGREGOR; BELLINGER; SHULTIS, 2013).

Nas Tabela 8 e Tabela 9, estão indicadas as principais características dos detectores de nêutrons térmicos, baseados no boro e que utilizam o semicondutor de Si, reportados na literatura.

Tabela 8 – As principais características dos detectores de nêutrons térmicos construídos que utilizam o semicondutor de Si do tipo PIN e os vários tipos de matérias conversores de boro.

Semicondutor (Si)	Material conversor	Características gerais
Tipo PIN	BC (carbeto de boro) (CHAUDHARI et al., 2015)	O fotodiodo e o filme foram fabricados. O filme foi depositado diretamente na face do fotodiodo via técnica CVD, com o valor de espessura que variou de 0,2 a 0,5 μm . O sistema foi caracterizado em um fluxo de nêutrons térmicos de $10^6 \text{ cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$. A tensão aplicada foi de 5 V e a eficiência de detecção foi menor que 1%. Reporta que não houve degradação significativa na resposta eletrônica do semicondutor.
	^{10}B (WALKER et al., 1998)	O fotodiodo utilizado foi o S3590-04 da Hamamatsu. O material conversor possui a espessura de aproximadamente 5 μm e não faz nenhuma menção ao método de fabricação do filme. Caracterizou o sistema de detecção com uma fluxo de nêutrons de $100 \text{ cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$.
	^{10}B (NIKOLIC et al., 2010)	O material conversor foi depositado entre nove pilares de Si. via técnica CVD, cada pilar possui a distância de 2 μm . A eficiência de detecção máxima foi de 20% e a tensão aplicada foi de 3 V.

Fonte: autor da tese.

Tabela 9 – As principais características dos detectores de nêutrons térmicos construídos que utilizam diversos tipos semicondutores de Si e os vários tipos de materiais conversores de boro

Heterodiodos	B (TOMOV et al., 2008)	O detector usa uma junção de p-n com o Si tipo wafer. O filme de boro foi fabricado via técnica CVD.com os valores de espessura de 1,1 e 1,7 μm
	BC (HONG et al., 2010)	A heterojunção é feita com o filme de BC e o silício do tipo n. O filme foi fabricado via técnica CVD, com os valores de espessura de 1,0 e 1,8 μm . A fluência de nêutrons térmicos utilizada foi de $3.10^3 \text{ cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$
SiC	^{10}B (ISSA et al., 2016)	O material conversor depositado via implantação iônica. Usou um diodo no formato wafer do tipo 4H-SiC.
Barreira de superfície	$\text{C}_2\text{B}_{10}\text{H}_{12}$ (GUARDIOLA et al., 2011).	O detector possui a dimensão de aproximadamente 12 cm, opera na tensão de $\pm 5 \text{ V}$. Apresenta a calibração do sistema sem o material conversor para as partículas alfa usando as fontes ^{239}Pu , ^{241}Am e ^{244}Cu .
Microestruturas	B (DAHALL et al., 2012)	Desenvolve um detector com auto-alimentação, ou seja, não aplicou tensão no sistema. Esse detector é baseado em microestruturas de Si no formato de favo de mel que são revestidas com o material conversor utilizando a técnica CVD. A eficiência intrínseca foi medida utilizando a fonte ^{252}Cf . O valor de fluxo de nêutrons térmicos é de $888 \text{ cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ e a eficiência intrínseca é de $4,5\% \pm 0,5\%$.

Fonte: autor da tese.

É importante ressaltar que uma das limitações do uso de semicondutores de silício convencionais na detecção de nêutrons está associada à capacidade de adaptação deste material em ambientes severos, como por exemplo (ISSA et al., 2016) a alta temperatura e fluxos de radiação altos ($>10^{14}\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$). Nos trabalhos consultados (HASEGAWA et al., 1989; LEMEILLEUR et al., 1992) foram feitos estudos sobre possíveis danos na eletrônica, em um deles num Si do tipo “biscoito” que foi irradiado por nêutrons de 1 MeV e fluxo de $5\cdot 10^{13}\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ e no outro teste um fotodiodo do tipo PIN fabricado pela Hamamatsu (HASEGAWA et al., 1989) foi irradiado em um reator com fluxo de nêutrons térmicos da ordem de $10^{14}\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ e nêutrons rápidos da ordem de $10^{13}\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$. Ambos concluíram que houve um aumento na corrente de fuga do sensor, assim como observado neste estudo. Apesar da possibilidade do aumento da corrente de fuga, no trabalho da ISSA (ISSA et al., 2015) é reportado que dois diodos que utilizam ^{10}B como material conversor foram irradiados, com um fluxo de nêutrons térmicos de $10^{14}\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ sem que a resposta eletrônica do sistema apresentasse alguma alteração no comportamento eletrônico.

Detectores de nêutrons portáteis e compactos com filmes de boro (GUARDIOLA et al., 2011; TOMOV et al., 2008; WALKER et al., 1998) já vêm sendo reportados na literatura, no entanto nenhum deles foi fabricado por meio da técnica PLD e, em um desses trabalhos a eficiência de detecção para o filme de $2,5\text{ }\mu\text{m}$ de ^{10}B foi aproximadamente 5%. A tensão aplicada nos detectores portáteis variou de 4,5 a 5 V (GUARDIOLA et al., 2011; WALKER et al., 1998).

Como é possível observar, diversos detectores de nêutrons vêm sendo desenvolvidos. Os mais eficientes são aqueles baseados em semicondutores microestruturados, no entanto, nos trabalhos consultados a maior parte é baseada em conversores de Li pois o uso desse tipo de material facilita a fabricação do detector pois devido aos valores de energia das partículas serem maiores, a quantidade de Li adicionada pode ser maior. Porém, a maioria desses trabalhos usa o LiF devido à dificuldade de se fabricar filmes com Li puro já que é corrosivo e quimicamente reativo e o preenchimento desse material nas microestruturas em geral é feito por processos de centrifugação (MCGREGOR; BELLINGER; SHULTIS, 2013; OCHS et al., 2016).

A limitação do uso de boro como material conversor em detectores baseados em microestruturas está no valor de espessura do filme que deve ser da ordem de 3 μm (DANON et al., 2012). Este trabalho apresenta dados de uma simulação feita com o método de Monte Carlo no qual obteve-se, com o uso de ^{10}B para preencher as microestruturas, uma eficiência de 45%.

Além disso, a maioria dos detectores baseados em semicondutores planares em geral são feitos com compostos de boro depositados diretamente na superfície pela técnica de CVD ou evaporação magnética. O único trabalho com fabricação de conversor similar ao desenvolvido neste trabalho fez apenas o filme objetivando futuro acoplamento a um detector (SONG et al., 2011).

3.3. Caracterização do sistema de detecção

A caracterização do sistema de detecção de nêutrons térmicos foi feita em duas etapas principais:

- ❑ Caracterização da resposta do sistema fotodiodo-boro: para verificar por meio da espectroscopia a resposta eletrônica deste sistema, utilizando fontes de ^{241}Am e de AmBe (seção 3.3.1);
- ❑ Caracterização dos protótipos desenvolvidos: neles foi verificada a resposta de detecção do sistema em diferentes energias dos nêutrons (espectro predominantemente térmicos e frios), de modo a se obter a eficiência intrínseca do protótipo proposto (3.3.2).

3.3.1 Caracterização da resposta do sistema fotodiodo-boro

A caracterização do sistema fotodiodo-boro foi feita por meio de uma eletrônica associada, pois como o sinal da eletrônica produzida por um detector de estado sólido tem baixa intensidade é necessário amplificá-lo e então é possível com multicanal obter o espectro.

Os primeiros experimentos para verificar a resposta do sistema fotodiodo-boro foram feitos no Laboratório de Experimentos Nucleares (LEN) do Centro do Reator de Pesquisas (CRPq) localizado no IPEN. O sistema foi irradiado inicialmente usando uma fonte eletrodepositada de ^{241}Am ($14,31 \pm 81$ Bq) posicionada o mais próximo possível do fotodiodo, visando verificar sua resposta para a radiação alfa (sem o filme conversor). O resultado permitiu conhecer a forma do espectro de ^{241}Am no fotodiodo. Posteriormente o sistema foi irradiado por uma fonte de nêutrons de AmBe (37 GBq). Neste experimento, cujo arranjo experimental está ilustrado na Figura 29, o filme de boro natural (chamado de filme A com $1,20 \mu\text{m}$ de espessura) foi posicionado na face do fotodiodo (S3590-04, Hamamatsu) que foi posicionado no interior de uma caixa para evitar a incidência de luz. Além disso, para termalizar os nêutrons da fonte de AmBe, que possui um espectro com nêutrons térmicos, epitérmicos e rápidos, foram utilizados blocos de parafina. No fotodiodo foi aplicado o valor de tensão reversa de 30 V (Ortec 459), pois nesta situação ocorre um aumento na camada de depleção do detector que proporciona uma região ativa maior, aumentando assim as contagens registradas.

Figura 29 – Fluxograma do arranjo experimental da caracterização do sistema fotodiodo-boro.

Fonte: autor da tese.

Os espectros experimentais foram obtidos a partir dos sinais eletrônicos produzidos pela interação da radiação, pré-amplificados (modelo 142A, EG& G- ORTEC) e amplificados sendo então registrados no multicanal. Na Figura 30 está indicado o espectro do filme A, com contagem líquida total (integração de todo espectro) respectivamente para 4 cm e 6 cm de parafina de $(4,91 \pm 0,01) \times 10^5$ e $(3,38 \pm 0,01) \times 10^5$ e essa diferença nos valores entre as contagens mostra que com 6 cm de parafina os nêutrons térmicos podem estar sendo absorvidos e/ou espalhados na parafina.

Figura 30- Espectro do filme A com a fonte AmBe e os blocos de parafina de 4 e 6 cm.

Fonte: autor da tese

Como já dito, a contagem líquida de nêutrons foi obtida de forma indireta, a partir da contribuição das partículas ionizantes (α , ${}^7\text{Li}$) resultantes da reação nuclear ${}^{10}\text{B}(n,\alpha){}^7\text{Li}$. Desse modo, para distinguir a contribuição feita pelos nêutrons térmicos foi feita uma medida de radiação de fundo na qual se considerou apenas a interação da fonte de AmBe com o fotodiodo sem o material conversor cujo valor de contagem foi subtraído das contagens totais obtidas na irradiação do fotodiodo com o material conversor.

Portanto a partir dos resultados apresentados (Figura 30) foi possível verificar e comprovar que o sistema fotodiodo-boro pode ser aplicado para a detecção de nêutrons térmicos. O fotodiodo utilizado neste experimento não é mais fabricado pela Hamamatsu e foi substituído pelo modelo S3590-09, ambos os modelos tem a vantagem de não possuírem a camada de epóxi sob a área ativa de detecção fato que permite uma contagem melhor das partículas alfa.

Na caracterização do sistema de detecção é importante verificar a resposta eletrônica do fotodiodo tanto após ser irradiado por fontes radioativas como também no caso da deposição direta do boro na área ativa do detector. Para tal intuito inicialmente foi obtido o valor de tensão de trabalho e o valor de corrente de fuga para o fotodiodo a ser usado. Este experimento foi realizado no Laboratório de Controle de Qualidade e Caracterização de Detectores no Centro Tecnológico de Radiações (CTR-IPEN).

Neste experimento, o fotodiodo foi posicionado juntamente com uma fonte de ^{241}Am colimada (Figura 31) de modo que as emissões alfa incidissem na face ativa do fotodiodo no interior de um recipiente que não permite a entrada de luz. Contido nesse recipiente também estava o pré-amplificador (AD25F).

Figura 31 – Fonte ^{241}Am e colimador utilizada na caracterização do fotodiodo.

Fonte: autor da tese.

A tensão reversa do fotodiodo foi variada (Bias Supply, Ortec 459) e o sinal elétrico produzido foi pré-amplificado, amplificado (Ortec 450) e lido num multicanal e assim obtidos os espectros. A tensão aplicada no fotodiodo foi medida utilizando um multímetro e a corrente de fuga foi medida no amperímetro (KEITHLEY 619). Para cada um desses valores foi anotada a posição na qual se formou o pico resultante de todas as emissões alfa (o detector não apresentou resolução suficiente para distinguir as diferentes contribuições desse decaimento), que foi utilizado como um valor de referência para estabelecer as mesmas condições experimentais e verificar se houve alguma alteração na resposta eletrônica. Na Figura 32 é mostrada a curva formada pela relação entre o canal do pico no multicanal com a variação da tensão aplicada para dois fotodiodos da Hamamatsu modelo S3590-09.

Figura 32 - Relação entre altura de pulso em função da tensão para dois fotodiodos do modelo S3590-09.

Fonte: autor da tese.

A partir dos resultados da Figura 32 foi determinada a tensão de trabalho no valor de 60 V para ambos os fotodiodos, ou seja, a tensão na qual a contagem das partículas alfa é maximizada. O valor de corrente de fuga durante todo experimento apresentou valores entre 1 a 2 nA. Esses valores foram utilizados para fins de comparação na caracterização dos fotodiodos que tiveram deposição de boro diretamente em suas faces ativas e também nos que foram irradiados por nêutrons.

Em um dos fotodiodos que foi depositado boro em sua superfície (espessura de boro: $(2,4 \pm 0,3) \mu\text{m}$), por exemplo, anteriormente tinha uma corrente de 2 nA e passou a ter 430 nA para 12,9 V. A presença do boro na área de detecção fez com que a tensão de trabalho desse fotodiodo diminuísse para 10 V. Esse fenômeno se repetiu em outro fotodiodo (boro depositado: $(1,75 \pm 0,22) \mu\text{m}$) que passou a apresentar um valor de corrente de fuga de 230 nA para 4,85 V com o valor de tensão de trabalho de 4,5 V. Em todos esses fotodiodos não foi possível variar a tensão da mesma forma feita num original (sem alterar algum parâmetro).

Essas características novas mostram que o fotodiodo passou a operar na região de um diodo Zener (MILLMAN, J.; HALKIAS, 1981), pois neste tipo de diodo ao se atingir uma tensão de polarização chamada de Zener, não é possível aumentar a tensão e apenas a corrente de fuga aumenta com essa tentativa de aumento. Essas características normalmente estão associadas à alta dopagem do material.

3.3.2 Protótipos desenvolvidos

Neste trabalho foram desenvolvidos dois protótipos: protótipo 1 e protótipo 2.

O protótipo 1 está ilustrado na Figura 33, no qual no interior da caixa estão os circuitos de pré-amplificação e amplificação do sinal obtido a partir da polarização reversa no fotodiodo acoplado ao conversor (Figura 34) que são registrados num contador digital externo. O material conversor consiste num filme fino de boro enriquecido com $(2,4 \pm 0,3) \mu\text{m}$ (Figura 34) que foi acoplado ao fotodiodo no interior da caixa de alumínio. Este protótipo possui (Figura 33) três saídas de sinal (ADC, osciloscópio e pré-amplificação) e uma entrada de alimentação de 18 V, porém apenas 12,5 V chegam ao fotodiodo. Além disso, é possível ajustar o ganho do circuito. A alimentação desse sistema pode ser feita com carregador externo ligado na rede elétrica ou com pilhas.

Figura 33 – Protótipo 1 visão frontal (esquerda) e visão de trás (direita).

Visão frontal

Visão de trás

Fonte: autor da tese.

Figura 34 - caixa de alumínio (esquerda), fotodiodo (meio) e conversor (direita).

S3590-09
(Área ativa 1 cm²)

Conversor B-10

Fonte: autor da tese.

A eletrônica associada ao protótipo 1 é composta por um amplificador projetado e desenvolvido usando preferencialmente componentes de baixo custo e comercialmente disponíveis. Esse circuito de amplificação pode ser dividido em duas partes principais: o circuito de pré-amplificador e do amplificador (Figura 35). O circuito do pré-amplificador, que foi projetado para apresentar baixo ruído, transforma o pulso de corrente em um pulso de tensão com amplitude proporcional à carga. Desta eletrônica é possível extrair duas informações: as contagens totais e os pulsos que já foram pré-amplificados e amplificados/conformados (DOMIENIKAN et al., 2017).

Figura 35 - Esquema da eletrônica do amplificador.

Fonte: autor da tese.

O protótipo 1 foi testado em dois tipos de feixes de nêutrons: térmicos e frios. Os primeiros testes foram feitos no Laboratório LEN com a fonte de AmBe e posteriormente em um laboratório de padrão secundário, no Laboratório de Metrologia de Nêutrons (LN) pertencente ao Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes (LNMRI), do Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD) da Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN/RJ).

Nestes testes notou-se uma limitação em relação à leitura do sinal produzido pelos nêutrons, apenas foi possível fazer medições com a configuração na qual o filme não é parte integrante do fotodiodo. Após análise, identificou-se que o problema desse protótipo está na eletrônica montada, que era muito sensível a variação de ganho. Desse modo, para resolver essa situação foi feito o protótipo 2.

O protótipo 2 (Figura 36) possui três caixas: duas pretas e uma de alumínio. As caixas pretas contêm os circuitos elétricos e o contador externo. Na caixa de alumínio está o sistema fotodiodo-boro (Figura 34) análogo ao do protótipo 1. O protótipo 2 possui saídas de sinal (multicanal, osciloscópio e pré-amplificação) e a alimentação de 18 V feita com pilhas ou com o carregador externo.

Figura 36 - Visão frontal do protótipo 2.

Fonte: autor da tese.

A eletrônica associada ao protótipo 2 está ilustrada na Figura 37. O circuito do pré-amplificador do protótipo 2 (Figura 37) possui algumas vantagens em relação ao do protótipo 1 (Figura 35). O circuito amplificador é constituído basicamente por um amplificador operacional CI1 (modelo CS512 da Soshin) que é integrado por um pré-amplificador interno, diferentemente do circuito do protótipo 1 onde o pré-amplificador é constituído por transistores discretos. O sinal de corrente produzido no fotodiodo conduz uma corrente reversa proporcional à radiação ionizante incidente e é transformado em um pulso de tensão pelo CI1 cuja amplitude corresponde à energia da radiação incidente. O sinal de saída do CI1 é discriminado em nível e amplificado pelo CI2 (modelo CA3140). A discriminação em nível permite a seleção da energia mínima da radiação. O pulso resultante é aplicado no transistor Q1, 2N2222, condicionando a impedância de saída do circuito para cerca de 50 Ohms. O sinal de saída do circuito é posteriormente aplicado em um analisador multicanal para geração dos espectros em energia.

Figura 37 - Esquema da eletrônica do amplificador do protótipo 2.

Fonte: autor da tese.

Na caracterização dos protótipos o cálculo da eficiência intrínseca (KNOLL, 2010) foi feito considerando as contagens líquidas no detector em função do número de nêutrons incidentes no material conversor. Para caracterizar os protótipos foram realizados alguns experimentos:

- ☐ Resposta ao feixe de nêutrons: verificar as contagens obtidas devido à interação de nêutrons via espectros experimentais;
- ☐ Linearidade: para verificar qual é a resposta do sistema com o aumento do fluxo e se há saturação da mesma;
- ☐ Variação angular: verificar a resposta isotrópica do protótipo ao variar o ângulo de incidência do feixe;
- ☐ Repetitividade: verificar se as medidas são reproduzíveis.

As principais informações sobre o protótipo 1 que foi caracterizado com dois tipos de feixes: térmicos e frios, estão descritos na seção 3.3.2.1, incluindo os resultados experimentais obtidos juntamente com a discussão dos mesmos. De forma análoga, na seção 3.3.2.2 está apresentada o protótipo 2 e sua caracterização.

3.3.2.1 Protótipo 1

3.3.2.1.1 Caracterização por nêutrons predominantemente térmicos

Inicialmente foi feito um teste da resposta eletrônica do protótipo 1 no laboratório LEN (CRPq-IPEN) com a fonte de AmBe ($3,7 \times 10^{10}$ Bq). O protótipo foi posicionado no interior da blindagem de parafina (Figura 38). O fotodiodo foi polarizado reversamente utilizando o carregador de notebook. Na Figura 39 está ilustrado o exemplo de espectro obtido.

Figura 38 - Arranjo experimental do LEN: blindagem (esquerda) e visão de cima do detector-fonte (direita).

Fonte: autor da tese.

Figura 39 - Espectro experimental obtido do protótipo 1 no LEN.

Fonte: autor da tese.

Posteriormente, o protótipo 1 foi caracterizado no Laboratório de Fluxo de Térmicos (LFT/LN) que possui uma instalação, conforme ilustrado na Figura 40, na forma de um cubo ($1,2 \times 1,2 \times 1,2 \text{ m}^3$) sobre uma plataforma de aço. Nela há uma câmara central ($10 \times 10 \times 10 \text{ cm}^3$) situada no centro da pilha, a qual é conectada ao exterior por meio de um canal ($10 \times 10 \times 55 \text{ cm}^3$). Neste arranjo, existem quatro fontes de $^{241}\text{Am-Be}$, cada uma com 596 GBq, foram posicionadas entre a região da parafina e do grafite.

Figura 40 - Visão esquemática da instalação do LFT/LN/IRD/CNEN.

Fonte: (ASTUTO, 2016).

Neste arranjo foram feitos quatro experimentos:

- Variação da distância fonte detector (25 a 200 cm): para verificar a relação entre as contagens em função da distância fonte-detector. O detector foi posicionado sobre num suporte (Figura 41) que permitiu sua movimentação em linha reta com distâncias controladas;
- Linearidade: variação do tempo de irradiação: 5, 10, 15, 30, 45 e 60 min;
- Medida de repetitividade; 10 medidas com tempo de irradiação de 10 min;
- Variação angular: foram feitas marcas no suporte (Figura 42) com um transferidor dos seguintes ângulos: 0° , 30° , 60° , 90° .

Figura 41 – variação da distância fonte–detector de 25 a 200 cm no LFT.

Fonte: autor da tese.

Figura 42 – Detector posicionado na mesa (esquerda), marcas feitas na mesa com a variação dos ângulos (direita).

Fonte: autor da tese.

A relação entre as contagens e a distância está indicada na Figura 43, na qual os valores de contagens foram obtidos a partir de espectros com tempo de aquisição de 5 min. A partir desta figura é possível notar que há um decréscimo nas contagens em função do aumento da distância.

Figura 43 – Relação entre as contagens em função da distância fonte detector.

Fonte: autor da tese.

No restante dos experimentos a distância fonte-detector foi fixada em 50 cm, pois, apesar da posição de 25 cm ter apresentado o maior número de contagens optou-se por escolher uma taxa menor visando evitar qualquer efeito relacionado a danos no fotodiodo ou mesmo na eletrônica nesta etapa de caracterização (neste momento ainda não havia sido estudado os efeitos da radiação no fotodiodo).

Para verificar a linearidade foi variado o tempo de irradiação de 5 a 60 min, cujos valores das contagens líquidas em função do tempo estão ilustrados na Figura 44, na qual é possível notar que o protótipo apresenta uma resposta linear e o ajuste linear resultou no coeficiente angular de $(5,50 \pm 0,04)$ contagens por segundo (cps).

Figura 44 – Relação entre as contagens em função do tempo de irradiação do protótipo 1 na posição de 50 cm. As barras de erro são menores que os pontos no gráfico.

Fonte: autor da tese.

O valor da eficiência intrínseca percentual medida para o espectro desta fonte do protótipo 1 foi de $(1,17 \pm 0,01) \%$. Para calcular essa eficiência (KNOLL, 2010) do protótipo é preciso conhecer o valor de fluxo de nêutrons térmicos na posição de 50 cm, que já foi obtido previamente via método de Monte Carlo, descrito num trabalho prévio (ASTUTO et al., 2016), no qual a contribuição dos nêutrons térmicos ($< 0,5$ eV) é de aproximadamente 65,3 % do fluxo total, o restante do fluxo é composto por nêutrons epitérmicos (21,7% de contribuição) e nêutrons rápidos (11%). Essa contribuição para o fluxo térmico, para a distância de 50 cm corresponde a $(470 \pm 4) \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. Neste trabalho foi levada em conta apenas a contribuição dos nêutrons térmicos no cálculo da eficiência intrínseca, porém como se trata de fluxo misto (térmicos, epitérmico, rápido), para se obter a eficiência intrínseca total teríamos que considerar a contribuição individual de cada um dos fluxos associada a sua secção de choque. No apêndice B está detalhado o cálculo da eficiência intrínseca fornecido por esta fonte de nêutrons.

A estabilidade e reprodutibilidade do protótipo 1 foi medida em 10 pontos num tempo de irradiação de 10 min, conforme ilustrado na Figura 45, na qual N é o número de medidas (10) e as linhas indicam os limites: superior e o inferior, definidos a partir do valor da média (4272) em relação ao desvio padrão obtido (76).

Figura 45 – Relação entre as contagens e o número de medidas (N) na distância de 50 cm com o tempo de irradiação de 10 min.

Fonte: autor da tese.

A partir da Figura 45 é possível notar que os dados experimentais estão dentro dos limites e pode-se concluir que houve reprodutibilidade nas medidas.

Na resposta angular do protótipo 1, o comportamento da contagem líquida em função da variação angular está ilustrada na Figura 46. Foi possível notar que essa resposta não foi isotrópica e apresentou um decréscimo na contagem ao se variar de 0° a 90°.

Figura 46 – Relação entre as contagens em função da variação dos ângulos.

Fonte: autor da tese.

Durante os experimentos feitos no laboratório LFT, o protótipo 1 apresentou alguns problemas na leitura dos nêutrons. Inicialmente associou-se essa falha a uma possível saturação no fotodiodo, e mesmo trocando os sensores o protótipo continuou sem resposta. Desse modo, após a irradiação do protótipo 1 foi feita uma caracterização do fotodiodo e uma verificação na eletrônica. Em relação ao fotodiodo e a eletrônica associada não houve danos, sendo necessário apenas ajustar algumas configurações no circuito. Como já mencionado, devido à necessidade de ajuste da eletrônica foi desenvolvido um novo protótipo, o 2, com eletrônica de maior estabilidade.

3.3.2.1.2 Caracterização com nêutrons frios

A caracterização do prototipo 1 utilizando nêutrons frios foi feita num feixe com valor bem conhecido na estação PHADES (Polarized ³He and Detector Experiment Station) (ERWIN; KRYCKA; WATSON, 2018) no NCNR (NIST Center for Neutron Research). O fluxo de nêutrons nesta estação é de $2,0 \times 10^6 \text{ n. cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ e é monocromático com energia de 4.86662 (6) meV.

O feixe foi colimado por meio de duas barras feitas de alumínio borado com a abertura de 5 mm x 20 mm e um atenuador de vidro de borado (transmissão de nêutrons = 0,15). O atenuador foi acrescentado no experimento para reduzir o fluxo de nêutrons, para que o tempo morto do sistema fosse pequeno. A distância fonte-detector foi de 70 cm e como o fluxo de saída possui a mesma geometria da barra colimadora (0,5 cm x 2,0 cm), foi feita uma correção no valor do fluxo baseada neste valor de área no qual resultou num fluxo de valor $(1.07 \pm 0.09) \times 10^4 \text{ cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ na região do filme de boro. Na Figura 47 está ilustrada a interação dos nêutrons frios em diferentes posições do arranjo experimental.

Figura 47 - Conceito do arranjo experimental utilizado na estação PHADES para a caracterização do protótipo 1.

Fonte: autor da tese.

Quatro experimentos foram realizados no arranjo experimental da Figura 47:

- ✓ Resposta a nêutrons na posição de 0°;
- ✓ Linearidade: variando o tempo de irradiação na posição 0°;
- ✓ Variação angular: de -90° a 90°, para cada 5° em 10 min;
- ✓ Repetitividade: foram feitas 30 medições num período de 10h na posição de (0°), cada uma com o tempo de aquisição de 10 min sendo que para cada medida foi feita uma pausa de 10 min sem registrar nenhuma contagem e em seguida iniciava novamente as medições.

O protótipo 1 foi fixado em uma mesa com um goniômetro, que permitiu um acesso remoto por meio do qual pôde-se programar a movimentação do detector. Inicialmente a caixa de alumínio foi alinhada de modo a garantir que o material conversor estivesse perpendicular à direção do feixe de nêutrons.

A resposta do protótipo 1 aos nêutrons frios está ilustrada na Figura 48. a radiação de fundo (Bg) apresenta uma contagem baixa em relação à contagem bruta.

Figura 48 - Espectro do protótipo 1 irradiado com nêutrons frios por 120 s. As barras de erro são menores que os pontos no gráfico (1).

Fonte: autor da tese.

Para verificar a linearidade do sistema foi variado o tempo de irradiação, cuja relação entre as contagens e o tempo está indicada na Figura 49. A resposta para as diferentes fluências permite verificar que o protótipo 1 possui um comportamento linear e cujo ajuste linear resultou num coeficiente angular de (8810 ± 7) cpm.

Figura 49 - Relação entre a contagem e o tempo de irradiação por nêutrons frios na posição de 0°. As barras de erro são menores que os pontos.

Fonte: autor da tese.

A eficiência intrínseca do protótipo 1 obtida via irradiação de feixe de nêutrons frios foi de $(1,37 \pm 0,01) \%$, considerando que o número total de nêutron que atigem a região do filme de boro é de $(6.4 \pm 0.5) \times 10^5$.

A relação entre posição angular e as contagens está ilustrada na Figura 50. A partir desse resultado, nota-se que durante o alinhamento houve um deslocamento da posição de 0° para 15°, já que era esperado que na posição na qual o feixe incide perpendicularmente e direto na face (0°) houvesse o maior valor de contagem e a resposta angular não foi isotrópica, ou seja, a mesma em todas os ângulos.

Figura 50 - Relação entre as contagens e os ângulos para o tempo de aquisição de 10 min.

Fonte: autor da tese.

Finalmente, por meio das medidas de repetitividade, foi feita a média (88773) e o desvio padrão da média (271) de modo a se estabelecer um limite inferior e superior (linhas pretas) em função do número de contagens (N), conforme ilustrado na Figura 51. A resposta do fotodiodo apresentou um comportamento estável.

Figura 51 - Contagens experimentais em função do número de medidas na posição de 0°.

Fonte: autor da tese.

3.3.2.2 Protótipo 2

O protótipo 2 foi caracterizado no mesmo feixe de nêutrons frios que do protótipo 1 na estação PHADES, com a distância fonte-detector de 7 cm (Figura 52). Neste arranjo foi feita inicialmente uma medida com 1 min de tempo de irradiação para fins de comparação entre o fotodiodo que foi diretamente depositado (FD) e o fotodiodo com o filme de boro (FF). Na Tabela 10, os valores de contagem da radiação de fundo e líquida estão indicados.

Figura 52 – Arranjo experimental da caracterização do protótipo 2.

Fonte: autor da tese.

Tabela 10 – Valores das contagens da radiação de fundo (Bg) e contagem líquida para o fotodiodo diretamente depositado com o ^{10}B e o fotodiodo com o filme de boro acoplado.

	Bg	Contagem líquida
FF	365 ± 19	12254 ± 114
FD	78041 ± 279	5920 ± 402

Fonte: autor da tese.

Na comparação entre os valores das contagens da Tabela 10 nota-se que no fotodiodo que foi diretamente depositado a radiação de fundo apresenta um valor alto, fato que pode ser atribuído à alta corrente de fuga deste sensor em relação a um fotodiodo comercial. Além disso, as contagens líquidas do FD foram relativamente baixas. Por conta disso optou-se por continuar a caracterização deste protótipo com o sistema fotodiodo-boro utilizando o filme de boro na lamínula.

No protótipo 2 foram realizados apenas dois experimentos: o da linearidade e da repetitividade, de forma análoga aos feitos no protótipo 1. A relação entre as contagens em função do tempo de irradiação do protótipo 2 está indicada na Figura 53, que apresentou um comportamento linear e cujo ajuste linear resultou num coeficiente angular de (33408 ± 42) CPM.

Figura 53 – Relação entre a contagem e o tempo de irradiação por nêutrons frios na posição de 0° para o protótipo 2. As barras de erro são menores que os pontos

Fonte: autor da tese.

A eficiência intrínseca do protótipo 2 é de $(5,2 \pm 0,4)\%$. Para o cálculo da eficiência, foi considerado que o valor de fluxo do feixe de nêutrons frios não alterou em função da variação da distância da fonte, ou seja, que o número total de nêutrons que atingem a região do filme de boro foi de $(6,4 \pm 0,5) \times 10^5$.

Na medida de repetitividade, foi feita a média (338145) e o desvio padrão da média (1121) de modo a se estabelecer um limite inferior e superior (linhas pretas) em função do número de contagens (N) conforme ilustrado na Figura 54, a qual demonstra um comportamento estável do fotodiodo.

Figura 54 - Contagens experimentais em função do número de medidas na posição de 0° do protótipo 2.

Fonte: autor da tese.

3.3.3 Análise da caracterização do sistema de detecção e consolidação dos resultados

No detector de nêutrons desenvolvido optou-se por um sistema que fosse portátil. Para tal, a tensão foi aplicada por meio um par de pilhas e até mesmo um carregador de notebook, fornecendo um valor máximo de 18 V.

Na caracterização do sistema de detecção o uso da fonte de nêutrons (AmBe) no LEN possibilitou distinguir no espectro a contribuição das partículas alfa e do lítio (MANFREDOTTI et al., 2005).

Em relação às medidas feitas no NCNR, inicialmente foi feito um teste no protótipo 1 para escolher qual fotodiodo apresentava uma resposta melhor já que alguns dos sensores já haviam sido irradiados por nêutrons térmicos no Laboratório de Fluxo de Térmicos (LFT/LN). Por exemplo, as contagens obtidas para um fotodiodo comercial num tempo de irradiação de 2 min foram de $7,34 \times 10^5$, já no anteriormente irradiado o valor é $6,0 \times 10^5$. Portanto os valores foram próximos e optou-se por usar o que não havia sido irradiado, pois apresentou um valor maior de contagens. Estes valores mostram que mesmo após a irradiação por feixe de nêutrons o fotodiodo apresenta boa recuperação e sua resposta eletrônica sofreu pouca alteração.

No laboratório do NCNR os protótipos foram irradiados durante uma semana inteira, utilizando o mesmo sistema fotodiodo-boro, ou seja, o mesmo sensor, que foi irradiado 24 h por dia ao longo de uma semana e mesmo após trocar de protótipo continuou com respostas estáveis já que em ambos os protótipos obtivemos a relação de linearidade e reprodutibilidade, houve apenas uma mudança na eficiência intrínseca que pode ser associada a eletrônica. Além disso, ocorreu a ativação dos materiais e esses protótipos que tiveram que ser deixados no NIST para decair e após algumas semanas os protótipos foram medidos e não foi observada a presença de radiação no material. O valor de eficiência absoluta do protótipo 1 para os diferentes fluxos de nêutrons foi de: $(1,17 \pm 0,01) \%$ e $(1,37 \pm 0,01) \%$.

O protótipo 2 permitiu a contagens de nêutrons do fotodiodo que foi diretamente depositado com o boro, porém como este sensor possui uma corrente de fuga alta e observou-se aumento do ruído no sistema de detecção. Para este protótipo, houve apenas a disponibilidade de dois dias para executar as medidas por isso optou-se por fazer o experimento da linearidade e da repetitividade, e foi obtida uma eficiência intrínseca de $(5,2 \pm 0,4) \%$. Esse valor de eficiência não pode ser comparado com o do protótipo 1 apesar de termos utilizado o mesmo sistema fotodiodo-boro, pois os protótipos possuem uma eletrônica associada diferente e a do protótipo 2 apresenta uma melhor resposta em alta frequência de eventos.

De modo geral, o protótipo 2 apresentou a melhor eficiência e o sistema fotodiodo no qual o filme é independente do fotodiodo, sendo, portanto acoplado para a medição, apresentou resultados melhores em relação ao o fotodiodo com o boro na face que gerou ruídos eletrônicos altos. Além disso, uma possível vantagem é a substituição do filme em caso de problemas, mas mantendo o fotodiodo e vice versa caso o fotodiodo apresente problemas.

CAPÍTULO 4: CONCLUSÕES E DISCUSSÕES GERAIS

Um detector de nêutrons térmicos foi construído baseado num filme conversor de boro (^{10}B) e no fotodiodo de Si associado a uma eletrônica portátil. O processo de fabricação do filme de boro via PLD é reprodutível, os parâmetros de deposição foram definidos e permitem a produção de filme com o valor da espessura ótima do filme de boro previamente determinado, que está na faixa de 3,5 e 4,0 μm .

Dois protótipos foram desenvolvidos e caracterizados para se determinar o comportamento do sensor, começando pelo sistema fotodiodo-boro associado a uma eletrônica comercial e posteriormente com as dois arranjos eletrônicos desenvolvidos. Foram utilizadas uma fonte alfa e posteriormente com os feixes de nêutrons térmicos e frios. O protótipo 2 foi o que apresentou a melhor eficiência de contagem.

Em relação ao sistema fotodiodo-boro, como a deposição do filme foi feita de duas formas (direto no fotodiodo, lâmina de vidro) foi necessário testar as configurações diferentes. Para a situação na qual o material conversor é fabricado num substrato é possível a caracterização do sistema fotodiodo-boro de forma separada o que permite verificar se houve alguma alteração tanto no filme quanto no fotodiodo após a exposição a fluxo de nêutrons e outros tipos de radiação. Os resultados experimentais demonstraram que no fotodiodo foi depositado diretamente o boro houve um aumento na corrente de fuga que gerou um aumento no ruído eletrônico no sistema de detecção. Portanto a melhor configuração é a que utiliza o filme separado do sensor.

Neste projeto, buscou-se um sistema que apresentasse o melhor custo-benefício, baixa manutenção, maior durabilidade e eficiente para detecção de nêutrons. Para a construção do detector de nêutrons térmicos foi escolhido obter comercialmente: o alvo de boro (^{10}B : US\$3.781,30) e o fotodiodo de Si do tipo PIN (US\$224). O filme foi fabricado via deposição a laser pulsado (PLD), apesar do fato do alvo de ^{10}B ser um material de alto custo, na fabricação do filme é necessária uma quantidade pequena do mesmo, pois como o alcance médio da partícula alfa no boro é na ordem de 3,5 a 4,0 μm e a região de deposição não excede $1 \times 1 \text{ cm}^2$ (área ativa do fotodiodo) este material permite fabricar mais de seis dezenas de filmes, tendo assim um bom custo-benefício (aproximadamente U\$ 66,00 para cada filme). Já o fotodiodo, apesar do custo alto, possui propriedades que fazem dele um excelente detector para este tipo de aplicação, com área de detecção adequada e não tem revestimento de epoxi. A eletrônica associada a este fotodiodo apresenta também baixo custo (R\$ 300) e possui circuitos simples e de componentes de fácil acesso.

Já em relação à durabilidade do detector serão necessários novos testes para determinar o tempo necessário para que seja trocado o material conversor e o tempo/fluxo máximo a partir do qual o fotodiodo apresenta danos.

Os protótipos caracterizados neste trabalho são bons candidatos para a detecção de nêutrons. A eletrônica portátil associada pode ser minimizada e tornando possível o seu uso em algumas aplicações, como por exemplo em dosimetria.

Além disso, informações adicionais em futuros trabalhos podem ser úteis, tais como: a caracterização do protótipo 2 no fluxo de nêutrons térmicos ou o uso do detector para o cálculo de espectro usando as esferas de Bonner que pode ser investigado via método de Monte Carlo.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

ADAMIEC, G. et al. Response of a silicon PIN photodiode to an Am-Be neutron source. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment**, v. 534, n. 3, p. 544–550, 2004.

ANISIMOV, S. I.; BÄUERLE, D.; LUK'YANCHUK, B. S. Gas dynamics and film profiles in pulsed-laser deposition of materials. **Physical Review B**, v. 48, n. 16, p. 12076–12081, 15 out. 1993.

ASTUTO, A. **Desenvolvimento de um sistema de irradiação com nêutrons térmicos para a calibração de monitores**. [s.l.] Universidade Federal do Rio de Janeiro, 2016.

ASTUTO, A. et al. New thermal neutron calibration channel at LNMRI/IRD. **Journal of Physics: Conference Series**, v. 733, p. 12080, 2016.

BULGAKOVA, N. M. et al. **Charging and plasma effects under ultrashort pulsed laser ablation**. (C. R. Phipps, Ed.)Proc. SPIE 7005, High-Power Laser Ablation VII. **Anais...8** maio 2008Disponível em: <<http://dx.doi.org/10.1117/12.782643>>

BULGAKOVA, N. M.; BOURAKOV, I. M. Phase explosion under ultrashort pulsed laser ablation: modeling with analysis of metastable state of melt. **Applied Surface Science**, v. 197–198, p. 41–44, set. 2002.

CELENTANO, G. et al. 10B enriched film deposited by e-beam technique on Al₂O₃ substrate for high efficiency thermal neutron detector. **Surface and Coatings Technology**, v. 265, p. 160–165, mar. 2015.

CHAUDHARI, P. et al. Fabrication and characterization of silicon based thermal neutron detector with hot wire chemical vapor deposited boron carbide converter. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment**, v. 779, p. 33–38, abr. 2015.

CHICHKOV, B. N. et al. Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids. **Applied Physics A Materials Science & Processing**, v. 63, n. 2, p. 109–115, ago. 1996.

COSTA, P. et al. **Boron film thickness determination to develop a low cost neutron using Monte Carlo method**. INAC 2015: international nuclear atlantic conference Brazilian nuclear program State policy for a sustainable world. **Anais...Brazil: 2015Disponível em:** <http://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:47032099>

COSTA, P. et al. **Femtosecond pulsed laser deposition of a boron thin film aiming at the development of a low-cost neutron detector**. (S. Kaierle, S. W. Heinemann, Eds.) High-Power Laser Materials Processing: Applications, Diagnostics, and Systems VII. **Anais...SPIE**, 15 fev. 2018 Disponível em: <<https://www.spiedigitallibrary.org/conference-proceedings-of-spie/10525/2285896/Femtosecond-pulsed-laser-deposition-of-a-boron-thin-film-aiming/10.1117/12.2285896.full>>

COSTA, P. et al. Boron film laser deposition by ultrashort pulses for use as neutron converter material. **Applied Physics A**, v. 125, n. 2, p. 99, jan. 2019.

Cross Sections. Disponível em: <<http://atom.kaeri.kr/nuchart/plotEvaf.jsp?mat=525&z=5&a=10&lib=jendl4.0&mf=3&mt=107>>. Acesso em: 22 mar 2019.

CURTIS, L. F. **An Introduction to Neutron Physics**. [s.l.] Van Nostrand, 1959.

DAHAL, R. et al. Self-powered micro-structured solid state neutron detector with very low leakage current and high efficiency. **Applied Physics Letters**, v. 100, n. 24, 2012.

DANON, Y. et al. Towards high efficiency solid-state thermal and fast neutron detectors. **Journal of Instrumentation**, v. 7, n. 03, p. C03014–C03014, 7 mar. 2012.

DELLASEGA, D. et al. Boron films produced by high energy Pulsed Laser Deposition. **Materials & Design**, v. 134, p. 35–43, 2017.

DOMIENIKAN, C. et al. **LOW-COST AMPLIFIER FOR ALPHA DETECTION WITH PHOTODIODE**. INAC 2017: international nuclear atlantic conference Brazilian nuclear program State policy for a sustainable world. **Anais...Belo Horizonte**, MG, Brazil, October 22-27, 2017: 2017 International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2017, 2017 Disponível em: <<http://repositorio.ipen.br:8080/xmlui/bitstream/handle/123456789/28270/24095.pdf?sequence=1&isAllowed=y>>

ERWIN, R.; KRYCKA, K.; WATSON, S. **PHADES**. Disponível em: <<https://ncnr.nist.gov/instruments/instdev.html>>.

FALCÃO, R. C.; FACURE, A.; SILVA, A. X. Neutron dose calculation at the maze entrance of medical linear accelerator rooms. **Radiation Protection Dosimetry**, v. 123, n. 3, p. 283–287, 2007.

GAO, X. et al. Characteristics of Si-PIN nuclear radiation detectors stacked in series and parallel. **Science China Technological Sciences**, v. 58, n. 6, p. 1091–1095, jun. 2015.

GUARDIOLA, C. et al. **Portable silicon neutron detector system**. Proceedings of the 8th Spanish Conference on Electron Devices, CDE'2011. **Anais...2011**

HASEGAWA, M. et al. Radiation damage of silicon junction detectors by neutron irradiation. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment**, v. 277, n. 2–3, p. 395–400, maio 1989.

HÖGLUND, C. et al. B4C thin films for neutron detection. **Journal of Applied Physics**, v. 111, n. 10, p. 104908, 2012.

HONG, N. et al. Boron carbide based solid state neutron detectors: The effects of bias and time constant on detection efficiency. **Journal of Physics D: Applied Physics**, v. 43, n. 27, 2010.

IFRJ)., I. DE F. U. DO R. DE J. **Capítulo 10 Interação de partículas carregadas com a matéria**, [s.d.]. Disponível em: <http://www.if.ufrj.br/~mms/lab4/capitulo_10corrigido.pdf>

ISSA, F. et al. Study of the Stability of 4H-SiC Detectors by Thermal Neutron Irradiation. **Materials Science Forum**, 2015.

ISSA, F. et al. 4H-SiC Neutron Sensors Based on Ion Implanted¹⁰B Neutron Converter Layer. **IEEE Transactions on Nuclear Science**, 2016.

KELLY, P. .; ARNELL, R. . Magnetron sputtering: a review of recent developments and applications. **Vacuum**, v. 56, n. 3, p. 159–172, mar. 2000.

KNOLL, G. F. **Radiation Detection and Measurement**Phoenix Usa, 2010.

KODAMA, H. et al. Studies on structural and chemical characterization for boron coating films deposited by PCVD. **Journal of Nuclear Materials**, v. 329–333, p. 889–893, ago. 2004.

KOUZES, R. T. **The 3He Supply Problem**. Richland, WA: [s.n.]. Disponível em: <<http://www.osti.gov/servlets/purl/956899-IInY7M/>>.

KUDRYASHOV, S. I. et al. **Femtosecond laser ablation of carbon: From spallation to formation of hot critical plasma**. AIP Conference Proceedings. **Anais...2012**Disponível em: <<http://aip.scitation.org/doi/abs/10.1063/1.4739878>>

LEE, E.-S. et al. Effect of deposition temperature on cubic boron nitride thin film deposited by unbalanced magnetron sputtering method with a nanocrystalline diamond buffer layer. **Metals and Materials International**, v. 19, n. 6, p. 1323–1326, 30 nov. 2013.

LEITZ, K.-H. et al. Metal Ablation with Short and Ultrashort Laser Pulses. **Physics Procedia**, v. 12, n. PART 2, p. 230–238, 2011.

LEMEILLEUR, F. et al. Neutron-induced radiation damage in silicon detectors. **IEEE Transactions on Nuclear Science**, v. 39, n. 4, p. 551–557, 1992.

LORAZO, P.; LEWIS, L. J.; MEUNIER, M. Short-Pulse Laser Ablation of Solids: From Phase Explosion to Fragmentation. **Physical Review Letters**, v. 91, n. 22, p. 225502, 25 nov. 2003.

MACHADO, L. M. et al. D-Scan measurement of ablation threshold incubation effects for ultrashort laser pulses. **Opt. Express**, v. 20, n. 4, p. 4114–4123, 2012.

MANFREDOTTI, C. et al. **SiC detectors for neutron monitoring**. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. **Anais...**2005

MCGREGOR, D. S. et al. Design considerations for thin film coated semiconductor thermal neutron detectors—I: basics regarding alpha particle emitting neutron reactive films. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment**, v. 500, n. 1–3, p. 272–308, mar. 2003.

MCGREGOR, D. S.; BELLINGER, S. L.; SHULTIS, J. K. Present status of microstructured semiconductor neutron detectors. **Journal of Crystal Growth**, v. 379, p. 99–110, 2013.

MILLMAN, J.; HALKIAS, C. C. **Eletrônica: Dispositivos e Circuitos. vol. 1**. [s.l.] McGraw-Hill, 1981.

MIRABELLA, S. et al. Mechanisms of boron diffusion in silicon and germanium. **Journal of Applied Physics**, v. 113, n. 3, p. 031101, 21 jan. 2013.

National Institute of Standards and Technology (NIST).CODATA. Disponível em: <<https://physics.nist.gov/cgi-bin/cuu/Value?mnu>> Acesso em: 22 mar - 2019.

NELSON, K. A. et al. A suspended boron foil multi-wire proportional counter neutron detector. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment**, v. 767, p. 14–18, dez. 2014.

NIKOLIC, R. J. et al. **Nine element Si-based pillar structured thermal neutron detector****Proc. SPIE**, 2010. Disponível em: <<http://dx.doi.org/10.1117/12.862391>>

OCHS, T. R. et al. **Fabrication of present-generation microstructured semiconductor neutron detectors**. 2014 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, NSS/MIC 2014. **Anais...**2016

PRICE, W. J. **Nuclear radiation detection**. [s.l.] McGraw-Hill, 1964.

RIABININA, D.; CHAKER, M.; ROSEI, F. Correlation between plasma dynamics and porosity of Ge films synthesized by pulsed laser deposition. **Applied Physics Letters**, v. 89, n. 13, p. 131501, 25 set. 2006.

SAMAD, R. E.; VIEIRA, N. D. Geometrical method for determining the surface damage threshold for femtosecond laser pulses. **Laser Physics**, v. 16, n. 2, p. 336–339, 2006.

SCHNEIDER, C. W.; LIPPERT, T. Laser Ablation and Thin Film Deposition. In: SCHAAF, P. (Ed.). **Laser Processing of Materials: Fundamentals, Applications and Developments**. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2010. p. 89–112.

SONG, Z. F. et al. **Study on boron-film thermal neutron converter prepared by pulsed laser deposition** *Applied Radiation and Isotopes*, 2011.

TABACNIKS, M. H. **The Laboratory for Material Analysis with Ion Beams LAMFI-USP**. Singapore: World Scientific, 1997.

TATSCH, P. Deposição de filmes finos. **Jacobus W. Swart. Oficina de**, p. 203–208, 2000.

TOMOV, R. et al. **Development of a portable thermal neutron detector based on a boron rich heterodiode**. (G. Owen, Ed.) *Optics and Photonics for Counterterrorism and Crime Fighting IV. Anais...* 2 out. 2008 Disponível em: <<http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-69549135610&partnerID=40&md5=80757ede614592ef6b5726609f03c5b0>>

TSTG, T. **Si PIN**. Disponível em: <<https://www.hamamatsu.com/jp/en/product/type/S3590-09/index.html>>.

WALKER, J. W. et al. **A miniaturized neutron detector and counting system**. 1998 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record. 1998 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (Cat. No.98CH36255). **Anais...** 1998

WANG, Z. et al. Fabrication of crystallized boron films by laser ablation. **Journal of Solid State Chemistry**, v. 177, n. 4–5, p. 1639–1645, 2004.

WANG, Z.; MORRIS, C. L. **Multi-layer boron thin-film detectors for neutrons**. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. Anais...* 2011

WEAVER, J.; H. CHEN MAYER, H.; G DOWNING, R. **NDP**. Disponível em: <<https://www.nist.gov/laboratories/tools-instruments/material-analysis-using-neutron-depth-profiling>>.

WILLMOTT, P. R.; HUBER, J. R. Pulsed laser vaporization and deposition. **Reviews of Modern Physics**, v. 72, n. 1, p. 315–328, 1 jan. 2000.

ZAMBONI, C. B. **Fundamentos da Física de Nêutrons**. [s.l.] Editora Livraria da Física, 2007.

ZHIGILEI, L. V.; LIN, Z.; IVANOV, D. S. Atomistic Modeling of Short Pulse Laser Ablation of Metals: Connections between Melting, Spallation, and Phase Explosion. **The Journal of Physical Chemistry C**, v. 113, n. 27, p. 11892–11906, 9 jul. 2009.

ZIEGLER, J. F. SRIM-2003. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms**, v. 219–220, n. 1–4, p. 1027–1036, jun. 2004.

APÊNDICE A - Técnicas utilizadas na determinação da espessura do filme

Para se determinar o valor ótimo da espessura do filme de boro foram utilizadas três técnicas: cálculo empírico, *Stopping and Range of Ions in Matter* (SRIM) e *Transport of Ions in Matter* (TRIM).

Inicialmente foi utilizado o método empírico, que é aplicado somente para as partículas alfa, no qual o alcance da partícula (R_A) pode ser obtido por meio da equação 3A ((IFRJ)., [s.d.]), em centímetros como função da energia (E) dada em MeV e do tipo de material (A : peso atômico, ρ : densidade do material dada em g.cm^{-3})

$$R_A = \frac{0,178.E^{3/2}.A^{1/3}}{10^3.\rho} \quad (3A)$$

No cálculo empírico foram obtidos os valores de espessura para as energias de 1,48 e 1,78 MeV, respectivamente de 2,96 e 3,95 μm , utilizando a equação 1, juntamente com a densidade do boro de 2,37 g/cm^3 e massa atômica de 10,81 g.

O SRIM (ZIEGLER, 2004) calcula o alcance de partículas pesadas para diversos materiais. Com seu uso, foi possível obter os alcances, em função da energia, das partículas alfa e lítio tanto no boro quanto no fotodiodo (Si). Na Figura 55 e Figura 56, estão ilustradas o alcance das partículas em relação ao meio (Si e B), como função da energia.

Figura 55 - Alcance das partículas alfa no boro e Si em função da energia obtidos com o SRIM.

Fonte: autor da tese.

Figura 56 - Alcance do núcleo de lítio no boro e Si em função da energia obtidos com o SRIM.

Fonte: autor da tese.

O TRIM (ZIEGLER, 2004) permite por sua vez, a modelagem do sistema fotodiodo-boro (Figura 57). O transporte da partícula alfa e do lítio foi feito a partir do início da superfície do filme cujo valor de espessura foi variado. Desse modo, foi obtido o alcance total (A_T) dessas partículas ao longo das regiões modeladas.

Figura 57 – Exemplo de uma das modelagens do sistema-fotodiodo-boro feita com o TRIM.

Fonte: autor da tese.

Os valores dos alcances das partículas obtidos com o SRIM (A_s) e com o TRIM (A_{TRIM}) - em função das energias provenientes do produto da reação nuclear do $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ estão indicados na Tabela 11.

Tabela 11 - Alcance das partículas α e dos núcleos de Li em função da energia (E), obtidos com os métodos SRIM (A_s) e TRIM (A_{TRIM}).

Partículas	E (MeV)	A_s (μm)	A_{TRIM} (μm)
α	1,47	3,50	3,50
	1,78	4,30	4,00
Li	0,84	1,83	1,50
	1,02	2,07	1,50

Fonte: autor da tese.

Para calcular os valores de espessura do filme levando em conta o alcance das partículas α e dos núcleos de Li fornecido pelo TRIM (A_{TRIM}), foi usada a equação 4A que relaciona a espessura da camada de boro (e_f) com o alcance na região do fotodiodo (A_{foto}). Nas Tabela 12 e Tabela 13, estão indicados respectivamente os valores dos alcances experimentais obtidos para as partículas alfa e dos núcleos de lítio, sendo que quando o valor de A_{foto} é menor que zero, a partícula gerada na superfície do filme foi absorvida totalmente, ou seja, não alcançaria o meio detector.

$$A_{foto} = A_T - e_f \quad (4A)$$

Tabela 12 – Valores dos alcances no fotodiodo (A_f) em função da espessura da camada de boro (e_f) e da energia das partículas alfa (E_α) obtidos com o software TRIM.

	E_α (1,47 MeV)	E_α (1,78 MeV)
e_f (μm)	A_{foto} (μm)	A_{foto} (μm)
0,5	4,24	5,36
1,0	3,99	4,67
2,0	2,23	3,20
3,0	0,84	1,80
3,5	0,08	1,32
4,0	-0,46	0,55

Fonte: autor da tese.

Tabela 13 – Valores do alcance no fotodiodo (A_f) em função da espessura da camada de boro (e_f) e da energia do lítio (E_{Li}) obtidos com o software TRIM.

	E_{Li} (0,84 MeV)	E_{Li} (1,02 MeV)
e_f (μm)	A_{foto} (μm)	A_{foto} (μm)
0,5	1,87	1,58
1,0	1,11	0,81
1,5	0,44	0,18
2,0	-0,11	-0,36

Fonte: autor da tese.

Para fins de comparação os resultados da espessura do filme levando em conta o alcance das partículas alfa e do núcleo de lítio obtidos pelo cálculo SRIM e o TRIM, em função da energia, conforme a equação 4A, e o valor de espessura estimado com o método empírico, estão indicados na Tabela 14.

Tabela 14 – Valores de espessura obtidos pelos métodos empírico (R_A), SRIM (A_S) e o TRIM (A_{Trim}) em função da energia (E).

Partícula	E (MeV)	R_A (μm)	A_S (μm)	A_{Trim} (μm)
α	1,47	2,96	3,50	4,0
	1,78	3,95	4,30	
Li	0,84	--	1,83	2,0
	1,02	--	2,07	

Fonte: autor da tese.

APÊNDICE B - Cálculo da eficiência intrínseca no arranjo do IRD

Para calcular a eficiência intrínseca total (ε_{total}) considerando a contribuição do fluxo de nêutrons (térmico, epitérmico, rápido) da fonte de AmBe do arranjo do IRD (Figura 41), foi utilizada a equação 5B. O termo $\varepsilon_{térmico}$ indica a eficiência dos nêutrons térmicos, $\varepsilon_{epitérmico}$ é a contribuição dos nêutrons epitérmicos e dos rápidos é o $\varepsilon_{rápidos}$.

$$\varepsilon_{total} = \varepsilon_{térmico} + \varepsilon_{epitérmico} + \varepsilon_{rápido} \quad (5B)$$

A eficiência intrínseca (equação 6B) é definida pela relação entre as contagens dos nêutrons no detector (C) e o número total de nêutrons que incidem na região de detecção (N_T).

$$\varepsilon = \frac{C}{N_T} \quad (6B)$$

Para obter a eficiência intrínseca, por exemplo, dos nêutrons térmicos, foi calculado primeiramente a contribuição da contagem dos nêutrons térmicos ($C_{térmico}$) que foi obtida a partir da relação (equação 7B) entre a taxa de reação entre o nêutrons térmicos ($r_{térmico}$) pelo total (r_{total}). A taxa de reação total é igual a soma da contribuição dos nêutrons térmicos, epitérmicos e rápidos.

$$C_{térmicos} = \frac{r_{térmico}}{r_{total}} \quad (7B)$$

A taxa de reação (ZAMBONI, 2007) está indicada na equação 8B, na qual $\sigma(E)$ indica a secção de choque dada em barns e $\phi(E)$ é a taxa de fluência dada em $\text{cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$.

$$r = \int \phi(E) \cdot \sigma(E) dE \quad (8B)$$

A contribuição individual de cada tipo de fluxo, que já foi determinada previamente por meio de medidas experimentais e simulações numéricas (ASTUTO, 2016), é a seguinte: térmicos (0,71), epitérmicos (0,16) e rápidos (0,13). Neste cálculo foi considerado que $\sigma(E)$ é igual a $1/E$ (Figura 58) e que a taxa de fluência é constante. Para definir os intervalos da integral para cada tipo de nêutron foi utilizado o intervalo do gráfico (Figura 58): térmico (10^{-5} a 0,5 eV), epitérmico (0,5 a 10^5 eV) e rápido (10^5 a 10^7 eV).

Figura 58 - Secção de choque do ^{10}B para a reação nuclear (n, α).

Fonte: ("Cross Sections", 2018)

Desse modo foi possível calcular a contribuição das contagens para cada tipo de nêutrons a partir da relação entre a taxa de reação para cada parte do espectro de energia em função do valor da taxa total, (todo espectro), cujos valores estão indicados nas equações abaixo.

$$\frac{r_{\text{térmico}}}{r_{\text{total}}} = \frac{\phi(E) \times 0,71 \int_{10^{-5}}^{0,5} \frac{1}{E} dE}{\phi(E) \times 0,71 \int_{10^{-5}}^{0,5} \frac{1}{E} dE + \phi(E) \times 0,16 \int_{0,5}^{10^5} \frac{1}{E} dE + \phi(E) \times 0,13 \int_{10^5}^{10^7} \frac{1}{E} dE} = 0,75 \quad (9B)$$

$$\frac{r_{\text{epitérmico}}}{r_{\text{total}}} = \frac{\phi(E) \times 0,16 \int_{0,5}^{10^5} \frac{1}{E} dE}{\phi(E) \times 0,71 \int_{10^{-5}}^{0,5} \frac{1}{E} dE + \phi(E) \times 0,16 \int_{0,5}^{10^5} \frac{1}{E} dE + \phi(E) \times 0,13 \int_{10^5}^{10^7} \frac{1}{E} dE} = 0,19 \quad (10B)$$

$$\frac{r_{rápido}}{r_{total}} = \frac{\phi(E)x0,13 \int_{10^5}^{10^7} 1/E.dE}{\phi(E)x0,71 \int_{10^{-5}}^{0,5} 1/E.dE + \phi(E)x0,16 \int_{0,5}^{10^5} 1/E.dE + \phi(E)x0,13 \int_{10^5}^{10^7} 1/E.dE} = 0,06 \quad (11B)$$

ANEXO A - Certificados do disco metálico.do boro natural

AMERICAN ELEMENTS
The World's Manufacturer of Engineered & Advanced Materials
MERELEX CORPORATION • 10684 WEYBURN AVE. LOS ANGELES, CA 90024
TEL: 310-208-0551 • FAX: 310-208-0351 • EMAIL: orders@americanelements.com

CERTIFICATE OF ANALYSIS
99% (metals basis) Boron (Elemental) Disc
B
Product Code: BO-E-02M-D.1DIA
Lot #: 1146506118-509
CAS #: 7440-42-8
Description: Diameter: 1", Thickness: 2mm

<u>Analysis</u>	<u>%</u>
Fe	0.0250
Cu	0.0010
Mn	0.0010
Co	0.0010
Ag	0.0010
Cr	0.0020
Ni	0.0010
Au	0.0002
Ti	0.0040

AMERICAN ELEMENTS
By

AEC FORM 102:CA REV. APP. 2/3/99

ANEXO B - Certificado do disco metálico de boro enriquecido

**AMERICAN
ELEMENTS**
World's Leading Manufacturer of Rare Earth and Advanced Material Products
A MERELEX CORPORATION • 10884 WEYBURN AVE. LOS ANGELES, CA 90024
TEL. 310-208-0551 • FAX 310-208-0351 • E-MAIL: customerservice@americanelements.com

CERTIFICATE OF COMPLIANCE
Boron (Elemental) Disc
B
Product Code: BO-E-01-D.010I
CAS #: 7440-42-8
LOT #: 1146501018-400

American Elements certifies that the materials listed below and shipped on 2/14/17 meets
the purity and dimensional requirements set forth in On The Border, LLC / NDA
Worldwide Logistics Corp. purchase order: OTB-PO-2016-167.

Boron (Elemental) Disc
B
Diameter: 25mm; Thickness: 2mm
Enrichment: 96+ % 10B

AMERICAN ELEMENTS
By

AEC FORM 102:CA REV. APP. 2/3/99

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Diretoria de Pesquisa, Desenvolvimento e Ensino
Av. Prof. Lineu Prestes, 2242 – Cidade Universitária CEP: 05508-000
Fone/Fax(0XX11) 3133-8908
SÃO PAULO – São Paulo – Brasil
<http://www.ipen.br>

**O IPEN é uma Autarquia vinculada à Secretaria de Desenvolvimento,
associada
à Universidade de São Paulo e gerida técnica e administrativamente pela
Comissão Nacional de Energia Nuclear, órgão do
Ministério da Ciência, Tecnologia, Inovações e Comunicações.**