Universidade de São Paulo
Instituto de Física

^{66}Ga como padrão de calibração de raios γ de
altas energias para detectores HPGe

André da Silva Serra

Orientador: Prof. Dr. Paulo R. Pascholati

Dissertação de Mestrado apresentada
ao Instituto de Física para obtenção do
título de Mestre em Ciências

Banca Examinadora:

Prof. Dr. Ruy Morgado de Castro	(IEAv)
Prof. Dr. Nilberto Heder Medina	(IFUSP)
Prof. Dr. Paulo R. Pascholati	(IFUSP)

São Paulo
2008

Autorizo a reprodução e divulgação total e parcial deste trabalho, por qualquer meio convencional ou eletrônico, desde que citada a fonte.

FICHA CATALOGRÁFICA

**Preparada pelo Serviço de Biblioteca e Informação
do Instituto de Física da Universidade de São Paulo**

Serra, André da Silva

⁶⁶Ga como padrão de calibração de raios γ de altas energias para detectores HPGe - 2008.

Dissertação (Mestrado) - Universidade de São Paulo.
Instituto de Física-Deptº Física Experimental.

Orientador: Prof. Dr. Paulo Reginaldo Pascholati

Área de Concentração: Física

Unitermos:

1. espectroscopia;
2. radioisótopos;
3. radiação.

USP/IF/SBI-042/2008

Agradecimentos

Primeiramente, gostaria de agradecer a todos que direta ou indiretamente contribuíram a para a execução deste trabalho. Em particular, ao meu orientador, Prof. Dr. Paulo R. Pascholati, pela cordialidade e atenção dada durante a execução do trabalho e a Marinha do Brasil pela oportunidade concedida.

Aos demais Profs. do LAL, Ivone F. M. Albuquerque, Marcos M. Martins, Otaviano Helene, Philippe Gouffon, e, em particular, à Prof. Nora L. Maidana pela supervisão na execução da modelagem do experimento.

Aos colegas Zwinglio de O. Guimarães-Filho e Diogo B. Tridapalli pelas inúmeras ajudas e contribuições. Aos demais colegas do LAL, Felisberto Alves F. Junior, Tiago Fiorini Silva, Leandro Mariano, Leandro Beraldo, Jairo Cavalcani, Neivy Lopez Pino e Washington Rodrigues de Carvalho Júnior pelo apoio.

Ao Dr. Ruy Morgado de Castro, cuja semelhança em alguns tópicos deste trabalho com a sua Tese de Doutorado não é mera coincidência, e ao Sr. Paulo de Tarso D. Siqueira pelo apoio com o MCNP5.

Ao Dr. Valdir Sciani pelo bombardeamento dos alvos com o ciclotron Ciclone 30. Aos Srs. Jorge Clementino dos Santos e Felipe P. Jaldin Ferrufino do Centro de Combustíveis nucleares do IPEN pela execução das radiografias do detetor.

Aos funcionários do LAL, em particular ao Sr. Carlos U. Quinareli e Sra. Juliana M. Peçanha.

À minha família e minha Namorada Andresa, pela paciência, incentivo e apoio.

Resumo

Este trabalho trata do estudo da eficiência de pico e função resposta de detectores semicondutores do tipo HPGe na faixa de energia entre 2 a 5 MeV, um pouco acima da faixa de energia das fontes usualmente disponíveis em espectroscopia γ . Ele faz parte de um projeto de calibração de detectores em altas energias (até 20 MeV).

Os resultados serão utilizados na obtenção das intensidades das radiações γ de reações foto-nucleares produzidas por meio do *bremstrahlung* do feixe de elétrons de 38 MeV do acelerador Microton em construção.

Trabalhos anteriores utilizaram raios γ produzidos por reações ressonantes de captura de prótons ($p,x\gamma$). Entretanto, a cinemática da reação, em particular o efeito Doppler, altera a posição e forma dos picos observados. De modo a evitar estes efeitos indesejáveis, este experimento utilizou uma fonte radioativa de raios γ de altas energias – ^{66}Ga (que recentemente tornou-se um dos padrões secundários de calibração).

A fonte de ^{66}Ga foi produzida por meio do bombardeamento de uma chapa de 1,0 mm de ^{nat}Zn de alta pureza ($> 99,99\%$) utilizando um feixe de prótons de 15 MeV do ciclotron Cyclone 30 do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN, através das reações nucleares $^{66}\text{Zn}(p,n)$ e $^{67}\text{Zn}(p,2n)$.

O espectro resultante foi analisado com o software IDFIX e foi obtida a curva de calibração de eficiência de pico de um detector HPGe de 162 cm^3 de volume ativo e eficiência de pico de 33% relativa a um cristal de $3'' \times 3''$ de Na(Tl) para o gama de 1332 keV do ^{60}Co . Finalmente, foi realizada uma simulação do processo de transporte de radiação por meio do *software* MNCP5 e os resultados obtidos encontram-se em acordo com os experimentais.

Abstract

This work involves the study of the peak efficiency and response function of HPGe detectors for gamma rays in the energy range of 2 to 5 MeV, somewhat above the energy range of the available calibration sources for gamma spectroscopy. It is part of a high energy (up to 20MeV) γ -ray project to obtain intensity of γ rays from photo nuclear reactions produced with the *bremstrahlung* from the 38MeV electron beam of the Microtron accelerator.

Former works carried out in the Laboratório do Acelerador Linear - LAL (IFUSP) used gamma rays produced by well-known (p,x γ) resonant reactions. However reaction kinematics disturbs the position and form of the observed gamma peaks mainly due to the Doppler effect. In order to avoid these problems, a radioactive source with high energy gamma-rays, ^{66}Ga (which recently became one of the secondary efficiency calibration standard), was used.

The ^{66}Ga source was produced by bombarding a 1.0 mm foil of pure ^{nat}Zn ($> 99,99\%$) with the 15MeV and $0.1\mu\text{A}$ proton beam from the Cyclone 30 cyclotron of the Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN with $^{66}\text{Zn}(\text{p},\text{n})$ and $^{67}\text{Zn}(\text{p},2\text{n})$ nuclear reactions.

The resultant spectra were analyzed using the IDFIX program and the peak efficiency calibration curve was obtained for the HPGe detector with 162cm^3 of active volume and a efficiency of 33% relative to a $3''\times 3''\text{Na(Tl)}$ crystal for 1332 keV ^{60}Co γ ray. Finally, it was undertaken a Monte Carlo radiation transport analysis using a software such as MNCP5. The experiment was simulated and the results are in agreement with the experimental ones.

Sumário

Agradecimentos	iii
Resumo	v
Abstract	vii
Sumário	ix
1 Introdução	1
1.1 Generalidades	1
1.2 Motivação	2
1.3 Possíveis soluções	3
1.4 Seleção do método	13
1.5 Divisão do trabalho	13
2 Produção do ^{66}Ga	15
2.1 Generalidades	15
2.2 Metodologia	15
2.3 Reação nuclear e alvos	16
2.4 Exequibilidade da produção	17
2.5 Otimização da produção	20
3 Esquema de decaimento do ^{66}Ga	29
3.1 Introdução	29
3.2 Decaimento β no ^{66}Ga	30
3.3 Espectro de emissão β	34
3.4 Transições eletromagnéticas no ^{66}Zn	36
3.5 Níveis virtuais de 511 keV	37
3.6 Padrões de calibração da energia	39
3.7 Esquema simplificado de decaimento	42

4	Intensidades de transição	45
4.1	Introdução	45
4.2	Fontes γ de calibração	46
4.3	Padrões de calibração de eficiência	46
4.4	Captura de nêutrons térmicos no ^{14}N	48
4.5	Padrões secundários de calibração	50
4.6	Revisão: ^{66}Ga como padrão de calibração	51
5	Arranjo Experimental	53
5.1	Os experimentos de Berkeley e Budapest	53
5.2	Arranjo experimental deste trabalho	55
5.3	Posicionamento da irradiação	61
5.4	Aquisição de dados	66
6	Resultados	69
6.1	Espectro	69
6.2	Ajuste dos picos	74
6.3	Calibrações	74
7	Modelagem do decaimento	93
7.1	Introdução	93
7.2	A necessidade das correções...	95
7.3	Coincidência $\gamma - \gamma$	96
7.4	Coincidência raios X- γ	99
7.5	Coincidência $\beta^+ - \gamma$	100
7.6	Coincidência <i>bremsstrahlung</i> interno - γ	108
7.7	Significância da coincidência $\beta - \gamma$	109
7.8	Correlação angular	110
7.9	Empilhamento e tempo morto	114
7.10	Correção por atenuação	116
8	Calibração de eficiência	119
8.1	Calibração de eficiência	119
8.2	Eficiência absoluta	121
8.3	Modelagem do decaimento	123
8.4	Razão total para pico em altas energias	126
8.5	A aplicação do método	127
8.6	Resultados	129

9	Simulação por Monte Carlo	133
9.1	Introdução	133
9.2	Geometria	134
9.3	Espectro	136
9.4	Resultados	137
10	Conclusão	143

Apêndices

A	Produção: revisão da literatura	145
A.1	Introdução	145
A.2	Produção do ^{66}Ga	146
B	Seções de choque	153
B.1	Introdução	153
B.2	Técnicas experimentais	153
B.3	Método de ativação por <i>stacked-foil</i>	154
B.4	Monitores de reação	155
B.5	Alvos e medida da atividade resultante	156
B.6	Determinação das seções de choque	156
B.7	Enriquecimento limitado dos alvos	158
B.8	Alvos com enriquecimento limitado	159
B.9	Degradação de energia	160
B.10	Discussão sobre as incertezas	160
C	Fórmula semi-empírica de Weizsaecker	161
D	Esquema de decaimento	163
E	Matriz de correlação de energia	167
	Referências Bibliográficas	171

Capítulo 1

Introdução

1.1 Generalidades

Este trabalho trata da produção do radioisótopo ^{66}Ga e de sua utilização como fonte de raios γ de alta energia para a calibração de detectores do tipo HPGe (“High Purity Germanium”), a serem utilizados no LAL (Laboratório do Acelerador Linear).

O conceito de “alta energia”, sem a devida definição prévia, é qualitativo. Conseqüentemente, torna-se necessária a especificação do que se entende como “alta energia”. A referência [1] define fótons de alta energia como:

High-energy electrons predominantly lose energy in matter by bremsstrahlung, and high-energy photons by $e^+ e^-$ pair production.

Isto é, fótons de altas energias são aqueles que, ao interagirem com a matéria, perdem energia preferencialmente por produção de pares elétron-pósitron. Entretanto, neste trabalho entende-se “fótons de altas energias” como sendo fótons cujas energias superam àquelas das fontes radioativas usualmente utilizadas em espectroscopia γ , isto é $E_\gamma > 2,7\text{MeV}$.

1.2 Motivação e apresentação do problema

Nesta introdução são apresentados os fatores que concorreram para a seleção do tema da presente dissertação. Assim que o acelerador Microtron estiver concluído, ele será capaz de acelerar elétrons até 38 MeV de energia cinética, que serão direcionados a um irradiador espesso visando a produção de fótons por *bremsstrahlung*, que por sua vez serão colimados para incidir em um alvo fino a fim de induzir reações nucleares. A figura 1.1 apresenta o arranjo de um experimento típico: Fluorescência por Ressonância Nuclear (NRF).

Figura 1.1: Arranjo de um experimento típico de Fluorescência por Ressonância Nuclear (NRF).

Nestes experimentos, espera-se observar fótons entre 0,1 e dezenas de MeV. Este trabalho faz parte de um esforço conjunto para a determinação da função resposta de detetores de HPGe ao longo da faixa de energia de interesse por diversas metodologias. Os fótons serão detectados, no acelerador Microton, em um sistema de coincidência de detetores de HPGe. Entretanto, suas características resolução e eficiência, função da energia, são muito bem conhecidas até 2,7 MeV, pois existem inúmeras fontes radioativas¹ comercialmente disponíveis e adequadas à calibração destes detetores. De fato, as fontes ^{24}Na ou ^{228}Th podem ser utilizadas até 2,7 MeV, enquanto que

¹Nominalmente, ^{22}Na , ^{24}Na , ^{54}Mn , ^{56}Co , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{88}Y , ^{133}Ba , ^{137}Cs , ^{152}Eu , ^{203}Hg , ^{207}Bi , ^{228}Th , e ^{241}Am , todos com a incerteza relativa da probabilidade de emissão dos raios γ mais intensos menores que 1%.

com o ^{56}Co e ^{66}Ga , menos usuais, é possível alcançar 3,548 MeV e 4,806 MeV [2] respectivamente. Conseqüentemente, uma vez que se pretende utilizar estes detectores em níveis de energia superiores aos das fontes usuais, outras fontes de calibração tornam-se necessárias.

1.3 Possíveis soluções

De modo a determinar as características principais dos detectores de HPGe na faixa de energia de interesse, torna-se obrigatório a seleção de novos métodos de calibração. A referência [2] descreve detalhadamente cada um dos métodos. Cada método de calibração tem suas respectivas vantagens, limitações e dificuldades. Dentre as opções disponíveis, destacam-se: (1) radionuclídeo ^{66}Ga , item 1.3.1 (2) reações de captura de nêutrons térmicos, item 1.3.2 (3) reações de captura de prótons, item 1.3.3 (4) reação de captura de prótons, $^{11}\text{B}(p,\gamma)^{12}\text{C}$, item 1.3.4 e (5) espalhamento inelástico de prótons, item 1.3.5.

Todas estas soluções, com exceção do nuclídeo radioativo, ^{66}Ga , utilizam reações nucleares. A decisão por uma solução depende fortemente da faixa de energia de interesse e da infra-estrutura disponível.

1.3.1 O radioisótopo ^{66}Ga

O ^{66}Ga , $T_{1/2} = 9,49$ h, é o único radionuclídeo que foi utilizado em energias superiores a 3,6 MeV sendo considerado padrão secundário de calibração até energias no limite de 4806 keV [3]. Ainda, a referência [3] atribui ao ^{66}Ga a vantagem da baixa multiplicidade. A referência [2] apresenta as intensidades relativas dos raios γ emitidos por uma fonte de ^{66}Ga . Destes, a tabela 1.1 destaca aqueles na região de maior interesse ($E > 3600$ keV).

Resta, ainda, a questão de se estabelecer os requisitos mínimos a serem atendidos pela produção do ^{66}Ga . Certamente, a atividade mínima desejada do ^{66}Ga , o tempo máximo disponível de acelerador, a capacidade de enriquecimento do Zn, e a faixa de energia disponível para a irradiação com prótons são parâmetros que impõem requisitos mínimos ao acelerador no qual

Tabela 1.1: Níveis de energia de interesse, probabilidades de emissão e intensidades relativas do decaimento radioativo do ^{66}Ga [2].

$E_\gamma(\text{keV})$	$\sigma_{\gamma_i}(b)$	$P_{\gamma_i/\gamma_{1039\text{keV}}}$
3766,850(9)	0,00136(19)	0,00423(7)
3791,036(8)	0,0102(11)	0,002941(19)
4085,853(9)	0,0114(19)	0,03445(18)
4295,224(10)	0,035(7)	0,1030(8)
4461,202(9)	0,0072(15)	0,0226(3)
4806,007(9)	0,015(4)	0,0503(3)

Tabela 1.2: Seções de choque de captura de nêutrons térmicos [2] de interesse para a calibração em altas energias.

Reação	$\sigma_c(b)$
$^{14}\text{N}(n,\gamma)^{15}\text{N}$	0,0803(6)
$^{35}\text{Cl}(n,\gamma)^{36}\text{Cl}$	43,60(46)
$^{48}\text{Ti}(n,\gamma)^{49}\text{Ti}$	8,5(2)
$^{52}\text{Cr}(n,\gamma)^{53}\text{Cr}$	0,86(3)
$^{53}\text{Cr}(n,\gamma)^{54}\text{Cr}$	18,6(6)

se pretende realizar a produção do ^{66}Ga . O acelerador ciclotron do Instituto de Pesquisa Energéticas e Nucleares (IPEN)² atende a todos os requisitos, mesmo utilizando um alvo não-enriquecido, conforme encontra-se detalhado no capítulo 2.

1.3.2 Reações de captura de nêutrons térmicos

Reações de captura de nêutrons térmicos podem ser utilizadas como fontes de calibração de raios γ de alta energia. As respectivas probabilidades de emissão são conhecidas com suficiente precisão para o seu emprego como fontes de calibração de detectores [2, 5]. A tabela 1.2 apresenta as principais reações de interesse [2].

Destas, destacam-se $^{14}\text{N}(n,\gamma)^{15}\text{N}$ e $^{35}\text{Cl}(n,\gamma)^{36}\text{Cl}$ pois os respectivos raios

²Ciclotron Cyclone 30 [4]: Fabricante: Ion Beam Applications (IBA - Bélgica); Tipo: isócrono, compacto e de energia variável; feixe externo: prótons até 30 MeV; corrente de feixe: até 350 μA ; e aplicação: produção de radioisótopos.

γ foram medidos com objetivos metrológicos. A reação $^{14}\text{N}(\text{n},\gamma)^{15}\text{N}$ foi aceita como padrão primário de intensidade [5] em função da simplicidade do seu esquema de níveis. Quanto à reação $^{35}\text{Cl}(\text{n},\gamma)^{36}\text{Cl}$, cuja seção de choque é maior que a da reação $^{14}\text{N}(\text{n},\gamma)^{15}\text{N}$ tem sido utilizada como padrão secundário [5]. As tabelas 1.3 e 1.4, apresentam as seções de choque de captura de nêutrons térmicos, $\sigma_{\gamma i}$, para os raios γ produzidos na respectiva reação bem como a probabilidade de emissão por nêutron capturado, $P_{\gamma i}$, na região de energia de interesse ($E > 3600$ keV), para as reações $^{14}\text{N}(\text{n},\gamma)^{15}\text{N}$ e $^{35}\text{Cl}(\text{n},\gamma)^{36}\text{Cl}$, respectivamente.

Tabela 1.3: Seção de choque de captura de nêutrons térmicos, $\sigma_{\gamma i}$, para os raios γ produzidos na reação $^{14}\text{N}(\text{n},\gamma)^{15}\text{N}$ e a probabilidade de emissão por nêutron capturado, $P_{\gamma i}$, na região de energia de interesse ($E_{\gamma} > 3600$ keV) [5].

$E_{\gamma}(\text{keV})$	$\sigma_{\gamma i}(b)$	$P_{\gamma i}$
4440,399(23)	0,479(7)	0,01098(11)
4979,713(25)	1,613(21)	0,03699(30)
5517,202(26)	0,739(10)	0,01696(14)
5715,187(26)	2,381(22)	0,0546(5)
5902,700(27)	0,487(8)	0,01116(13)
6110,848(38)	8,91(12)	0,2043(18)
6919,638(44)	3,41(5)	0,0781(7)
6627,751(59)	2,019(30)	0,0463(5)
6977,847(47)	0,985(17)	0,0226(3)
7413,953(65)	4,45(8)	0,1020(14)
7790,325(64)	3,584(58)	0,0822(10)
8578,59(11)	1,190(25)	0,0273(4)

Ainda, é importante destacar que “cascatas” de raios γ encontram aplicação na calibração de eficiência de detectores, pois a probabilidade de emissão de dois raios γ em cascata pode ser determinada mais precisamente que as intensidades relativas do espectro completo de raios γ . De fato, idealmente, a razão entre as probabilidades de emissão deveria ser 1³. A aplicação desta

³Caso os raios γ preencham os seguintes requisitos: populem e depopulem o mesmo nível, que nenhum outro raio γ faça o mesmo, e que as probabilidades de conversão interna e produção de pares para cada raio γ sejam desprezíveis.

Tabela 1.4: Seção de choque de captura de nêutrons térmicos, $\sigma_{\gamma i}$, para os raios γ produzidos na reação $^{35}\text{Cl}(n,\gamma)^{36}\text{Cl}$ e a probabilidade de emissão por nêutron capturado, $P_{\gamma i}$, na região de energia de interesse ($E_\gamma > 3600$ keV) [5].

$E_\gamma(\text{keV})$	$\sigma_{\gamma i}(b)$	$P_{\gamma i}$
4440,399(23)	0,479(7)	0,01098(11)
4979,713(25)	1,613(21)	0,03699(30)
5517,202(26)	0,739(10)	0,01696(14)
5715,187(26)	2,381(22)	0,0546(5)
5902,700(27)	0,487(8)	0,01116(13)
6110,848(38)	8,91(12)	0,2043(18)
6919,638(44)	3,41(5)	0,0781(7)
6627,751(59)	2,019(30)	0,0463(5)
6977,847(47)	0,985(17)	0,0226(3)
7413,953(65)	4,45(8)	0,1020(14)
7790,325(64)	3,584(58)	0,0822(10)
8578,59(11)	1,190(25)	0,0273(4)

técnica é de interesse quando um dos raios γ tem energia numa região do espectro de eficiência conhecida, permitindo o cálculo da eficiência do segundo.

A referência [5] apresenta um quadro das razões de probabilidade de emissão de raios γ preenchendo e desocupando um nível comum de energia após a captura de um nêutron térmico. Na tabela 1.5 destacam-se aquelas da reação $^{35}\text{Cl}(n,\gamma)^{36}\text{Cl}$.

Tabela 1.5: Razões de probabilidade de emissão de raios γ preenchendo e desocupando um nível comum de energia após a captura de um nêutron térmico, para a reação $^{35}\text{Cl}(n,\gamma)^{36}\text{Cl}$.

E_1 (keV)	E_2 (keV)	P_1/P_2
5715,187	2863,815	0,959(12)
5902,700	2676,300	0,699(7)
6110,848	1951,141	1,062(14)
6619,638	1959,356	0,606(8)
6677,847	1601,082	0,607(13)
7790,325	788,428	0,502(8)

Fica, ainda, a questão da infra-estrutura necessária para levar a cabo

Figura 1.2: Diferença entre a multiplicidade de um espectro γ resultante de uma fonte de ^{66}Ga [3], abaixo, e o espectro γ resultante de captura de nêutrons térmicos pelo ^{59}Co [6], acima (a) 1000-4000 keV e (b) 4500-8000 keV.

a detecção de raios γ gerados pela captura de nêutrons térmicos. De fato, este método de produção de raios γ de alta energia não apresenta dificuldades práticas maiores que os outros métodos; entretanto, uma dificuldade inerente ao método (utilização de uma reação nuclear) é a necessidade da calibração ser realizada no próprio local de produção da fonte, que nem sempre é o mais conveniente.

Quanto a multiplicidade do espectro obtido, a figura 1.2 exemplifica a nítida diferença entre a multiplicidade de um espectro γ resultante de uma fonte de ^{66}Ga [3] e o espectro γ resultante de captura de nêutrons térmicos pelo ^{59}Co [6].

Tabela 1.6: Seções de choque de captura de prótons, σ_{γ_i} , dos raios γ mais significativos para a reação $^{14}\text{N}(\text{p},\gamma)^{15}\text{O}$ na ressonância de $E_p = 1058$ keV, e as respectivas probabilidades de emissão, P_{γ_i} , [2].

E_γ (keV)	σ_{γ_i} (mb)	P_{γ_i}
3042,8(6)	0,290(50)	0,422(5)
5239,9(3)	0,299(52)	0,434(6)
8281,5(5)	0,366(62)	0,5320(25)

1.3.3 Reações de captura de prótons

Reações de captura de prótons são freqüentemente usadas como fontes de raios γ para a calibração de detectores de germânio. As reações nucleares por captura de prótons possuem a vantagem de produzirem espectros simples, isto é de baixa multiplicidade, quando a energia do próton incidente é escolhida de modo a coincidir com uma ressonância simples. Tal procedimento não é exequível para a captura de nêutrons, pois o processo de moderação impõe a passagem por muitas ressonâncias, sem o controle da sintonia da energia.

Entre as possíveis reações do tipo (p,γ) , destacam-se: $^{14}\text{N}(\text{p},\gamma)^{15}\text{O}$ com ressonâncias em 278 e 1058 keV; $^{23}\text{Na}(\text{p},\gamma)^{24}\text{Mg}$ com ressonâncias em 1318 e 1417 keV; $^{27}\text{Al}(\text{p},\gamma)^{28}\text{Si}$ com ressonâncias em 992 e 1317 keV; e $^7\text{Li}(\text{p},\gamma)^8\text{Be}$ com ressonâncias em 441,4 keV e 1030 keV.

As tabelas 1.6 e 1.7, e 1.8 apresentam seções de choque dessas reações⁴ [2] implicando diretamente em requisitos mínimos para o acelerador que se pretende utilizar para estudar estas reações. A primeira vista, a reação $^7\text{Li}(\text{p},\gamma)^8\text{Be}$ é a mais adequada pois: (I) a sua seção de choque é significativamente maior que as das demais e (II) as energias de transição estendem-se até 18 128 keV.

As probabilidades de emissão dos respectivos raios γ não foram determinadas com incerteza relativa menor 10%, o que descarta essa reação, pelo menos por enquanto, para propósitos de calibração. Resta, então, as reações $^{23}\text{Na}(\text{p},\gamma)^{24}\text{Mg}$ e $^{27}\text{Al}(\text{p},\gamma)^{28}\text{Si}$ como as opções mais atrativas.

⁴Por exceção da ressonância 278 keV da reação $^{14}\text{N}(\text{p},\gamma)^{15}\text{O}$, cuja seção de choque é uma ordem de grandeza inferior que a da ressonância de 1058 keV da mesma reação.

Tabela 1.7: Seções de choque de captura de prótons, σ_{γ_i} , dos raios γ mais significativos para a reação $^{23}\text{Na}(p,\gamma)^{24}\text{Mg}$ na ressonância de $E_p = 1417$ keV, e as respectivas probabilidades de emissão, P_{γ_i} , [2].

$E_\gamma(\text{keV})$	$\sigma_{\gamma_i}(\text{mb})$	P_{γ_i}
1778,969(12)	77(17)	0,948(15)
10762,9	62(14)	0,766(15)

Tabela 1.8: Probabilidade de emissão de raios γ por uma captura de próton, da reação $^7\text{Li}(p,\gamma)^8\text{Be}$ [2] para as ressonâncias de 441 e 1030 keV.

$E_p(\text{keV})$ - ressonância de 441,4(5)keV		
Transição - γ	$E_{\gamma_i}(\text{keV})$	P_{γ_i}
17 640** $\rightarrow$ 16 922	718(5)	$5,19(119) \cdot 10^{-5}$
17 640 $\rightarrow$ 16 626	1014(5)	$1,28(12) \cdot 10^{-3}$
17 640 $\rightarrow$ 3040	14 586(30)	0,332(6)
17 640 $\rightarrow$ est. fund.	17 619(4)	0,667*
$E_p(\text{keV})$ - ressonância de 1030(5)keV		
Transição - γ	$E_{\gamma_i}(\text{keV})$	P_{γ_i}
18 150 $\rightarrow$ 16 922	1228(5)	0,0089(10)
18 150 $\rightarrow$ 16 626	1524(5)	0,011(3)
18 150 $\rightarrow$ 3040	15 095(30)	0,548*
18 150 $\rightarrow$ est. fund.	18 128(4)	0,432*

(*)Incertezas não fornecidas pelo autor.

(**)Conforme o Sistema Internacional de Unidades (SI).

Estas reações foram já estudadas [7] como fontes de raios γ para calibração de detectores de HPGe, pois os requisitos impostos por estas reações são compatíveis com as características operacionais do LAMFI-IFUSP (Laboratório de Análise de Materiais por Feixes Iônicos).

Semelhantemente às reações de captura de nêutrons térmicos, as razões de probabilidade de emissão, $P_{\gamma_i}/P_{\gamma_j}$, nas “cascatas” de raios γ são determinadas com precisão superior a P_{γ_i} , ou P_{γ_j} , isoladamente. A referência [2] apresenta oito “cascatas” de raios γ de interesse. Destas, destacam-se as “cascatas” referentes às reações $^{23}\text{Na}(p,\gamma)^{24}\text{Mg}$ e $^{11}\text{B}(p,\gamma)^{12}\text{C}$ tendo precisão, para as razões de probabilidade de emissão, $P_{\gamma_i}/P_{\gamma_j}$, inferior a 1%. As ressonâncias referentes à última reação estendem a faixa de calibração de

energia até 13 920 MeV.

Por serem realizadas em aceleradores, as reações de captura de prótons, (p,γ) , possuem suas particularidades. De fato, é necessário garantir que certos parâmetros da experiência, p. ex.: largura da ressonância, a dispersão em energia do feixe e a espessura do alvo, não degradem a resolução ou a calibração em eficiência do detector. Ainda, e talvez mais importante, a cinemática da reação, em especial o efeito Doppler (emissão em vôo), introduz complicações no processo de calibração [7, 8]. A utilização de uma fonte radiativa, por outro lado, apesar de não contemplar faixas de energias tão amplas, não sofre dos citados problemas.

1.3.4 Captura de prótons na reação $^{11}\text{B}(p,\gamma)^{12}\text{C}$

Os métodos expostos anteriormente guardam uma característica comum; todos os raios γ produzidos tem energia fixa. Uma maneira de produzir radiação γ de energia variável é através da reação $^{11}\text{B}(p,\gamma)^{12}\text{C}$, [2]. De fato, a captura radiativa de prótons nos estados de energia do contínuo⁵ do núcleo composto $^{12}\text{C}^*$ diretamente para o seu estado fundamental produz raios γ cujas energias são função da energia de ligação do próton ao núcleo do ^{12}C , $B_p = 15,957\,171(33)$ MeV; e da energia do feixe de prótons, E_p . Consequentemente, a energia dos raios γ produzidos na reação $^{11}\text{B}(p,\gamma)^{12}\text{C}$, corrigida pelo recuo do núcleo composto, calcula-se por meio da seguinte relação:

$$E_\gamma = 11E_p/12 + B_p \quad (1.1)$$

A análise da equação 1.1 permite concluir que: (I) a faixa de energia dos raios γ obtidos é limitada inferiormente em 15,95 MeV e (II) a respectiva largura do pico de energia é predominantemente determinada pela variação em energia dos prótons disponíveis para reação, que é composta de dois fatores: resolução em energia do feixe e espessura do alvo.

Entre os fatores que compõem a largura do pico da radiação γ resultante,

⁵Estados contidos dentro da largura do feixe e “straggling” devido a espessura do alvo.

a espessura do alvo é o predominante, não permitindo a utilização desta reação na calibração de detetores HPGe com as incertezas desejadas⁶.

Figura 1.3: Valores das seções de choque diferencial de captura para a reação $^{11}\text{B}(p,\gamma)^{12}\text{C}$ (raios γ provenientes da transição para o estado fundamental, γ_0 , e primeiro estado excitado do ^{12}C , γ_1 - detectores dispostos a 90° com relação ao feixe de prótons), conforme obtido do banco de dados EXFOR [9].

Quanto à produtividade, a figura 1.3 apresenta valores da seção de choque de captura de para a reação $^{11}\text{B}(p,\gamma)^{12}\text{C}$, certamente o valor máximo é nitidamente inferior quando comparada com as reações $^{23}\text{Na}(p,\gamma)^{24}\text{Mg}$ ou $^{27}\text{Al}(p,\gamma)^{28}\text{Si}$.

1.3.5 Espalhamento inelástico de prótons e a reação

Os raios γ de 4438,0(3) e 15 099(3) keV produzidos pelo espalhamento inelástico de prótons no ^{12}C , e de 6128,63(4) keV produzidos pela reação $^{19}\text{F}(p,\alpha\gamma)^{16}\text{O}$ são utilizados normalmente em calibração de energia [2]; entretanto, a precisão dos dados compilados não é compatível com requisitos

⁶Com efeito, a referência recomenda uma incerteza de 6% nas seções de choque diferencial da reação $^{11}\text{B}(p,\gamma)^{12}\text{C}$ de modo a obter consistência entre os dados experimentais de diversos investigadores.

metrológicos, [10, 11]. De fato, as incertezas nas seções de choque medidas variam entre 11% a 20%, maiores que aquelas referentes a probabilidade de emissão de raios γ após a captura de nêutrons térmicos ou da captura ressonante de prótons.

Por outro lado, Tridapalli [8] utilizou com sucesso a reação $^{19}\text{F}(\text{p}, \alpha \gamma)^{16}\text{O}$ e simulações computacionais para determinar as probabilidades relativas da radiação γ emitida. Na figura 1.4 apresenta-se o espectro obtido onde é nítida a influência da cinemática da reação nuclear no espectro γ resultante.

Figura 1.4: Espectro γ produzido pela reação $^{19}\text{F}(\text{p}, \alpha \gamma)^{16}\text{O}$ [8] com uma energia do feixe de prótons de 1,402 MeV. O espectro é fortemente distorcido pelos efeitos cinemáticos inerentes à reação. E.S. $\rightarrow$ pico de simples escape; D.E. $\rightarrow$ pico de duplo escape.

Na reação $^{19}\text{F}(\text{p}, \alpha \gamma)^{16}\text{O}$, o próton incidente forma o núcleo composto de ^{20}Ne , com o mesmo momento linear do sistema $\text{p} + ^{19}\text{F}$. Em um certo momento, o núcleo composto decai. Um canal de saída possível é o sistema $\alpha + ^{16}\text{O}^*$. O $^{16}\text{O}^*$, excitado, decairá para o seu estado fundamental por meio de emissão γ . Conforme se desloca pelo alvo, o $^{16}\text{O}^*$ perde energia podendo emitir o γ em repouso, gama de 6,1 MeV, ou em movimento, gamas de 6,9

e 7,1 MeV. A energia do fóton emitido em movimento será modificada por efeito *Doppler* provocando o alargamento dos picos.

1.4 Seleção do método

Uma vez apresentadas as diversas opções de produção de raios γ de alta energia, a seleção do método a ser utilizado na presente dissertação é ditada: (I) pelas características inerentes de cada método (II) pelos trabalhos anteriores e (III) pela infra-estrutura disponível. As reações de captura e espalhamento inelástico de prótons já foram previamente utilizadas [7, 8]. Restringindo-se as opções disponíveis àquelas com resultados experimentais úteis do ponto de vista metrológico, restam: (I) reações de captura de nêutrons e (II) o radioisótopo ^{66}Ga . As reações de captura de nêutrons são uma solução atraente, não fosse a multiplicidade do espectro resultante e a necessidade de medição no local de irradiação. Conseqüentemente, resta o radioisótopo ^{66}Ga que além de não apresentar as mesmas dificuldades de infra-estrutura e as peculiaridades inerentes às reações nucleares, emite radiação γ de alta energia e de baixa multiplicidade em uma faixa de energia entre aquelas das fontes comuns e as estudadas nos últimos trabalhos.

1.5 Divisão do trabalho

Este trabalho, divide-se nas seguintes partes: (I) produção do ^{66}Ga (II) esquema e modelagem do decaimento (III) intensidades de transição γ (IV) arranjo experimental empregado (V) resultados (VI) modelagem dos efeitos de detecção e calibração de eficiência (VII) simulação do experimento por técnicas de Monte Carlo e (VIII) conclusão.

Capítulo 2

Produção do ^{66}Ga

2.1 Generalidades

O propósito deste capítulo é estabelecer a metodologia e os parâmetros operacionais para a produção do radioisótopo ^{66}Ga de modo a tornar exequível a sua utilização de forma prática como fonte de raios γ de alta energia para a calibração de detectores de HPGe.

Os principais radionuclídeos produzidos conjuntamente com o ^{66}Ga , ^{67}Ga e ^{68}Ga são empregados, principalmente, em medicina nuclear. Destes, o ^{67}Ga ¹ é um dos radionuclídeos mais produzidos em ciclotron e o ^{68}Ga é empregado em PET².

2.2 Metodologia

O processo de definição dos parâmetros ideais para a produção do ^{66}Ga será definido ao longo das seguintes etapas: (I) seleção da reação nuclear e alvo - item 2.3 (II) investigação da exequibilidade da produção frente a requisitos

¹O acúmulo de citrato de Ga (^{67}Ga) em tecido com tumores foi observado pela primeira vez em 1969. Desde então, o ^{67}Ga tem sido utilizado na detecção de tumores. Com o advento da tomografia de emissão de pósitrons, PET, um emissor natural de pósitrons que pode ser associado a substâncias químicas que se acumulam em tumores torna-se obviamente de grande valia.

²Especificamente, o ^{68}Ga é utilizado no diagnóstico de tumores do fígado, outros órgãos e na própria calibração de eficiência do PET.

mínimos - item 2.4 e (III) otimização da produção e proteção radiológica, onde os parâmetros operacionais serão determinados de forma a maximizar a produção do ^{66}Ga frente a requisitos de ordem prática - item 2.5.

2.3 Seleção da reação nuclear de produção e alvos

A produção do ^{66}Ga pode ser levada a cabo por meio das seguintes reações nucleares: $^{63}\text{Cu}(\alpha, n)$, $^{66}\text{Zn}(p, n)$ e $^1\text{H}(^{66}\text{Zn}, n)^{66}\text{Ga}$. Conseqüentemente, depara-se com a questão da seleção da reação nuclear por meio da qual será produzida a fonte desejada.

A produção por meio de uma reação do tipo $^1\text{H}(^{66}\text{Zn}, n)^{66}\text{Ga}$ demanda recursos mais elaborados que aqueles das outras reações. Além de um feixe de ^{66}Zn , esta reação de produção exige um espectrômetro de recuo para a separação do produto de interesse e implante em um polímero [12]. Das máquinas disponíveis na Universidade de São Paulo, somente o acelerador ciclotron Cyclone 30 do IPEN, que acelera somente prótons, encontrava-se disponível³ na época da irradiação. Conseqüentemente, descarta-se reações nucleares envolvendo o Cu, restando, então, reações do tipo (p,n), (p,2n) e afins, em alvos de Zn, naturais ou enriquecidos. Ainda, o IPEN tem experiência na produção do ^{67}Ga (com o que não se quer mostrar que seja viável a produção do ^{66}Ga - item 2.4).

Quanto à natureza do alvo, natural ou enriquecido, a sua seleção depende do requisito que se pretende atender: produtividade (alvo enriquecido) ou custo inicial (composição isotópica natural). Por razões práticas, optou-se pela última. Entretanto, apesar de composição isotópica natural, o alvo de Zn deverá ser preferencialmente de alta pureza (o quanto, fica a cargo das restrições econômicas) de modo a minimizar a produção de radioisótopos indesejáveis. Todavia, a restrição de alvos de composição isotópica natural impõe vínculos significativos na produção do isótopo desejado.

³Apesar da disponibilidade do LAMFI, na época da irradiação, os parâmetros operacionais desta máquina não são adequados para a produção por meio de $^{63}\text{Cu}(\alpha, n)$ (que demanda um feixe de $\cong 10$ MeV) ou $^{66}\text{Zn}(p, n)$ (que demanda um feixe de $\cong 15$ MeV).

Quanto às dimensões geométricas do alvo, é suposto, a princípio, que o alvo seja disponível comercialmente. Com este tipo de especificação, os alvos disponíveis possuem espessura muito maior que o alcance de um feixe de prótons no Zn, na faixa de energia de interesse. As outras dimensões, por outro lado, devem preferencialmente ter dimensões compatíveis com o do feixe de prótons, $\cong 10$ mm. Entretanto, o fato de não se utilizar alvos com espessura especificada para maximizar a produção impõe vínculos adicionais à produção.

2.4 Investigação da exequibilidade da produção

Uma vez selecionada a reação nuclear apropriada, infra-estrutura disponível e dimensões principais do alvo, é necessário investigar a exequibilidade da produção do ^{66}Ga sob estas condições; porém, ainda falta o estabelecimento dos requisitos mínimos. No local de medição⁴, deseja-se preferencialmente uma atividade do ^{66}Ga da ordem de grandeza de dezenas de μCi ; entretanto, mantendo as atividades de outros isótopos a mais baixa possível. Na seção seguinte, serão colocados os requisitos adicionais referente a proteção radiológica e otimização da produção.

No entanto, antes de estudar a exequibilidade da produção, é necessário conhecer quais são os principais radioisótopos produzidos após o bombardeamento de um alvo de ^{nat}Zn por um feixe de prótons de energia em torno de 10-20 MeV. Grosso modo, espera-se que se produzam os seguintes radioisótopos⁵: (I) ^{66}Ga com meia-vida de 9,5 h: decaimento por β^+ 56,5% e decaimento por EC 43,5%, produzido por meio das reações $^{66}\text{Zn}(p,n)$ e $^{67}\text{Zn}(p,2n)$ (II) ^{67}Ga , com meia-vida de 78,3 h: decaimento por EC 100%, produzido por meio das reações $^{67}\text{Zn}(p,n)$ e $^{68}\text{Zn}(p,2n)$ (III) ^{65}Zn (244,3

⁴Que não é necessariamente o mesmo da produção, uma vez que a fonte não será medida no local de produção, pois outras irradiações ocorrem simultaneamente no ciclotron, o que torna a radiação de fundo do ambiente excessivamente alta.

⁵A composição isotópica natural do Zn é: ^{64}Zn , 49,188 %; ^{66}Zn , 27,792 %; ^{67}Zn , 4,041 %; ^{68}Zn , 18,378 %; e ^{70}Zn , 0,600 % [13].

d), após decaimento do ^{65}Ga (15,2 min), produzido por meio da reação $^{66}\text{Zn}(p,2n)$ e (IV) ^{68}Ga com meia-vida de 67,6 min, produzido por meio da reação $^{68}\text{Zn}(p,n)$.

Quanto aos isótopos ^{70}Zn e, principalmente o ^{64}Zn , estes não participam significativamente na produção, função da relativamente reduzida seção de choque (p,n ou $2n \dots$ para prótons na faixa de energia do ciclotron, menor que 30 MeV), dos produtos das respectivas reações cuja meia-vida é pequena (quando comparada a de outros isótopos mais significativos) e da composição isotópica pouco significativa (no caso do ^{70}Zn). Analogamente, as reações $^{66,67}\text{Zn}(p,\gamma)$, $^{70}\text{Zn}(p,3$ ou $4n)$ também não tem importância prática.

Isto posto, procedeu-se a estimativa da atividade dos diversos radioisótopos produzidos quando um alvo de ^{nat}Zn puro é bombardeado por um feixe de prótons com energia de até 35 MeV, por meio da figura 2.1 [14]. Nesta figura, apresenta-se a produção, em $\text{mCi}/\mu\text{Ah}$, dos isótopos 66, 67 e 68 do Ga em função da energia de incidência (no referencial do laboratório) de um feixe de prótons em alvos grossos de Zn de composição isotópica natural⁶.

A inspeção da figura 2.1 sugere que a utilização de prótons de energia em torno de 15 MeV é um valor razoável para a energia do feixe de prótons do ciclotron, pois acima deste valor de energia a produção do ^{67}Ga cresce significativamente. Então, utilizando-se 6 min de bombardeamento, um feixe de 15 MeV, e uma corrente de $1\mu\text{A}$, espera-se produzir: (1) $^{66}\text{Ga} \rightarrow 350\mu\text{Ci}$ (2) $^{67}\text{Ga} \rightarrow 10\mu\text{Ci}$ (3) $^{65}\text{Zn} \rightarrow$ atividade desprezível e (4) $^{68}\text{Ga} \rightarrow 2700\mu\text{Ci}$.

Após um “resfriamento” de 24 h, de modo a garantir que o isótopo ^{68}Ga reduza sua atividade para níveis aceitáveis tem-se: ^{66}Ga : $60,8\mu\text{Ci}$; ^{67}Ga $8\mu\text{Ci}$; e ^{68}Ga atividade desprezível. Garantindo uma atividade total após 24 h de, aproximadamente, $68,8\mu\text{Ci}$, dentro dos padrões admitidos inicialmente para a atividade final. Apesar de aparentemente dentro dos padrões desejados para a medição em laboratório, este tempo de bombardeamento e resfriamento (6 min e 24 h, respectivamente) será revisado a luz dos requisitos de proteção radiológica impostos pela instituição produtora dos radionuclídeos, ver item 2.5.

Quanto ao ^{68}Ga , o tempo de decaimento de 24 h encarrega-se de re-

⁶Por exceção do isótopo ^{68}Ga , para o qual a [14] utilizou alvos de ^{68}Ga enriquecidos.

Figura 2.1: Produção, mCi/μAh, dos isótopos 66, 67 e 68 do Ga em função da energia de incidência (no referencial do laboratório) de um feixe de prótons em alvos grossos de Zn de composição isotópica natural. Superior esquerdo: ^{66}Ga ; superior direito: ^{67}Ga ; e inferior central: ^{68}Ga , alvos de Zn enriquecido [14, 15].

duzir a sua atividade; entretanto, este mesmo tempo de decaimento reduz também a relação de entre a atividade do isótopo 66 com relação àquela do 67, uma vez que o último decai mais lentamente que o primeiro. Verificada a exequibilidade da produção do ^{66}Ga no ciclotron do IPEN, resta determinar os parâmetros (corrente integrada de bombardeamento e tempo de “resfriamento”) que maximizam a produção do ^{66}Ga quando comparada com a do ^{67}Ga . A figura 2.2 apresenta o ciclotron Cyclone 30, seu sistema de irradiação

e porta alvo.

Figura 2.2: O cicotron Cyclone-30, seu sistema de irradiação e porta alvo.

2.5 Otimização da produção do ^{66}Ga e proteção radiológica

2.5.1 Determinação da energia do feixe

A estimativa da energia do feixe que maximiza a relação da produção do ^{66}Ga quando comparada com àquela do ^{67}Ga demanda as seguintes informações: (I) seções de choque de interesse: na produção do ^{66}Ga - $^{66}\text{Zn}(p,n)$, $^{67}\text{Zn}(p,2n)$ e $^{68}\text{Zn}(p,3n)$; na produção do ^{67}Ga : $^{67}\text{Zn}(p,n)$ e $^{68}\text{Zn}(p,2n)$ [15] - figura 2.3 e (II) o poder de frenagem do Zn sobre prótons, (“stopping power”), $S_P(E)$ [16] - figura 2.4. De posse destas informações, procederam-se os seguintes cálculos: (I) seção macroscópica, função da energia, E : $\Sigma(E) = \sigma(E) \cdot N$, onde $\sigma(E)$ é a respectiva seção de choque, em função da energia, e N a

Figura 2.3: Algumas seções de choque de interesse dos isótopos do Zn em reações tipo (p,xn) [15].

densidade do isótopo de interesse por cm^3 (II) fração do feixe de prótons que reage, função da energia: $\frac{dI}{I(x)} = \Sigma(E) \cdot dx$, onde $I(x)$ é a intensidade do feixe de prótons (1/s) ao longo do alvo (III) taxa de subtração de energia: $\frac{1}{\rho} \cdot \frac{dE}{dx} = S_P(E)$, onde ρ é a densidade do alvo g/cm^3 . Estas informações permitem escrever, para uma determinada reação:

$$\ln \frac{I_f(x)}{I_0} = - \int_{E_{\text{inicial}}}^{\Sigma(E)=0} \frac{\Sigma(E)}{\rho S_P(E)} dE \quad (2.1)$$

Uma vez determinada a intensidade do feixe ao longo do alvo, equação 2.1, é possível estimar a concentração inicial dos isótopos resultantes dos produtos das respectivas reações. A aplicação de um procedimento análogo para as outras reações, cujas seções de choque sejam relevantes dentro da faixa de energia, permite determinar a atividade inicial de todos os isótopos de interesse.

Figura 2.4: Poder de frenagem de um alvo de Zn sobre um feixe de prótons (prótons em Zn)[16], no referencial de laboratório.

Calculadas as atividades específicas dos isótopos desejados, $^{66,67}\text{Ga}$ (figuras 2.6 e 2.7), graficou-se estes dois resultados conjuntamente com a sua razão, em função da energia do feixe de prótons incidente - figura 2.5. Dos resultados apresentados, é possível afirmar que a energia do feixe de prótons que maximiza a produção do ^{66}Ga é de aproximadamente 15 MeV. Fica, entretanto, a questão de determinar o tempo e a corrente integrada de bombardeamento.

2.5.2 Proteção radiológica

A proteção radiológica à radiação ionizante traduz-se em restrições impostas à atividade de fontes radiativas de modo a permitir o seu manuseio e transporte de forma segura. É na dualidade entre maximização na produção do ^{66}Ga - requisito (I), por um lado, e na limitação da atividade da fonte: proteção radiológica - requisito (II), por outro, que se encontra a resposta para a adequada corrente integrada de bombardeamento do alvo de Zn.

Figura 2.5: Cálculo das atividades específicas dos isótopos $^{66,67}\text{Ga}$, e da respectiva razão de atividades específicas (unidades arbitrárias) em função da energia do feixe de prótons incidente em um alvo espesso de Zn puro e de composição isotópica natural. O máximo de produtividade do ^{66}Ga em relação ao ^{67}Ga é em torno de aproximadamente 15 MeV de energia deste feixe.

Radiação β

Considerou-se que o efeito biológico da radiação β resultante dos decaimentos subsequentes às reações nucleares produzidas é desprezível quando comparada com a respectiva radiação γ . Entretanto, para que tal hipótese seja válida é necessário ter certeza que a radiação β será absorvida no alvo ou no recipiente de transporte.

O alcance de elétrons de energia máxima de 5 MeV⁷ em Zn é de aproximadamente 0,5 cm⁸. Uma vez que a espessura do alvo é de aproximadamente

⁷Energia referente ao decaimento β de maior energia entre aqueles de maior probabilidade de emissão entre $^{67}\text{Ga} \rightarrow ^{67}\text{Zn}$ e $^{66}\text{Ga} \rightarrow ^{66}\text{Zn}$. Especificamente, a transição β^+ entre o ^{66}Ga e o estado fundamental do ^{66}Zn . Apesar de se tratar de emissão de pósitrons, o cálculo do poder de frenagem e alcance de elétrons e pósitrons em um alvo são aproximadamente idênticos para o presente objetivo.

⁸Estimou-se o alcance da radiação β em um alvo de Zn por meio das tabelas disponíveis em [17]. Na verdade, foi consultado alcance de elétrons em Fe, elemento químico disponível

Figura 2.6: Comparação da atividade específica do ^{66}Ga (mCi/μAh) produzido em ciclotron, calculada a partir das seções de choque de [15], com outros valores experimentais [14], em função da energia do feixe de prótons incidente (MeV) em um alvo espesso de Zn puro de composição isotópica natural.

Figura 2.7: Comparação da atividade específica do ^{67}Ga (mCi/μAh) produzido em ciclotron, calculada a partir das seções de choque de [15], com outros valores experimentais [14], em função da energia do feixe de prótons incidente (MeV) em um alvo espesso de ^{nat}Zn de alta pureza.

na referência [17] de número atômico mais próximo ao Zn. Nestas tabelas: $0,5\text{ cm} \cong \frac{3,5\text{ g/cm}^2}{7,1\text{ g/cm}^3}$, onde $3,5\text{ g/cm}^2$ é o “alcance” no Fe e $7,1\text{ g/cm}^3$ a densidade do Zn.

1 mm, este não se encarrega, por si só, de absorver completamente a radiação β . Conseqüentemente, é necessário que o transporte do alvo seja feito em um pequeno recipiente adequado.

Radiação γ

Quanto à radiação γ , não basta um pequeno recipiente no transporte e manuseio da fonte radiativa para absorver completamente a radiação emitida. A espessura de chumbo necessária para absorver 95 % da radiação γ emitida pelo ^{66}Ga é de aproximadamente 5 cm (quanto ao ^{67}Ga : 0,6 cm) [18]. Certamente, a questão é ainda mais evidente do ponto de vista apenas da radiação de alta energia, pois a espessura necessária para absorver 95 % desta radiação é ainda maior. Então, a radiação γ impõem que se considere a respectiva dose específica como um requisito limitante da atividade da fonte produzida.

Radiação γ : determinação das doses

A dose específica ⁹, $D(E_i) \frac{\mu\text{rem}}{\text{h}} \cdot (\text{cm}^2 \cdot \text{s})$ função da energia da radiação γ , E_i , é calculada por meio da seguinte expressão [18]:

$$\ln D(E_i) = A + B \cdot \ln(E_i) + C \cdot \ln^2(E_i) + D \cdot \ln^3(E_i) \quad (2.2)$$

onde os coeficientes da expressão polinomial são tabelados função da energia [18]. Uma vez de posse destas quantidades, $D(E_i)$, e da probabilidade de emissão, P_{γ_i} (números de γ_i emitidos por decaimento), para cada radiação γ que participa do decaimento, é possível calcular constante de dose específica, Γ , em $\frac{\text{mrem}}{\text{h} \cdot \mu\text{Ci}}$:

$$\Gamma = \frac{1}{4\pi R^2} \sum^i P_{\gamma_i} D(E_i) \quad \frac{\text{mrem}}{\text{h} \cdot \mu\text{Ci}} \quad (2.3)$$

onde $R=100$ cm. Conseqüentemente, os valores de $\Gamma_{^{66}\text{Ga}}$, $\Gamma_{^{67}\text{Ga}}$ e $\Gamma_{^{68}\text{Ga}}$, são respectivamente: $1,26 \cdot 10^{-3}$, $1,11 \cdot 10^{-4}$ e $6,52 \cdot 10^{-4} \frac{\text{mrem}}{\text{h} \cdot \mu\text{Ci}}$. Quando multiplicados pela respectiva atividade, estes valores dão como resultado a dose específica para cada um dos isótopos.

⁹Considera-se que a fonte esteja a 1 m de distância.

2.5.3 Otimização da produção do ^{66}Ga

Esta seção se dividirá entre os requisitos a serem atendidos pela produção (vínculos), função a ser maximizada, e variáveis livres.

Requisitos da produção

Os requisitos adicionais à produção dos radionúclídeos desejados podem ser postos da seguinte maneira:

Requisito (I): energia do feixe de prótons de 15 MeV, que conseqüentemente produz as seguintes atividades específicas ao final do bombardeamento:

$$\begin{aligned} A_{^{66}\text{Ga}}(t_{\text{resf}} = 0)/I_f &= 3240 \frac{\mu\text{Ci}}{\mu\text{Ah}} \\ A_{^{67}\text{Ga}}(t_{\text{resf}} = 0)/I_f &= 110 \frac{\mu\text{Ci}}{\mu\text{Ah}} \\ A_{^{68}\text{Ga}}(t_{\text{resf}} = 0)/I_f &= 27000 \frac{\mu\text{Ci}}{\mu\text{Ah}} \end{aligned}$$

onde I_f é a corrente integrada e $A_{^{66}\text{Ga}}(t_{\text{resf}} = 0)$ é a atividade específica referente ao isótopo ^{66}Ga ao final da irradiação (início do “resfriamento”), tendo significado semelhante para os isótopos 67 e 68, figura 2.1.

Requisito (II): dose específica total da fonte.

$$\text{Dose}_{^{66}\text{Ga}}(t_{\text{resf}}) + \text{Dose}_{^{67}\text{Ga}}(t_{\text{resf}}) + \text{Dose}_{^{68}\text{Ga}}(t_{\text{resf}}) \leq 1 \frac{\mu\text{rem}}{\text{h}} \quad (2.4)$$

onde $\text{Dose}_{^{66}\text{Ga}}(t_{\text{resf}})$, $\text{Dose}_{^{67}\text{Ga}}(t_{\text{resf}})$ e $\text{Dose}_{^{68}\text{Ga}}(t_{\text{resf}})$ são as contribuições, em $\frac{\mu\text{rem}}{\text{h}}$, de cada um dos isótopos produzidos para a dose específica total¹⁰ e t_{resf} o tempo de “resfriamento” necessário para que o requisito II seja cumprido. Apesar da contribuição inicial do ^{68}Ga ser anteriormente considerada desprezível, pois na investigação da exequibilidade simplesmente impôs-se 24 h de “resfriamento”, agora tal hipótese não pode ser mais adotada de antemão¹¹.

¹⁰Quanto à dose específica total permitida, $1 \frac{\mu\text{rem}}{\text{h}}$, apesar de desconhecida de antemão, foi possível estimá-la após a primeira tentativa de irradiação e utilizando fontes de ^{152}Eu e ^{60}Co para o cálculo de eficiência do detector de HPGe.

¹¹Com efeito, a atividade do ^{68}Ga impede que a corrente integrada seja muito pequena, pois quando o tempo de “resfriamento” é comparável com sua meia-vida, a sua

Função a ser maximizada, variáveis livres e algoritmo de otimização e solução

Obviamente, a função a ser maximizada é $A_{66Ga}(t=t_{resf})$, isto é, a atividade do isótopo ^{66}Ga ao final do período de “resfriamento”. As variáveis livres do processo de otimização são a corrente integrada, I_f e o tempo de “resfriamento”, t_{resf} .

Na solução do problema apresentado utilizou-se um programa de otimização não-linear de gradiente reduzido genérico¹². Na figura 2.8, encontra-se o fluxograma de trabalho utilizado na determinação dos parâmetros ótimos de produção. O resultado da aplicação deste algoritmo nas condições impostas acima foi uma corrente integrada de $I_f \cong 2,82 \cdot 10^{-4} \mu Ah$ ¹³ e um subsequente tempo de “resfriamento” de $t_{resf} \cong 5$ h.

Entre todos os dados necessários para os cálculos acima, as seções de choque de produção são os mais importantes. Os valores experimentais disponíveis destas seções de choque são algumas vezes incongruentes. Desta forma, no apêndice A apresenta-se uma revisão da literatura disponível sobre as seções de choque relevantes na produção, e no apêndice B a metodologia de cálculo destes valores.

alta atividade inicial impõem doses específicas fora do estabelecido no requisito (II); entretanto, quando alta demais a atividade do ^{67}Ga aumenta desnecessariamente o tempo de resfriamento.

¹²Por exemplo, o programa SOLVER disponível no Microsoft EXCEL.

¹³Perfazendo aproximadamente 10 s com uma corrente de $0,1 \mu A$ no ciclotron.

Figura 2.8: Fluxo de trabalho utilizado na determinação dos parâmetros ótimos de produção.

Capítulo 3

Esquema de decaimento do ^{66}Ga

3.1 Introdução

O propósito deste capítulo é apresentar os modos de decaimento do ^{66}Ga e a respectiva radiação γ emitida pelo ^{66}Zn . Esclarecer, o esquema de decaimento, especificamente no que diz respeito a radiação γ , suas respectivas correlações e, principalmente, a razão pela qual podem ser utilizadas como padrão metrológico de energia e apresentar o esquema simplificado de decaimento a ser utilizado na modelagem dos efeitos secundários de detecção do experimento.

O conhecimento detalhado do esquema do decaimento é fundamental quando se pretende realizar correções das áreas dos picos de absorção total resultantes do decaimento em estudo. As correções necessárias, entre outras, envolvem o efeito soma entre coincidências do tipo β - γ ou γ - γ .

As transições β (β^+ 56,5% e EC 43,5%) que transcorrem no núcleo ^{66}Ga podem deixar o núcleo $^{66}\text{Zn}^*$ em um dos seus estados excitados. A produção dos raios γ de interesse, isto é, de altas energias, é resultado de transições eletromagnéticas do núcleo $^{66}\text{Zn}^*$. A compreensão dos processos de decaimento, transições β e γ , nos núcleos envolvidos permite compreender os esquemas de decaimento, propriedades (J^π) atribuídas aos estados excita-

dos do ^{66}Zn , as relações entre as energias das radiações γ emitidas e suas respectivas correlações.

Conseqüentemente, divide-se este capítulo em três seções principais: (I) decaimento β no ^{66}Ga (II) transições eletromagnéticas do ^{66}Zn e (III) correlações de energia. O esquema completo de decaimento do ^{66}Ga encontra-se no apêndice D.

3.2 Decaimento β no ^{66}Ga

3.2.1 Tipos de decaimentos

Uma das principais reações nucleares de produção do ^{66}Ga , $^{66}\text{Zn}(p,n)$, “substitui” um nêutron por um próton. Uma vez que o núcleo formado é instável, o sistema retornará a estabilidade por meio de um decaimento do tipo β^+ ($p \rightarrow n + e^+ + \nu$) ou por captura eletrônica, EC ($p + e \rightarrow n + \nu$). A figura C.1 ilustra os decaimentos β permitidos na série $A = 66$, segundo a fórmula semi-empírica (fórmula de *Weizsaecker*) [19], conforme detalhado no apêndice C. Da figura C.1, o núcleo estável ao decaimento β é o ^{66}Zn .

3.2.2 Decaimento por captura eletrônica

A contribuição do decaimento por captura eletrônica é fundamental para a emissão dos raios γ de alta energia, uma vez que todos os níveis do ^{66}Zn , a partir dos quais estes γ são produzidos, são populados por decaimentos do tipo captura eletrônica.

Os elétrons da camada K são os que têm a maior probabilidade de serem capturados¹. De fato, segundo o esquema de decaimento de [20], os decaimentos por captura eletrônica de elétrons orbitais da camada K possuem

¹Os elétrons da camada K possuem a maior probabilidade de serem encontrados na região no núcleo atômico. Ainda, o respectivo momento angular orbital, $\hbar l$, é obrigatoriamente nulo (o que não verdade para os elétrons das camadas L, M, ...). Adicionalmente, somente elétrons orbitais com $l = 0$, possuem função de onda não nula na região central ($r = 0$, isto é, quando o vetor posição relativa entre o elétron orbital e o núcleo atômico for nulo.)

probabilidades de decaimento aproximadamente uma ordem de grandeza superior quando comparados com aqueles da camada L.

Então, uma vez que o decaimento por captura eletrônica acontece com maior probabilidade com elétrons da camada orbital K, as regras de seleção do decaimento β permitem, para os elétrons orbitais de $l = 0$, decaimento com $\Delta J = 0$ ou 1 (decaimento tipo Fermi ou Gamow-Teller, respectivamente, onde ΔJ é a variação do momento angular do núcleo durante o decaimento)².

Chama atenção o fato de todos os canais de decaimentos β^+ competirem com canais de decaimento por captura eletrônica, enquanto o contrário não é verdade. A competição entre a captura eletrônica e a radiação β^+ muda dramaticamente para diferentes níveis de energia de excitação do núcleo filho. A referência [17] apresenta a relação teórica para a razão³ EC/β^+ . De particular interesse, os decaimentos para os níveis de maior energia de excitação do núcleo⁴ $^{66}\text{Zn}^*$, explicitamente aquelas que populam os níveis acima de 4000 keV, possuem no máximo energia⁵ $Q_{EC} \cong 1175\text{keV}$. Com esta energia de excitação, a razão EC/β^+ é, no pior caso⁶ superior a 10^4 , o que justifica a falta de competição dos canais de decaimento β^+ nesta faixa de energia de excitação.

A captura eletrônica não é trivialmente observável. Entretanto, o rearranjo das camadas eletrônicas, após o decaimento, promove a emissão de raios X e elétrons Auger. Ainda, há emissão da radiação de *bremsstrahlung* interno conseqüente da repentina mudança do momento de dipolo atômico resultante da captura do elétron. Todos estes modos de decaimento podem ser fontes de radiação em coincidência com a radiação γ de interesse, influenciando as correções a serem adotadas.

²Apenas dois canais de decaimentos por captura eletrônica são do tipo $0^+ \rightarrow 2^{+-}$ (um dos quais não se atribuiu valor definitivo $(2)^+$, 3882 keV, e o outro ao qual a referência [20] atribuiu $1,2^-$, 3427 keV), até porque tal transição seria, no mínimo, proibida de primeiro grau.

³Os resultados são apresentados em forma de tabelas, I-13: figura 8 de [17], para transições “permitidas” ou “proibidas” de primeiro grau. Na abscissa entra-se com o valor da energia de transição, escolhe-se o número atômico do núcleo filho, Z, obtendo-se então a razão EC/β^+ .

⁴Que populam os níveis do ^{66}Zn responsáveis pelas transições γ de interesse.

⁵ $1175\text{ keV} = 5175\text{ keV}$ (valor Q do decaimento) - 4000 keV.

⁶Transições permitidas.

Tabela 3.1: Os níveis de alimentação β^+ no decaimento do ^{66}Ga [20], energias máximas e médias, intensidades, coincidências $\beta^+ - \gamma$ relevantes, observações sobre a utilização, ou não, na correção do efeito soma na coincidência $\beta^+ - \gamma$ e sobre a competição por captura eletrônica. Na primeira coluna, $i \rightarrow j$ significa decaimento β^+ entre o i -ésimo nível do ^{66}Ga para o j -ésimo nível do ^{66}Zn . No campo observação encontra-se em parênteses a intensidade do decaimento concorrente por captura eletrônica.

Níveis de alimentação β^+ no decaimento do ^{66}Ga					
transição entre os níveis: $^{66}\text{Ga} \rightarrow ^{66}\text{Zn}$: grau de proibição	energia máxima (keV)	energia média (keV)	intensidade relativa	coincidências $\beta^+ - \gamma$ (keV)	observação
$0 \rightarrow 0$: tipo permitida	4153(3)	1904,1(15)	50(4)	sem coincidência;	transição entre os estados fundamentais
$0 \rightarrow 3$: tipo permitida	1781(3)	781,6(14)	0,30(3)	833, 1333, 1039	fraca concorrência por captura eletrônica
$0 \rightarrow 5$: tipo proibida de primeiro grau	1326(3)	575,3(14)	0,0053(8)	não foi considerado	
$0 \rightarrow 9$: tipo permitida	924(3)	397,1(14)	3,7(3)	1386, 2189, 833, 1039, 3228, 2751, 1333, 1418, 1918	competição por captura eletrônica (3,7)
$0 \rightarrow 11$: tipo proibida de primeiro grau	772(3)	331,1(13)	0,70(6)	3380, 1508, 833, 1039, 2751, 1333, 1918	forte competição por captura eletrônica (1,31)

Tabela 3.1: continuação, níveis de alimentação β^+ no decaimento do ^{66}Ga .

Níveis de alimentação β^+ no decaimento do ^{66}Ga					
transição entre os níveis: $^{66}\text{Ga} \rightarrow ^{66}\text{Zn}$: grau de proibição	energia máxima (keV)	energia média (keV)	inten- sidade relativa	coincidência $\beta^+ - \gamma$ (keV)	observação
$0 \rightarrow 12$: tipo proibida de primeiro grau	726(3)	311,1(13)	0,0020(5)	não foi considerado	
$0 \rightarrow 13$: tipo proibida de primeiro grau	721(3)	308,9(13)	0,16(2)	3432	forte com- petição por captura eletrônica (0,39)
$0 \rightarrow 18$: $\log(ft) = 8,3$	415(3)	179,2(13)	0,0009(3)	não foi considerado	
$0 \rightarrow 20$: tipo permi- tida	362(3)	157,0(13)	0,94(8)	3791, 2751, 1981, 1418	forte com- petição por captura eletrônica (26)

3.2.3 Decaimento β^+ e o nível fundamental do ^{66}Zn

O decaimento β^+ não popula os níveis mais excitados do $^{66}\text{Zn}^*$, sendo, então, de importância secundária para a produção de raios γ de alta energia; entretanto, contribui significativamente para o decaimento β para o estado fundamental e estados excitados de baixa energia⁷ do ^{66}Zn . Uma vez que populam preferencialmente estados de baixa energia de excitação do núcleo filho, os pósitrons emitidos podem possuir energia relativamente elevada, o que aumenta a sua respectiva eficiência de detecção e significância no efeito

⁷Da tabela I-13: figura 8 de [17] é possível estimar que a razão EC/β^+ para o decaimento do estado fundamental do ^{66}Zn vale, aproximadamente, 1/100, compatível com a mesma razão apresentada em [20].

soma por coincidência $\beta - \gamma$.

A transição $^{66}\text{Ga} (0^+) \xrightarrow{\beta^+ \text{ ou EC}} ^{66}\text{Zn} (0^+)$, para o estado fundamental do ^{66}Zn , é exclusivamente do tipo Fermi “permitida”⁸. Admitindo, que os números quânticos de isospin do ^{66}Ga e ^{66}Zn fossem, respectivamente, $T = 2$ e 3 (o que é razoável, função dos respectivos números atômicos, Z , e de massa, A), a transição seria “proibida” pelas regras de seleção de isospin da transição do tipo Fermi⁹. Uma vez que o número quântico de isospin do ^{66}Ga não pode ser $T = 3$, resta, aparentemente, ao estado fundamental do ^{66}Zn ser uma mistura entre $T = 3$ e $T = 2$. Com efeito, a referência [21] apresenta o valor dessa razão de mistura como sendo $4,00(08) \cdot 10^{-5}$. Análises semelhantes e o balanço de intensidades de alimentação em um determinado nível permitem determinar os tipos de decaimentos envolvidos em outras transições, o que especifica a forma do espectro de energia do decaimento. A tabela 3.1 apresenta os níveis de alimentação β^+ no decaimento do ^{66}Ga [20].

3.3 Espectro de emissão β

Além das intensidades do decaimento β , a forma do espectro é necessária na correção dos efeitos secundários de detecção. A forma do espectro β , $N_{\pm}(W)dW$ (sinal positivo β^-), em função da energia total em unidades de m_0c^2 (energia de repouso do elétron), $W = E/m_0c^2 + 1$ (E em MeV), [22]¹⁰, é calculada por meio de

$$N_{\pm}(W)dW = \frac{g^2}{2\pi^3} F(\mp Z, W) pW(W_0 - W)^2 dW [S_n(W)] \quad (3.1)$$

onde, g é a constante de acoplamento da interação fraca, $pW(W_0 - W)^2 dW$ é conhecido como o termo estatístico de forma, $F(\mp Z, W)$ é o termo de

⁸Não pode ser do tipo *Gamov-Teller*, pois um decaimento $0^+ \rightarrow 0^+$ acopla somente para momento angular $\Delta J=0$.

⁹ $\Delta T = 0$, por exceção da transição $T_{inicial} = 0 \rightarrow T_{final} = 0$, onde $\Delta T = 0$ representa a variação do número quântico de isospin durante o decaimento.

¹⁰No decaimento β^+ , o valor Q da reação em unidades da massa de repouso do elétron vale $E/m_0c^2 + 2$, isto é, $W_0 + 1$. Assim, por exemplo, o decaimento β^+ para o estado fundamental do ^{66}Zn vale 4153 keV somando-se 1022 keV obtém-se 5175 keV, que é o valor Q da reação.

Coulomb, $S_n(W)$ o fator de forma de espectros proibidos com grau de proibição n , W_0 a energia total de desintegração em unidades de m_0c^2 , p é momento da partícula β em unidades de m_0c , $p = (W^2 - 1)^{1/2}$. O fator do campo Coulombiano é dado por

$$F(\mp Z, W) = 2(1 + \zeta)(2pR)^{2(\zeta-1)} \exp \left\{ \pi y \frac{|\Gamma(\zeta + iy)|^2}{[\Gamma(2\zeta + 1)]^2} \right\} \quad (3.2)$$

onde $\zeta = [1 - (\alpha Z)^2]^{1/2}$, α é a constante de estrutura fina, $y = \alpha ZW/p$, R é o raio nuclear ($1,41 \cdot A^{1/3}$ f) e Z é o número atômico do núcleo filho.

Quando $S_n(W)$ é independente de W , diz-se que o espectro é do tipo “estatístico”, modificado apenas pela função Coulombiana. Nos decaimentos permitidos, $S_0(W) = 1$, o que torna clara a natureza estatística do decaimento. Para decaimentos proibidos de primeiro grau com a variação no momento angular de $\Delta J = 0, 1^{11}$, que junto com os decaimentos permitidos esgotam todos os decaimentos de interesse neste trabalho, a forma do espectro é aproximadamente estatística caso a energia no campo Coulombiano seja muito maior que a máxima energia cinética disponível, isto é, $Ze^2/R \cong 1,44 \cdot Z / [0,511(1,41 \cdot A^{1/3})] \gg W_0 - 1$, [22]. Esta condição é satisfeita no presente caso.

Os espectros devem sofrer correções. As correções mais importantes referem-se a blindagem atômica e as dimensões nucleares. A blindagem atômica é corrigida por meio da seguinte substituição:

$$F(\mp Z, W) \rightarrow F(\mp Z, W \pm V_0) \left[\frac{(W \pm V_0)^2 - 1}{W^2 - 1} \right]^{1/2} \left(\frac{W \pm V_0}{W} \right) \quad (3.3)$$

onde $V_0 \cong 1,13\alpha^2 Z^{4/3}$, conforme o modelo de Thomas-Fermi [22]. Quanto às dimensões nucleares, a mesma referência afirma que a respectiva correção é importante apenas para núcleos muito pesados.

¹¹Existe o decaimento tipo Gamow-Teller proibido em primeiro grau com $\Delta J = 2$ [22].

3.4 Transições eletromagnéticas no ^{66}Zn

3.4.1 Tipos de transições eletromagnéticas

Um núcleo excitado pode realizar uma transição para um estado de menor energia, principalmente¹², por meio de emissão de um raio γ , ou pela transmissão desta energia para os elétrons atômicos (conversão interna). Ambos processos competem durante a transição do núcleo excitado.

No caso das transições do $^{66}\text{Zn}^*$, é possível estimar [23] que em função das energias das transições eletromagnéticas mais intensas, maiores que 1000 keV, e do baixo número atômico do núcleo filho, $Z=30$ (Zinco), o coeficiente de conversão interna, α_{CI} , pode ser desprezado (na maioria das transições γ do $^{66}\text{Zn}^*$, $\alpha_{CI} < 2 \cdot 10^{-4}$). De fato, a referência [20] não apresenta coeficientes de conversão interna significativos.

3.4.2 Balanço de intensidades das transições γ

O balanço das intensidades das radiações γ que populam (intensidade positiva) ou depopulam (intensidade negativa) um determinado nível pode ser utilizado para determinar a intensidade com que este nível está sendo alimentado, ou não, pelo decaimento $\beta^+ + \text{EC}$. Assim, para um determinado nível i

$$I_{\beta^+ + \text{EC}}^i + \sum I_{\gamma} = 0 \quad (3.4)$$

onde a soma se estende sobre todos os γ populando, ou depopulando, o nível i . A determinação das intensidades destes decaimentos, $I_{\beta^+ + \text{EC}}^i$, para cada nível estudado, permite obter o valor de $\log(ft)$ referente a um determinado nível. Uma vez estabelecido este valor, é possível atribuir um conjunto de valores possíveis de grau de proibição do decaimento β , momento angular total e paridade, J^π , para o nível em questão¹³.

¹²Existem outros canais de decaimento que podem ser completamente desprezados, no presente caso.

¹³Outros decaimentos e informações relativas às reações nucleares pertinentes podem restringir ainda mais os possíveis valores de J^π . Por exemplo, no caso do ^{66}Zn destacam-

A seguir, apresentam-se estas considerações aplicadas à alguns níveis envolvidos no decaimento de interesse: (I) nível de 1039 keV: este nível possui $J^\pi = 2^+$, coerente com a atribuição de $\log(ft) > 11$ [24]. Adicionalmente, esta atribuição de spin e paridade é confirmada por meio de correlações direcionais $\gamma - \gamma$, e de foto excitação [21] e (II) níveis de 4086, 4295, 4461 e 4806 keV: os baixos valores de $\log(ft)$ referente a estes níveis, menores 6,0 (por exceção do nível 4086 keV - que não possui atribuição de grau de proibição, todos ou outros três são do tipo permitido), limitam o conjunto de valores possíveis a $(0,1)^+$. Uma vez que estes níveis também decaem diretamente para o estado fundamental, elimina-se a possibilidade de 0^+ . Resta 1^+ , em acordo com o esquema de níveis.

3.5 Níveis virtuais de 511 keV

A referência [25] sugere que se acrescente artificialmente, para cada alimentação β^+ no esquema de decaimento estudado, níveis virtuais que permitam considerar a radiação de aniquilação no esquema de níveis. Neste trabalho, este tipo de artifício só foi utilizado quando não foi possível identificar o pico de soma da coincidência $\gamma - 511$ keV. A figura 3.1 apresenta exemplos de picos de coincidência entre a radiação de aniquilação e a radiação γ em coincidência emitida em cascata após a depopulação do nível alimentado. Neste tipo de transição eletromagnética, o respectivo coeficiente virtual¹⁴ de conversão interna vale $\alpha_{511\text{ keV}} = -0,5$; desta forma, o fator numérico, $1/(1 + \alpha_{511\text{ keV}})$, que leva em consideração a conversão interna nas expressões de correção do efeito soma na coincidência $\gamma - \gamma$ valerá 2, de acordo com a produção de dois fótons de 511 keV emitidos em direções diametralmente opostas após a aniquilação da radiação β^+ .

O valor negativo atribuído ao coeficiente $\alpha_{511\text{ keV}}$ não deve causar surpresa, uma vez que segundo a sua definição

$$\alpha = \frac{N_{cov.inter.}}{N_\gamma} \quad (3.5)$$

se: $^{66}\text{Cu } \beta^-$, $^{64}\text{Ni}(\alpha, 2n\gamma)$, $^{66}\text{Zn}(p, p')$, $^{66}\text{Zn}(\gamma, \gamma')$, entre outros.

¹⁴Uma vez que não houve transição eletromagnética no núcleo filho.

Figura 3.1: Exemplos de picos de coincidência entre a radiação de aniquilação e a radiação γ em coincidência. Na figura, IDF significa o canal que o IDEFIX associa ao pico desconhecido; e SE e DE picos de simples e duplos escapes, respectivamente.

onde N_γ é o número de fótons produzidos no decaimento de uma população, P , de núcleos excitados, e $N_{cov.inter.}$ contabilizam aqueles que seguirão pelo canal de conversão interna. Um vez que $P = N_{cov.inter.} + N_\gamma$, então o número de fótons de aniquilação fica

$$N_\gamma = \frac{P}{1 + \alpha} \quad (3.6)$$

Como são produzidos dois fótons para cada núcleo da população P , α deve ser negativo e valer -0,5. No esquema com o nível virtual (figura 3.2 à direita), a radiação β^+ decai, como no esquema sem o nível virtual, diretamente para o nível a ser alimentado. Entretanto, o decaimento β^+ popula (linhas pontilhadas) o nível virtual que decai para o nível alimentado pela radiação β^+ em coincidência com a radiação γ que depopula este nível. O modelo de esquema de decaimento incluindo a radiação de aniquilação é ilustrado na

figura 3.2

Figura 3.2: Comparação entre um esquema de níveis genérico sem e com a introdução do nível virtual de 511 keV.

3.6 Padrões de calibração da energia da radiação γ emitida no decaimento do ^{66}Ga

Certamente, a calibração de energia depende da determinação precisa da energia da radiação γ emitida no decaimento do ^{66}Ga . A tabela 3.2 apresenta as energias dos raios γ adotados como padrões de calibração de energia [2].

As ferramentas disponíveis para a determinação precisa de energias de radiações γ são as seguintes [26, 27]: (I) difração em cristais - medidas absolutas do comprimento de onda: determinação da razão entre o comprimento de onda da transição e o parâmetro da rede de Silício, utilizando-se interferômetros duplos de cristais planos¹⁵ (II) difração em cristais - medidas relativas do comprimento de onda: determinação da razão entre os comprimentos

¹⁵Na determinação dos comprimentos de onda utiliza-se: (1) de constantes físicas [28] (2) de comprimentos de onda γ medidos de um espectrômetro (tipo *double-flat-crystal spectrometer*). A idéia é estabelecer uma conexão entre os comprimentos de onda γ e os comprimentos de onda ópticos (padrão) através de um parâmetro absoluto do espaçamento da rede cristalina do Si (3) do valor da constante de transformação comprimento de onda $\rightarrow$ energia (keV) $1,23984244(37) \cdot 10^6 \text{ eV nm}$ e (4) da adoção da energia de transição do ^{198}Au , “padrão de ouro”, de $411\,802,05(17) \text{ eV}$.

de onda de duas transições γ entre si, utilizando-se interferômetros de cristais curvos (III) detectores semicondutores: medidas de energia com detectores calibrados ou diferenças de energias e (IV) relações baseadas por vínculos estabelecidos no esquema de decaimento. Como resultado da utilização destas ferramentas, Helmer e van der Leun [27] apresentam 260 energias de radiações γ de 50 radionuclídeos (entre os quais o ^{66}Ga) em uma faixa de energia entre 24 e 4806 keV. Estes foram divididos em cinco grupos nos quais: (1) o comprimento de onda foi medido diretamente em um interferômetro duplo de cristal plano (2) as medidas são apresentadas relativamente à linha de 412 keV do

Tabela 3.2: Energias dos raios γ adotados como padrões de calibração no decaimento do ^{66}Ga [2] e a respectiva forma de obtê-las. Quando o método utilizado é a diferença de energia medida em detectores semicondutores, uma das respectivas radiações γ utilizadas em [27] é apresentada.

E_γ (keV)	Método de obtenção
686,080(6)	^{124}Sb 722,782(3)
833,5324(21)	^{110m}Ag 818,0244(18)
1039,220(3)	^{124}Sb 968,195(4)
1333,112(5)	^{124}Sb 1325,504(4)
1418,754(5)	^{65}Zn 1115,539(2)
1508,158(7)	^{124}Sb 1436,554(7)
1898,823(8)	^{56}Co 1963,703(11)
1918,329(5)	^{56}Co 1963,703(11)
2189,616(6)	^{56}Co 2113,092(6)
2422,525(7)	^{56}Co 2598,438(4)
2751,835(5)	^{56}Co 2598,438(4)
3228,800(6)	^{56}Co 3201,930(11)
3380,850(6)	^{56}Co 3451,119(4)
3422,040(8)	^{56}Co 3451,119(4)
3432,309(7)	^{56}Co 3451,119(4)
3766,850(9)	Soma 2933+834
3791,004(8)	Não é recomendado para calibração de energia
4085,853(9)	Ajuste do esquema de níveis
4295,187(10)	Não é recomendado para calibração de energia
4461,202(9)	Soma 3422+1039
4806,007(9)	Soma 2933+1039+834

^{198}Au , e medidas por meio de um interferômetro de cristal curvo (3) realiza-se uma série de medidas de diferenças de raios γ relativamente próximos em energia, por meio de detectores semicondutores (calibrados na região da diferença) (4) valores obtidos diretamente de detectores semicondutores devidamente calibrados e (5) soma de valores de outras energias conhecidas (utilizado em altas energias) ou ajustes por meio de vínculos estabelecidos no esquema de níveis.

O ^{66}Ga não se encontra nos dois primeiros grupos; conseqüentemente, as energias dos seus γ não foram medidas diretamente por interferometria. Por exemplo, a energia do γ de 1039 keV é obtida por meio da diferença de energia (medida por detectores semicondutores) entre este e a de 968,195(4) keV do ^{124}Sb . No tocante aos raios γ de alta energia, suas energias são obtidas por meio de: (I) soma de outros γ emitidos em “crossover”; por exemplo, 4806 keV = 2933 + 1039 + 834 keV, 4461 keV = 3422 + 1039 keV (II) ajuste, por meio do método dos mínimos quadrados, das energias dos níveis de energia do esquema de decaimento; por exemplo, 4086 keV, com $\chi^2 = 0,71$.

3.6.1 Correlações

As energias medidas do decaimento do ^{66}Ga estão correlacionadas com àquelas dos ^{124}Sb , ^{110m}Ag , ^{65}Zn , e, principalmente, com a do ^{56}Co . Por exemplo, segundo Guimarães-Filho [26] a correlação entre os raios γ de 3201 keV do ^{56}Co e de 3228 keV do ^{66}Ga é de 0,87. Conseqüentemente, a correlação entre estas energias não pode ser desprezada quando se utiliza o ^{66}Ga para a determinação da energia dos picos de absorção total destes outros núclídeos. Finalmente, em particular para as altas energias, surgem correlações nítidas, uma vez que estas energias são determinadas por somas ou por ajuste do esquema de níveis. O apêndice E apresenta a matriz de correlação total [26] utilizada na calibração de energia.

3.7 O esquema de níveis simplificado

O conhecimento do esquema de decaimento é importante para a correção adequada das contagens dos picos γ . O decaimento do ^{66}Ga possui em torno de 140 transições γ e o ^{66}Zn apresenta 31 níveis conhecidos. Conseqüentemente, o conjunto de possíveis coincidências entre estas radiações é um número elevado.

A modelagem do decaimento do ^{66}Ga visa selecionar, entre todas as possibilidades de coincidências, aquelas que sejam relevantes. O critério de complexidade adotado para o modelo de decaimento é aquele no qual a introdução de mais radiações em coincidência não traz mudanças significativas no ajuste da eficiência de pico. Isto é, a utilização de um modelo de esquema de decaimento mais complexo, incluindo radiações de intensidades cada vez menores, não muda significativamente as correções necessárias. O modelo obtido segundo esta metodologia é apresentado na figura 3.3.

Figura 3.3: Esquema de níveis simplificado do ^{66}Zn com as energias keV. Obs.: e^+e^- significa radiação de aniquilamento (511 keV) e $\beta^+ : 1781$ a radiação β de 1781 keV de energia cinética máxima.

Capítulo 4

Intensidades de transição γ no decaimento ^{66}Ga

4.1 Introdução

O propósito deste capítulo é esclarecer as razões pelas quais as intensidades de emissão dos raios γ do decaimento do ^{66}Ga podem ser utilizadas como padrão metrológico secundário para a calibração de eficiência de detectores de HPGe.

A obtenção da curva de eficiência de detecção em uma determinada região de energia não é uma tarefa difícil, caso os padrões adequados existam na mesma região de energia que se tem interesse. Entretanto, o desenvolvimento de padrões adequados exige uma fonte de radiação γ com probabilidades de emissão (I_γ) conhecidas, que por sua vez demanda um detector com uma curva de eficiência disponível. A solução deste dilema exige a determinação dos valores de $\{I_\gamma\}$ através de princípios fundamentais e não por meio de algum procedimento de calibração.

4.2 Métodos de estabelecimento de fontes γ primárias de calibração

Medidas de padrão primário da atividade absoluta são aquelas fundamentadas, direta ou indiretamente, na contagem dos respectivos eventos de interesse e que não utilizam quaisquer outras fontes de atividade padrão para comparação. Por exemplo, um dos métodos mais eficazes é o da coincidência, que, em princípio, pode ser aplicado sempre que duas partículas ou fótons são emitidos em coincidência¹.

4.3 Padrões de calibração de eficiência

Os padrões de calibração de eficiência podem ser classificados em dois grupos, conforme a respectiva faixa de energia: (I) 100 - 2754 keV e (II) 1262 - 10 829. A divisão em 2754 keV é função da recomendação, em 1990, das probabilidades de emissão de 36 radionuclídeos (cujas energias estendem-se entre 14-2754 keV) pelo programa coordenado de pesquisa da “International Atomic Energy Agency” (IAEA). A radiação de 1262 keV é a de menor energia entre os três raios γ mais intensos gerados na reação $^{12}\text{C}(n,\gamma)$, de grande interesse em calibração de eficiência.

¹Resumidamente, no tipo $4\pi\beta\gamma$ uma fonte instável ao decaimento β e que também emite radiação γ durante o decaimento do núcleo filho, é montada no plano central de um sistema composto de um detector proporcional a gás (4π) e um cintilador tipo NaI(Tl). Admitindo, por simplicidade, que o detector proporcional é sensível apenas à radiação β enquanto que o cintilador apenas à radiação γ , é possível escrever para as respectivas contagens $n_\beta = A\epsilon_\beta$ e $n_\gamma = A\epsilon_\gamma$, onde A é a atividade da fonte e ϵ_β e ϵ_γ correspondem às eficiências de detecção da radiação β e γ , respectivamente. Quanto à contagem em coincidência, $n_{coinc.} = A\epsilon_\beta\epsilon_\gamma$, de forma que, é possível escrever a atividade como $A = n_\beta n_\gamma / n_{coinc.}$. Em decaimentos mais complexos, utilizam-se variações mais sofisticadas desta mesma metodologia. Ainda, é possível adaptar este procedimento em fontes que decaem por captura eletrônica, contando, no que se refere ao canal de decaimento β , os raios X e elétrons Auger.

4.3.1 Energias entre 100 - 2754 keV

Os procedimentos de criação de uma curva de calibração de eficiência ou o estabelecimento de fontes de intensidade padrão, podem ser resumidos nos seguintes itens:

I. Método de Monte Carlo

O conhecimento das seções de choque de efeito fotoelétrico, de Compton, de produção de pares² e da geometria do detector permitem o cálculo da eficiência de pico pelo método de Monte Carlo, que é fundamentado na simulação da história individual de cada fóton. As precisões envolvidas no cálculo das eficiências absolutas e relativas podem ser melhores que 10 e 5%, respectivamente. Adicionalmente, estes cálculos e subseqüentes medidas permitem que a eficiência, função da energia (em um gráfico log-log), seja ajustada por meio de funções analíticas simples.

II. Fontes mono-energéticas

Uma fonte mono-energética³, pode ser utilizada como fonte primária para a calibração de eficiência absoluta. Esta fonte é um radionuclídeo cuja atividade foi medida por métodos absolutos, item 4.2, e cuja probabilidade de emissão de raios γ foi determinada por meio de considerações referentes ao esquema de níveis ou de algum outro detector cuja eficiência foi determinada a partir de princípios fundamentais.

III. Método da razão de eficiência (point-pair method)

Existem radionuclídeos que emitem dois ou três raios γ intensos formando uma cascata de aproximadamente 100%⁴. Caso o estado intermediário tenha alimentação β^5 desprezível, a razão de intensidade entre os raios γ envolvidos torna-se próximo da unidade, dependendo apenas de pequenas correções

²Energias acima de 1022 keV.

³Por exemplo, ²²Na, ⁵⁴Mn, ⁶⁵Zn, ¹³⁷Cs e ²⁰³Hg.

⁴Por exemplo, ⁴⁶Sc, ⁶⁰Co, ⁹⁴Nb e ¹⁸⁰Hf^m.

⁵Utilizada, aqui, no seu sentido mais geral, isto é, β^- , β^+ ou EC.

referentes a processos geralmente secundários como a conversão interna ou a formação de pares. De fato, utilizando este método já se criou uma curva de eficiência relativa com erros de $\pm 0,2 \%$ na região de 702-1332 keV [29].

4.3.2 Energias entre 1262 - 10 829 keV

O método geralmente utilizado na construção de curvas de eficiência de pico em energias mais altas que as usuais em espectroscopia γ envolve reações nucleares. Por exemplo, as ressonâncias de captura de prótons em núcleos leves⁶ produzem, geralmente, um espectro simples de raios γ em cascatas de aproximadamente 100%. Utiliza-se, então, o método da razão de eficiência; entretanto, o principal padrão de intensidade de radiação γ de alta energia é a reação $^{14}\text{N}(n,\gamma)$ neste caso. Os raios γ mais intensos emitidos nesta reação nuclear cobrem, regularmente, a região de 1678 - 10 829 keV.

4.3.3 Fontes multi-energéticas

Uma vez que um detector tenha sido calibrado por um dos métodos apresentados anteriormente, este pode ser utilizado para a determinação das intensidades de emissão de fontes multi-energéticas, normalmente encontradas nos laboratórios. Torna-se possível, então, desenvolver fontes secundárias confiáveis.

4.4 Captura de nêutrons térmicos no ^{14}N

Fica, entretanto, de se responder a questão do motivo da particular atratividade da reação $^{14}\text{N}(n,\gamma)$ quando aplicada ao levantamento de uma curva de eficiência. De fato, o esquema de níveis do ^{15}N é relativamente simples e o balanço das probabilidades de emissão permite que a curva de eficiência seja extrapolada da região de baixa para a de alta energia. Apresenta-se na figura 4.1 o esquema simplificado de decaimento do ^{15}N , após a captura radioativa de nêutrons térmicos pelo ^{14}N [25].

⁶Por exemplo, ^{11}B , ^{14}N , ^{23}Na e ^{27}Al .

Figura 4.1: Esquema simplificado de decaimento do ^{15}N , após a captura radioativa de nêutrons térmicos pelo ^{14}N , reproduzido de [25].

A referência [30] apresenta um resumo da utilização da reação de captura térmica de nêutrons, em particular a reação $^{14}\text{N}(n, \gamma)$ é um padrão de energia e intensidades de radiações γ desde 1961. Desde então, praticamente todos os laboratórios que trabalham com reações de captura de nêutrons utilizam, direta ou indiretamente, este padrão.

O processo de obtenção de padrões de calibração para a construção de curvas de calibração de eficiência na região de altas energias foi um processo longo. Os valores de intensidades da radiação γ obtidos da reação $^{14}\text{N}(n, \gamma)$ por meio de um espectrômetro magnético Compton⁷, com uma curva de eficiência previsível, foram o ponto de partida. Os valores de intensidades

⁷Em um espectrômetro magnético Compton é possível relacionar a energia de um feixe γ mono-energético incidente, E_γ , com a energia do elétron espalhado, E_e , (ambos em unidades da massa de repouso do elétron) por meio de $E_e = 2 \cdot E_\gamma^2 [1 + 2E_\gamma + (1 + E_\gamma)^2 \cdot \text{tg}^2\phi]^{-1}$. As energias de alguns raios γ podiam também ser calculadas por meio da energia de separação de nêutrons do núcleo resultante da captura. Quanto à intensidade, utiliza-se a seção de choque diferencial de Klein-Nishina função do ângulo de recuo do elétron (ϕ) e da energia do fóton incidente (E_γ).

relativa obtidos foram posteriormente confirmados e refinados por muitos autores (conforme detalhado em [31]), de modo que por volta de 1980 já era possível gerar curvas de eficiência relativa com $\cong 3\%$ de incerteza relativa na região entre 2-9 MeV. Utilizando-se outros núcleos leves com requisitos simples de balanço de intensidades foi possível obter incertezas da ordem de $\cong 1\%$ entre 2-7 MeV, $\cong 2\%$ entre 7-9 MeV e $\cong 4\%$ entre 9-11 MeV (1997) [30]. Valores absolutos são obtidos por meio da curva de eficiência relativa e da radiação γ de 2223,3 keV resultante da captura de nêutrons térmicos pelo ^1H e os resultados conferidos contra a radiação produzida na captura de nêutrons térmicos pelo ^{12}C .

A reação $^{12}\text{C}(\text{n},\gamma)$ é de particular interesse, pois dos seus três raios γ mais intensos, 1262, 3684 e 4946 keV, os dois primeiros tem praticamente a mesma intensidade e a razão de intensidades entre o primeiro e o último é bem determinada e vale 0,452(9).

4.5 Padrões secundários de calibração de eficiência

Apesar de atrativa, a reação $^{14}\text{N}(\text{n},\gamma)$ possui baixa seção de choque (80 mb), o que exige, relativamente à outras reações de captura de nêutron, uma fonte intensa de nêutrons, longos períodos de irradiação e maior quantidade de material irradiado. Conseqüentemente, alguns investigadores preferem utilizar a reação $^{35}\text{Cl}(\text{n},\gamma)$ (43,5 b), em virtude da relativamente alta seção de choque e do espaçamento uniforme de energia entre os raios γ emitidos.

Na referência [3], o procedimento de calibração de eficiência de pico em altas energias é descrito da seguinte maneira: (I) utilizar as fontes multi-energéticas ^{133}Ba e ^{152}Eu ⁸ como padrões secundários (permitindo calcular a eficiência do detector em baixas energias) e (II) calcular as eficiências de pico na faixa de energia de interesse, utilizando as probabilidades relativas de emissão da reação nuclear $^{35}\text{Cl}(\text{n},\gamma)$ (previamente medidas com relação à $^{14}\text{N}(\text{n},\gamma)$ - tomada como padrão primário).

⁸Conforme recomendado pela IAEA-TECDOC-619.

4.6 Revisão sobre a utilização do ^{66}Ga como padrão de calibração de eficiência

Nem sempre o radionuclídeo ^{66}Ga foi recomendado como padrão para a calibração de eficiência de detectores de radiação γ . De fato, o relatório IAEA-TECDOC-619 (1991) deixa a questão de sua utilização em aberto como uma futura possibilidade. Fica a questão de se explicar o porquê da não-aprovação do ^{66}Ga como padrão de calibração naquela época.

As probabilidades relativas de emissão do ^{66}Ga foram medidas primeiramente com boa precisão, do ponto de vista estatístico, na referência [24] e, de forma semelhante com a primeira, na referência [32]⁹. Na referência [24], a eficiência do detector foi medida utilizando fontes radioativas de energias até 2750 keV. Assumindo, por hipótese, que fosse possível extrapolar, até 5000 keV, os valores de eficiência ajustados linearmente (log-log, eficiência $\times$ energia) na região entre 1000 - 2000 keV [24] calculou as citadas probabilidades relativas de emissão.

Infelizmente, esta extrapolação é inadequada. Tal procedimento começou a ser questionada em 1974, quando MacCallum e G.E. Coote [33] calibraram um detector até a energia de 11 588 keV, utilizando ressonâncias (p, γ) para calcular as probabilidades relativas de emissão do ^{66}Ga e ^{56}Co . Quando os valores obtidos foram comparados com os de D.C. Camp e G.L. Meredith [24], estes mostraram-se sistematicamente inferiores, alcançando diferenças da ordem de 30 % para a transição gama de 4806 keV do ^{66}Ga . Adicionalmente, [33] verificou que o gráfico log-log (eficiência $\times$ energia) não decrescia linearmente; de fato, os dados experimentais indicavam uma eficiência menor que aquela prevista pela relação linear. Conseqüentemente, uma vez que a eficiência era superestimada na região de altas energias na referência [24], as respectivas probabilidades relativas de emissão calculadas eram sistematicamente menores, conforme corroborado em 1996 por [34].

Tentando corrigir a discrepância encontrada, a referência [33] apresentou correções aos valores de [24]. Tais recomendações foram utilizadas em algu-

⁹Pois ambos normalizaram os picos mais intensos conforme os valores recomendados por [24].

Tabela 4.1: Níveis de energia de interesse, probabilidades de emissão γ por decaimento, $P_{\gamma i}$, e intensidades relativas do decaimento do ^{66}Ga , $P_{\gamma i/\gamma_{1039\text{keV}}}$, conforme recomendado pela IAEA. As incertezas de $P_{\gamma i}$ são relativas às incertezas de $P_{\gamma i/\gamma_{1039\text{keV}}}$.

$E_{\gamma}(\text{keV})$	$P_{\gamma i}$	$P_{\gamma i/\gamma_{1039\text{keV}}}$
686,080(6)	0,00252(22)	0,00681(20)
833,5324(21)	0,059(5)	0,1593(6)
1039,220(3)	0,37(3)	1,000(3)
1333,112(5)	0,0117(9)	0,03175(13)
1418,754(5)	0,0061(5)	0,01657(8)
1508,158(7)	0,0055(4)	0,01497(7)
1898,823(8)	0,0039(3)	0,01051(8)
1918,329(5)	0,0199(16)	0,05368(23)
2189,616(6)	0,053(4)	0,1442(6)
2422,525(7)	0,0188(15)	0,05085(24)
2751,835(5)	0,227(18)	0,6135(26)
3228,800(6)	0,0151(12)	0,04082(22)
3380,850(6)	0,0146(12)	0,03960(23)
3422,040(8)	0,0086(7)	0,02314(16)
3432,309(7)	0,00288(24)	0,00777(10)
3766,850(9)	0,00149(13)	0,00403(15)
3791,004(8)	0,0109(9)	0,002941(24)
4085,853(9)	0,0127(10)	0,03445(20)
4295,187(10)	0,038(3)	0,1030(8)
4461,202(9)	0,0084(7)	0,0226(3)
4806,007(9)	0,0186(15)	0,0503(3)

mas investigações até 1998; entretanto, os fatores de correção das probabilidades relativas de emissão careciam dos respectivos valores de incertezas, o que tornava o ^{66}Ga não recomendável como padrão de calibração. A situação mudou apenas em 2000, quando [29] apresentou novos valores para as probabilidades relativas de emissão do ^{66}Ga , confirmados posteriormente por [3]. Desde então, admiti-se o ^{66}Ga como padrão secundário de calibração [3]. A tabela 4.1 apresenta os níveis de energia de interesse, probabilidades de emissão por decaimento e intensidades relativas do decaimento do ^{66}Ga [2].

Capítulo 5

Arranjo Experimental

5.1 Os experimentos de Berkeley e Budapest

O propósito deste capítulo é apresentar o arranjo e procedimento experimental utilizado e descrever o procedimento experimental utilizado na determinação das probabilidades de emissão e apresentar também uma descrição resumida dos experimentos semelhantes realizados em Berkeley e Budapest.

Os experimentos realizados em Berkeley e Budapest [3] são fundamentais no estabelecimento do ^{66}Ga como padrão de calibração. Os resultados destes experimentos apresentam excelente concordância. Assim, obteve-se as probabilidades de transição das 18 linhas principais, numa faixa de 833 até 4806 keV para o ^{66}Ga . Estas probabilidades de transição são, agora, conhecidas com precisão superior a 1%.

5.1.1 O experimento de Berkeley

I. Produção

Neste experimento, utilizou-se: (1) um alvo de 1,6 mm de $^{\text{nat}}\text{Zn}$ (de pureza superior a 99%) e (2) um feixe de prótons de 17,5 MeV do ciclotron de 88 polegadas do *Lawrence Berkeley National Laboratory*. Após um “resfriamento” de 26 horas, a atividade final da fonte era de 15 μCi .

II. Detetor

Foi utilizado um detetor semiconductor de HPGe tipo p Ortec de 300 cm³ com supressor Compton. Os espectros foram obtidos com o detetor a 30,5 e 60 cm da fonte, de modo a determinar se existiam correções significativas por efeito soma.

III. Metodologia de calibração da eficiência

Na determinação da eficiência relativa foram utilizados com fontes de calibração o ⁵⁶Co, ¹⁵²Eu, ¹⁵⁴Eu e ²²⁸Th; na determinação da eficiência absoluta, ⁶⁰Co e ¹³⁷Cs e ¹³C(²³⁸Pu) cujo raio γ de 6129 keV, de probabilidade de emissão bem conhecida, é essencial na determinação de um ajuste de eficiência que seja confiável no intervalo de energia entre 3000 e 6000 keV. A maioria das radiações γ utilizadas na determinação da eficiência relativa possuem probabilidades de emissão com incertezas inferiores a 1%.

O pico de absorção total da radiação γ de 4295 keV superpõe-se com o de simples escape daquela de 4806 keV (apesar da operação em supressor Compton). De modo a separar os picos superpostos, a probabilidade relativa de emissão da radiação γ de 4295 keV demandou a determinação da razão entre a área dos picos de simples escapes e aqueles de absorção total em função da energia.

5.1.2 O experimento de Budapest

I. Produção

Neste experimento, foram utilizados: (1) três alvos de ⁶⁶Zn enriquecidos (⁶⁶Zn $\rightarrow$ (99,0 $\pm$ 0,1) %, ⁶⁷Zn $\rightarrow$ 0,17 %, ⁶⁸Zn $\rightarrow$ 0,3 %,) produzidos por eletrodeposição e dois alvos de composição natural¹. Utilizaram-se alvos de 0,015 g/cm² e 5 μ m de espessura. Os suportes (*backings*) dos alvos foram construídos em Ni e (2) um feixe de prótons de 14,5 MeV do ciclotron MGC 20E do ATOMKI. O tempo de irradiação foi de 6,5 h e de resfriamento 24 h.

¹Os alvos enriquecidos e naturais foram dispostos alternadamente, e adicionados ao longo do experimento de modo a manter a contagem dentro de valores adequados para a utilização do supressor Compton.

II. Detetor

Foi utilizado um detetor semicondutor de HPGe tipo n Canberra de 100 cm³ com supressor Compton. O espectro foi obtido com o detector a 23,5 (posição padrão) e 31,5 cm da fonte².

III. Metodologia de calibração da eficiência

As calibrações de eficiência e energia foram realizadas utilizando fontes multi-energéticas de ¹³³Ba e ¹⁵²Eu e as radiações γ resultantes da reação de captura de nêutrons ³⁵Cl(n, γ), como fontes secundárias e as da reação ¹⁴N(n, γ), como fonte primária.

5.2 Arranjo experimental deste trabalho

5.2.1 Produção

Foi confeccionado um alvo de ^{nat}Zn de 99,99% de pureza com dimensões de 10 mm $\times$ 10 mm $\times$ 1 mm fornecido pela empresa Aldrich/Sigma para o bombardeamento por um feixe de prótons de 15 MeV do acelerador ciclotron Cyclone 30 do IPEN.

A condição ótima de bombardeamento, item 2.5.3, é sujeita a capacidade do ciclotron de implementá-la, pois a corrente integrada estimada tem valor menor que o usualmente empregado neste tipo de máquina. Nestas condições, o acelerador apresenta funcionamento instável. Ainda, uma vez que a corrente integrada final tinha valor inferior ao mínimo de contagem da instrumentação disponível, a sua medida durante o bombardeamento era realizada pela contagem do tempo.

Caso o acelerador apresente instabilidade durante o funcionamento, espera-se que um tempo exagerado de bombardeamento compense possíveis os-

²O supressor Compton, nestes experimentos, pode reduzir os picos de simples e de duplo escape por um fator de 10 e 100 vezes, respectivamente, o que conseqüentemente facilita a identificação e ajuste dos picos de absorção total quando misturados aos de simples e duplos escapes de radiações de maiores energias. Por outro lado, as bordas Compton de picos intensos tornam-se agora “picos largos”, dificultando, por exemplo, a análise do pico de 833 keV, pois este encontra-se na borda Compton daquele de 1039 keV.

cilações na corrente do feixe. Assim, utilizou-se correntes de $0,1 \mu\text{A}$ durante 30 s, distante das condições ideais; porém, exequível dentro das restrições postas. Certamente, o tempo exagerado de bombardeamento leva a produção de isótopos indesejáveis, cujo resfriamento irá diminuir a atividade final do ^{66}Ga . Após o bombardeamento o alvo foi “resfriado”, durante 16 h. A atividade final estimada de cada radioisótopo, após o resfriamento, foi: (1) $^{66}\text{Ga} = 1,25 \cdot 10^{-1} \mu\text{Ci} \pm 2\%^3$, (2) $^{67}\text{Ga} = 7,4 \cdot 10^{-3} \mu\text{Ci} \pm 5\%^4$ e (3) $^{65}\text{Zn} = 2,95 \cdot 10^{-3} \mu\text{Ci} \pm 3\%^5$. Ainda, nenhuma atividade do ^{68}Ga foi observada.

5.2.2 Espectroscopia γ

O arranjo experimental empregado neste trabalho consta de: (1) detector de HPGe montado em uma blindagem de Pb ($\cong 51,5 \times 70,5 \times 10 \text{ cm}^3$) e (2) a respectiva eletrônica. A geometria foi escolhida de modo que efeitos secundários de detecção fossem minimizados [35]. As figuras 5.1, 5.2, e 5.3 ilustram o arranjo utilizado na experiência.

Figura 5.1: Arranjo experimental utilizado: blindagem.

³Contagem corrigida pelo efeito soma e decaimento durante a aquisição.

⁴Contagem determinada pelo ajuste do pico de 393 keV e extrapolação da curva de eficiência, sem correção de efeito soma, e com a correção função do decaimento durante a aquisição.

⁵Contagem determinada pelo pico de 1115 keV sem nenhuma correção significativa por efeito soma ou decaimento durante a aquisição.

Figura 5.2: Arranjo experimental utilizado: detetor. O detetor encontra-se montado, dentro da blindagem e com o suporte de fontes.

Figura 5.3: Ilustração do arranjo experimental utilizado: eletrônica. Na parte superior, à esquerda, encontram-se o amplificador ORTEC 572 e fonte; na inferior, o conversor analógico digital ADC114 e o histogramador ORTEC HM413.

Detetor e eletrônica

Na medição dos radioisótopos produzidos utilizou-se um detetor HPGe da ORTEC de 162 cm^3 . As características principais deste detetor encontram-

Tabela 5.1: Características principais do detetor HPGe utilizado [36].

fornecedor	ORTEC
eficiência relativa NaI(Tl) 3" × 3"	33%
espessura do invólucro de Al	1,27 mm
espessura inativa de Ge	0,70 mm
diâmetro do cristal	59,0 mm
distância: cristal invólucro	3,0 mm

Os equipamentos eletrônicos utilizados foram os seguintes: (1) um amplificador ORTEC 572 [37] com rejeição de empilhamento (2) um conversor analógico digital ADC114 [38] de aproximações sucessivas dotado de 16000 canais e (3) um módulo histogramador tipo ORTEC HM413 [39]. De modo a ilustrar a integração do sistema, apresenta-se a figura 5.4 [35].

Figura 5.4: Diagrama ilustrativo da integração da eletrônica utilizada na experiência [35].

Na figura 5.4, o detector, submetido a uma tensão de 2 kV, gera os pulsos que alimentam o pré-amplificador, disposto o mais próximo possível do detector⁶, tem por função realizar a interface entre o detector e o restante da

⁶Na verdade, o pré-amplificador faz parte do conjunto do detetor.

eletrônica de tratamento de sinais que se segue. O amplificador disponibiliza os seguintes sinais: (1) sinal digital de *busy* (ocupado) (2) sinal digital de *inhibit* (rejeição de empilhamento) e (3) sinal analógico de saída unipolar. Todos estes sinais enviados pelo amplificador são utilizados pelo ADC.

No amplificador foram ajustados o ganho, a constante de tempo de formação do pulso (*shapping time*), nível de tensão de restauração da linha de base, cancelamento de polo zero e o nível DC. A escolha do conjunto destes valores foi realizada utilizando um osciloscópio que apresentava o sinal analógico unipolar de saída do amplificador. No osciloscópio, o valor do limiar (*threshold*) foi ajustado de modo a destacar apenas os pulsos de maior amplitude (alta energia). Assim, o ajuste dos parâmetros operacionais do amplificador foi realizado com o objetivo de se obter pulsos de alta energia da melhor maneira possível.

Entre todos os valores ajustados, a constante de tempo de formação do pulso (*shapping time*) é certamente a mais importante. Se escolhida abaixo do ideal, o espectro apresentará picos largos, devido à incapacidade da determinação do máximo do pulso; inversamente, com uma constante de tempo exagerada, os efeitos de empilhamento tornam inexecutável a utilização do sistema de aquisição. No presente experimento, adotou-se o valor de $10\ \mu\text{s}$, função das baixas contagens e resolução em altas energias.

O conversor analógico digital encontrava-se acoplado a um módulo histogramador por meio de uma conexão FERA-BUS. O conversor analógico digital demanda os seguintes ajustes: (1) discriminador inferior (*lower level*) (2) superior (*upper level*) e (3) *DC-OFFSET*, todos programáveis por meio do CAMAC. Os discriminadores têm por função manter as amplitudes entre 0 e 10V. Em particular, o inferior deve ser ajustado de modo a evitar a desnecessária conversão de ruídos, deixando o sistema de aquisição disponível para os pulsos a serem analisados. Por outro lado, quaisquer pulsos cujas amplitudes sejam menores que o nível inferior de discriminação são ignorados. De fato, a consideração deste efeito tem particular importância na determinação da eficiência total.

Ainda, o sistema possui um relógio de tempo morto, que corrige a contagem do tempo função do empilhamento, eliminando a necessidade de cor-

reção das áreas dos picos por empilhamento. A construção do espectro é realizada no histogramador. Finalmente, o espectro é transferido a um computador IBMPC através do sistema ISA/CAMAC.

5.2.3 Geometria

A geometria de montagem do experimento foi determinada primordialmente em função da contagem obtida dos picos alta energia, cujo estudo é o principal objetivo deste trabalho. A baixa contagem obtida após a produção da fonte de ^{66}Ga demandou a montagem da fonte relativamente próxima ao detetor. O suporte utilizado, figura 5.5, manteve a fonte a uma distância de 16 mm.

Figura 5.5: Suporte utilizado na montagem da fonte. O suporte manteve a fonte a uma distância de 16 mm do detetor no decorrer de todo o experimento.

A distância de montagem especificada foi a única no decorrer de todo o experimento; nesta distância, o efeito soma é significativo. O único argumento restante a favor da utilização de outras geometrias⁷ é a possibilidade da estimativa da atividade da fonte produzida por meio das radiações de baixa energia resultantes do decaimento do ^{66}Ga , pois (1) a eficiência do detector pode ser calculada por meio de fontes normalmente utilizadas (2) a alta intensidade relativa desta radiação pode permitir a sua utilização mesmo

⁷Especificamente, geometrias com distâncias de montagens muito maiores ($\cong 20$ cm), de modo a tornar as correções por soma insignificantes.

a distâncias muito maiores que a adotada no presente experimento e após o decaimento da fonte durante a aquisição principal e (3) o cálculo da atividade, quando da ausência de efeitos secundários torna-se um procedimento direto. Como este não é o objetivo da experiência, não se considerou outra distância de montagem⁸.

5.3 Posicionamento da irradiação

Na medida em que a produção da fonte aproxima-se do ponto ótimo, as respectivas incertezas tornam-se menores e, então, correções referentes à efeitos secundários podem tornar-se significativas. Os tipos de correções a serem empregadas dependem do lado da chapa de Zn irradiada pelo feixe de prótons, pois este tem alcance muito menor que a espessura da chapa de Zn. Então, todos os radioisótopos produzidos encontram-se próximos a uma das superfícies. Entretanto, a irradiação da chapa de Zn não deixou nenhuma marca visual que caracterizasse o lado irradiado. Uma vez que a irradiação da chapa de Zn foi realizada por terceiros, torna-se necessário confirmar sobre que lado da fonte o feixe de prótons incidiu. Existem duas possibilidades de posicionamento da fonte para a medição: (1) ou o lado irradiado fica voltado para o detetor ou (2) vice-versa. Em cada possibilidade, ou se corrige o efeito soma referente às radiações $\beta-\gamma$ em coincidência, ignorando-se as atenuações na fonte; ou o contrário, figura 5.6. Independentemente do lado irradiado, as correções por efeito soma das radiações $\gamma-\gamma$ em coincidência são as mesmas.

⁸Poder-se-ia, por outro lado, argumentar que se perdeu uma boa oportunidade de validar a metodologia de correção por efeito soma em altas energias; entretanto, a única eficiência absoluta obtida, em todo procedimento experimental adotado, foi calculada a partir de uma fonte calibrada de ⁶⁰Co, cuja respectiva correção por efeito soma não necessita de radiações em altas energias. Das correções necessárias para a contagem (durante a minimização do ajuste da eficiência de pico), todas as radiações importantes são de baixas energias (511 keV - de longe a mais importante - 1333 keV e 833 keV por exemplo, cujas razões soma para pico são estimadas por meio de fontes de baixas energias), por exceção das radiações de 2751 keV e de 2189 keV (outras radiações de alta energia são de baixa intensidade). Assim, a verificação do procedimento de correção por efeito soma, em altas energias, por meio da comparação com a atividade calculada a grandes distâncias (utilizando-se radiações de baixa energia) não é tão significativa quanto parece à princípio. A contagem, determinada em grandes distância, serve somente para acrescentar mais um grau de liberdade no ajuste dos dados de eficiência.

Figura 5.6: Irradiação da chapa de Zn e os efeitos secundários de detecção pertinentes. Os radioisótopos produzidos pelo feixe de prótons acumulam-se próximos a superfície irradiada. Caso o lado irradiado esteja voltado para o detector, as radiações β e γ não são atenuadas na fonte, caso contrário a atenuação é suficiente para tornar a influência da radiação β desprezível.

A caracterização do lado irradiado da fonte produzida pode ser realizada por meio das radiações γ provenientes do decaimento do ^{67}Ga . A produção do isótopo ^{67}Ga foi consequência inevitável do processo de produção; entretanto, o esquema de decaimento deste isótopo é simples e de fácil correção por efeito soma. Ainda, o seu espectro privilegia radiações de energias relativamente baixas quando comparadas com as aquelas de interesse no presente trabalho. Então, é possível determinar qual lado da chapa de Zn foi irradiado, pois a absorção da radiação γ produzida pelo ^{67}Ga é significativa⁹ quando comparada com as incertezas obtidas. Em particular, foi comparada as intensidades de emissão entre as radiações de 93,310 e 300,217 keV. Caso as radiações não sofram absorção, a razão entre as contagens corrigidas do efeito soma nos respectivos picos de absorção total, N_1/N_2 (onde 1 e 2 referem-se a 93,310 e 300,217 keV, respectivamente), deverá ser igual a $\epsilon_1 \cdot p_1 / \epsilon_2 \cdot p_2$; caso contrário, a razão deverá ser $\frac{N_1}{N_2} = \frac{\epsilon_1 \cdot p_1}{\epsilon_2 \cdot p_2} \cdot e^{-(\mu_1 - \mu_2) \cdot \Delta x}$ (μ é o coeficiente de atenuação de massa [40] e Δx a espessura da chapa de Zn).

Na figura 5.7 apresenta-se a curva de calibração de eficiência relativa de pico em baixas energias, $\epsilon(E)/\epsilon(59,54\text{keV})$ ¹⁰. Do ajuste desta curva e da

⁹Mantido ponto de produção e espessura da chapa utilizada.

¹⁰A principal transição do ^{241}Am é de 59,54 keV, cuja eficiência de pico foi considerada como fator de normalização.

Figura 5.7: Determinação do lado irradiado da chapa de Zn. A partir da curva de calibração de eficiência de pico em energias relativamente baixas é possível comparar as intensidades de emissão entre as radiações de 93,310 e 300,217 keV do ^{67}Ga .

contagem dos picos, calcula-se ϵ_1 , ϵ_2 e $R = \frac{N_1}{N_2} / \frac{\epsilon_1 \cdot p_1}{\epsilon_2 \cdot p_2}$. O valor da razão R pode assumir dois valores, 1 ou 0,699¹¹, no caso do lado irradiado da fonte estar ou não voltado para o detetor, respectivamente. Obteve-se $R = 0,70(3)$, que é compatível com o valor de 0,699, isto é, aceita-se a hipótese de que o lado irradiado da fonte não estava voltado para o detetor.

A posição e dimensões da fonte são importantes, pois a curva de eficiência de pico do detetor supõem uma fonte aproximadamente pontual. A estabilidade da posição desejada é garantida pela montagem da fonte durante a irradiação. Deste modo, é necessário estimar uma dimensão máxima da fonte (da parte irradiada) tal que as respectivas correções necessárias sejam desprezíveis frente as incertezas obtidas no experimento. Em primeira apro-

¹¹As incertezas associadas aos valores 1 e 0,699 são muito pequenas quando comparadas a incerteza no valor de R .

ximação, a razão entre as eficiências de pico de uma fonte pontual centrada em relação ao eixo do detetor e outra fora é aproximadamente a razão entre os respectivos ângulos sólidos, figura 5.8 e [25]. Assim,

$$\frac{\epsilon_{(0,d)}}{\epsilon_{(r,d)}} \cong \frac{\Omega_{(0,d)}}{\Omega_{(r,d)}} \quad (5.1)$$

onde d é a distância entre o detetor e a fonte. Uma integração sobre a área de irradiação permite escrever o ângulo sólido equivalente, $\Omega_{fonte}(R_{irrad.})$, como

$$\Omega_{fonte}(R_{irrad.}) = \frac{2}{R_{irrad.}^2} \int_0^{R_{irrad.}} \Omega_{(r,d)} r dr \quad (5.2)$$

onde $R_{irrad.}$ é o raio do feixe. Deste modo, a razão de eficiência entre uma fonte pontual centrada e uma outra extensa, distribuída em uma área de raio $R_{irrad.}$, pode ser escrita como

$$\frac{\epsilon_{(0,d)}}{\epsilon_{fonte}} \cong \frac{\Omega_{(0,d)}}{\Omega_{fonte}} = \frac{\left[1 - \left(1 + \frac{R_D^2}{d^2} \right)^{-1/2} \right]}{\left[1 - \left(1 + \frac{R_D^2}{d^2} \right)^{-1/2} - \frac{3}{8} R_{irrad.}^2 \frac{R_D^2}{d^4} \left(1 + \frac{R_D^2}{d^2} \right)^{-5/2} - \dots \right]} \quad (5.3)$$

onde R_D é o raio do detetor. Aplicando esta expressão para geometria do presente experimento obteve-se a figura 5.9.

A figura 5.9 apresenta a relação entre $\frac{\epsilon_{(0,d)}}{\epsilon_{fonte}}$ e o raio de irradiação do feixe de prótons, e, em destaque, o valor de $\frac{\epsilon_{(0,d)}}{\epsilon_{fonte}}$ para uma diferença de eficiências de 0,5%. Da figura, para que a eficiência mude de 0,5% é necessário que o feixe incida sobre toda a extensão do alvo. Ainda assim, esta diferença na eficiência não seria significativa. Conseqüentemente, a correção da eficiência referente a extensão da fonte é irrelevante, uma vez que o diâmetro do feixe de prótons do ciclotron Cyclone 30 é de 10 mm.

Figura 5.8: A eficiência de detecção pressupõe uma fonte aproximadamente pontual. No presente experimento, o feixe de prótons irradia a superfície da chapa de Zn. É razoável afirmar que a região irradiada tem as dimensões do feixe. Quando uma fonte é extensa, correções podem ser necessárias. Uma estimativa da correção [25] utiliza a mudança equivalente do ângulo sólido, isto é, $\frac{\epsilon_{(0,d)}}{\epsilon_{fonte}} \cong \frac{\Omega_{(0,d)}}{\Omega_{fonte}}$.

Figura 5.9: Relação entre $\frac{\epsilon_{(0,d)}}{\epsilon_{fonte}}$, isto é, razão entre as eficiências de uma fonte pontual e de uma extensa na forma de um disco de raio $R_{irrad.}$, e o valor de $R_{irrad.}$. Da figura, para que a eficiência mude de 0,5% é necessário que o feixe incida sobre toda a extensão do alvo.

5.4 Aquisição de dados

A aquisição de dados foi composta de uma série de 20 aquisições consecutivas de uma hora cada (tempo “vivo”). Esta série de aquisições curtas tem por objetivo permitir o acompanhamento da qualidade das medições (p. ex. a variação do ganho com o tempo). Os arquivos de dados possuem 16 000 canais. Entretanto, a ferramenta de análise dos picos de energia, o programa IDEFIX [41], foi desenvolvida para arquivo de dados de 8000 canais. O programa SOMADOR converte os arquivos de dados de 16 000 para 8000 canais bem como soma todos os arquivos da mesma série de medidas.

As variações de ganho do sistema de aquisição foram acompanhadas através das posições e larguras dos picos de 1039 e 4806 keV ao longo do tempo ¹², as figuras 5.10, 5.11, 5.12 e 5.13 ilustram os resultados obtidos.

Figura 5.10: Posição dos centróides dos picos de 1039 keV ao longo do tempo. No eixo das ordenadas foi plotada a diferença entre as posições dos centróides dos picos e a média das posições destes centróides ao longo do tempo. Obs.: $\langle\text{Centróides}\rangle_{1039\text{ keV}} = 1459,366$ Canais.

O acompanhamento destas medidas ao longo do tempo serve aos seguintes propósitos: (1) verificar se as variações de ganho foram significativas, o que

¹²O acompanhamento das áreas não foi realizado, pois a meia-vida do ^{66}Ga é menor que o tempo de aquisição.

Figura 5.11: Valores dos FWHM dos picos de 1039 keV ao longo do tempo. No eixo das ordenadas foi plotada a diferença entre os valores de FWHM e a respectiva média destes valores ao longo do tempo. Obs.: $\langle \text{FWHM} \rangle_{1039 \text{ keV}} = 3,097 \text{ Canais}$.

Figura 5.12: Posições dos centróides dos picos de 4806 keV ao longo do tempo. Encontram-se marcado os espectros que foram somados de modo a compor o espectro final utilizado na calibração de energia. No eixo das ordenadas foi plotada a diferença entre as posições dos centróides e a média das posições do centróides ao longo do tempo. Obs.: $\langle \text{Centróides} \rangle_{4806 \text{ keV}} = 6746,641 \text{ Canais}$.

Figura 5.13: Valores dos FWHM dos picos de 4806 keV ao longo do tempo. No eixo das ordenadas foi plotada a diferença entre os valores de FWHM e a respectiva média destes valores ao longo do tempo. Obs.: $\langle \text{FWHM} \rangle_{4806 \text{ keV}} = 5,843$ Canais.

distorce o espectro e aumenta as larguras dos picos e (2) selecionar os espectros que atendam a um determinado critério, utilizando-os na calibração de eficiência.

Fica, entretanto, a questão de se estabelecer o critério de seleção dos espectros a serem utilizados na calibração de energia. Na referência [35] encontra-se o seguinte critério: a variação da posição do pico não deverá ser maior que $1/4$ ou $1/5$ da sua largura de meia altura (FWHM). Adotando-se este critério, a largura de pico no espectro de soma não será maior que $1,1 \cdot \text{FWHM}$ daquela de um espectro individual. No presente caso, todos os espectros foram aproveitados.

Durante a aquisição de dados, a taxa média de contagens foi de 46,3 cps durante as 20 horas de aquisição. Quanto ao tempo morto, o seu valor variou entre 7% durante a primeira hora de aquisição e 1,8% durante a última hora.

Foi realizada uma medida de 10 horas da radiação de fundo do experimento. Devido à blindagem, a taxa de contagem da radiação de fundo foi de 0,25 cps e o tempo morto de 0,03%.

Capítulo 6

Resultados

6.1 Espectro

O propósito deste capítulo é apresentar os resultados, ferramentas e métodos utilizados na análise dos dados obtidos e conclusões pertinentes¹.

Apresenta-se a seguir, figuras 6.1, 6.2, 6.3 e 6.4, o espectro da radiação emitida pela fonte produzida, deduzida da radiação de fundo². De modo a identificar as impurezas produzidas, utilizou-se, além da calibração de energia, o acompanhamento das razões entre as áreas no início da aquisição e ao longo do tempo de cada um dos picos de “impurezas”, identificados na figura 6.1. As principais impurezas identificadas foram o ^{67}Ga , ^{65}Zn e ^{61}Cu .

¹Os resultados referentes às calibrações de eficiência de pico e a razão entre a eficiência total e a de pico em altas energias serão apresentadas no capítulo seguinte, que versa sobre a modelagem do decaimento.

²Os picos que não puderam ser associados a quaisquer um dos principais radioisótopos esperados (^{66}Ga , ^{67}Ga , ^{65}Zn) encontram-se marcados pelo símbolo ‘?’.

Figura 6.1: Espectro da radiação observada. Faixa em canais: 1-1000. Em cada um dos principais picos observados, indica-se: (1) isótopo responsável pelo pico (2) energia (393,527 10 keV significa: 393,527(10) keV, por exemplo.) e (3) intensidade (4,56 % 24 significa: do decaimento em questão, 4,56(24)% dos decaimento acabam por emitir esta radiação γ). A indicação IDF refere-se a energia estimada pelo programa IDEFIX [41] dos picos que não puderam ser associados a quaisquer um dos principais radioisótopos esperados (^{66}Ga , ^{67}Ga , ^{65}Zn). Os símbolos $\bigcirc$ referem-se ao picos que foram destacados por algum motivo: somas, impurezas..., DE duplos escapes e SE simples escapes.

Figura 6.4: Espectro da radiação observada. Faixa em canais: 5000-7000. Notação conforme figura 6.1.

6.2 Ajuste dos picos

No ajuste dos picos foi utilizado o programa IDEFIX [41]. O programa, após o ajuste dos picos selecionados (inclusive em multipletos), permite a calibração do espectro: (1) em energia, a partir do cálculo da posição dos centróides dos picos e respectivos erros, e das correlações entre as energias (2) em largura, a partir do cálculo da largura a meia altura e respectiva incerteza³ e (3) em junção⁴ e degrau⁵, a partir do cálculo de junção e degrau e respectivos erros. Além das calibrações, o programa permite o cálculo e respectivo erro das áreas dos picos contidos na região do ajuste. Adicionalmente, o programa apresenta o chi-quadrado, χ^2 , reduzido do ajuste e a respectiva probabilidade de χ^2 ser excedido, $P(\chi^2)$ ⁶.

O programa disponibiliza algumas possibilidades de ajustes dos picos. Nos ajustes de todos os picos, ao longo de todo o trabalho, utilizou-se a seguinte composição de funções: (1) gaussiana (2) cauda exponencial à esquerda e (3) função degrau. Quanto ao ajuste do fundo, o programa disponibiliza um polinômio de grau especificado pelo usuário e, em todos os picos, o polinômio selecionado foi de primeiro grau. A figura 6.5 ilustra um exemplo de ajuste (pico de 1039 keV do decaimento do ⁶⁶Ga).

6.3 Calibrações

De modo a identificar os picos e calcular suas respectivas áreas foram realizadas as seguintes calibrações: (1) de largura a meia altura (FWHM) (2) do parâmetro de junção (3) de degrau/amplitude (4) da energia (5) da razão

³A largura é considerada constante no intervalo de ajuste

⁴O pico ajustado divide-se em duas partes, esquerda e à direita da junção. Na região à esquerda, tal que a coordenada em canais é menor que a diferença entre a posição do pico e o parâmetro de junção, ($x < X_{pico} - J$, onde J é o parâmetro de junção x o canal), o ajuste é através de uma exponencial; pelo contrário ($x > X_{pico} - J$), por meio de uma gaussiana [41].

⁵O degrau é composto de duas exponenciais que se encontram suavemente na posição do pico. O ajuste é realizado apenas sobre um parâmetro, que é a razão entre a altura do degrau e a amplitude do pico.

⁶Probabilidade de que, dadas as mesmas circunstâncias, o valor de χ^2 de um ajuste seja maior que o valor obtido.

Figura 6.5: Exemplo de ajuste de um pico (1039 keV do decaimento do ^{66}Ga) realizado pelo programa IDEFIX [41]. O fundo de escala foi escolhido de modo a tornar nítido o degrau sob o pico. Os pontos experimentais são apresentados por quadrados e o ajuste por uma linha contínua. É possível identificar a contribuição de cada uma das funções que perfazem o ajuste de um pico, em particular os termos de gaussiana e degrau.

entre eficiência total para de pico em baixas energias (6) da razão entre as áreas de picos de simples escape (SE) e de duplo (DE) com relação às áreas dos picos de absorção total e (7) razão entre as larguras de meia altura dos picos de picos de simples (SE) e duplo (DE) escape com relação àquelas dos picos de absorção total. Os resultados referentes à calibração em eficiência e a razão eficiência total para a de pico em altas energias são apresentados no capítulo que versa sobre a modelagem do decaimento.

6.3.1 Metodologia de redução de dados

Por exceção da calibração de eficiência de pico e da razão da eficiência total e de pico, a mesma metodologia de tratamento de dados foi adotada em todos ajustes. Na exposição do método, escolheu-se a calibração de energia; entretanto, tratamento semelhante aplica-se em outros casos.

Dado um conjunto de pares ordenados, $\{(E_i, x_i)\} \rightarrow \{\vec{E}, \vec{x}\}$, $i = 1, 2, 3 \dots n$ (n é o número de pares ordenados, isto é, de picos), onde x_i é a posição do centróide do pico de absorção total de energia E_i , a calibração consiste em determinar um conjunto de m parâmetros, $\{a_j\} \rightarrow \vec{A}$, tal que a função polinomial que melhor representa os dados, $E(x) = a_1 + a_2x + a_3x^2 + \dots + a_mx^{m-1}$, cuja representação matricial é

$$\begin{pmatrix} E_1 \\ E_2 \\ \vdots \\ E_n \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & x_1 & \dots & x_1^{m-1} \\ 1 & x_2 & \dots & x_2^{m-1} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 1 & x_n & \dots & x_n^{m-1} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} a_1 \\ a_2 \\ \vdots \\ a_n \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \epsilon_1 \\ \epsilon_2 \\ \vdots \\ \epsilon_n \end{pmatrix} \rightarrow \vec{E} = \tilde{X} \cdot \vec{A} + \vec{\epsilon} \quad (6.1)$$

onde $\vec{\epsilon}$ é o vetor de erros, conjunto esse que minimiza a variável Q ,

$$Q = (\vec{E} - \tilde{X} \cdot \vec{A})^t \cdot V^{-1} \cdot (\vec{E} - \tilde{X} \cdot \vec{A}) \quad (6.2)$$

cujas solução é dada por [42]:

$$\vec{A} = (\tilde{X}^t \cdot \tilde{V}^{-1} \cdot \tilde{X})^{-1} \cdot \tilde{X}^t \cdot \tilde{V}^{-1} \cdot \vec{E} \quad (6.3)$$

onde V é a matriz de covariâncias dos dados ($\tilde{V} = \langle \vec{\epsilon} \cdot \vec{\epsilon}^t \rangle$); entretanto, no presente caso, a matriz de covariâncias depende das incertezas dos centróides dos picos de absorção total, σ_{x_i} . Composto as incertezas, obtém-se $\tilde{V}$ a partir da matriz de covariâncias da energia $\tilde{V}^{cov.ener.}$ e das incertezas dos centróides dos picos de absorção total, σ_{x_i} , da seguinte maneira:

$$V_{i,j} \cong V_{i,j}^{cov.ener.} + \bar{a}_2^2 \cdot \sigma_{x_i}^2 \cdot \delta_{i,j} \quad (6.4)$$

onde $\delta_{i,j}$ é o delta de Kronecker e $\bar{a}_2$ é o valor ajustado do parâmetro do termo linear do ajuste. A equação 6.4 é a propagação de incertezas das posições dos picos de absorção total. Como $\bar{a}_2$ depende de $\tilde{V}$, a solução é iterativa. Utilizando como primeira estimativa de $\bar{a}_2$ o termo de dispersão da calibração em baixas energias, a convergência é rápida. A matriz de covariância de $\tilde{A}$, $\tilde{V}_A$, vale

$$\tilde{V}_A = \left(\tilde{X}^t \cdot \tilde{V}^{-1} \cdot \tilde{X} \right)^{-1} \quad (6.5)$$

O teste de qualidade do ajuste é realizado pelo chi-quadrado reduzido, χ^2 , cujo valor é dado por

$$\chi^2 = \left(\vec{E} - \tilde{X} \cdot \vec{A} \right)^t \cdot V^{-1} \cdot \left(\vec{E} - \tilde{X} \cdot \vec{A} \right) / (m - n) \quad (6.6)$$

Deste modo, de um conjunto de picos que se deseja estudar,

$$(x_{pico_1}, x_{pico_2}, \dots) \rightarrow \tilde{X}_{picos}$$

onde $\tilde{X}_{picos}$ é a matriz de planejamento dos picos de interesse, obtém-se as estimativas das respectivas energias, $(E_{pico_1}, E_{pico_2}, \dots) \rightarrow \vec{E}_{picos}$, por meio de

$$\vec{E}_{picos} = \tilde{X}_{picos} \cdot \vec{A} \quad (6.7)$$

onde a respectiva matriz de covariância das energias estimadas, $\tilde{V}_E^{picos}$, é dada por

$$\tilde{V}_E^{picos} = \tilde{X}_{picos} \cdot \tilde{V}_A \cdot \tilde{X}_{picos}^t + \bar{a}_2^2 \cdot \tilde{V}^{IDF} \rightarrow V_{i,j}^{IDF} = (\sigma_i^{IDF})^2 \cdot \delta_{i,j} \quad (6.8)$$

onde σ_i^{IDF} são as incertezas nas posições dos centróides de cada pico estudado⁷, conforme calculado pelo IDEFIX.

6.3.2 Energia

No presente trabalho, a calibração em energia deverá tornar possível identificar os picos presentes nos principais multipletos de interesse⁸. Na referência [25], define-se calibração precisa de energia aquela em que as incertezas são

⁷Para o caso em que os picos a serem estudados sejam independentes, isto é, não-covariantes (no qual o presente caso se enquadra)

⁸Os multipletos de interesse são aqueles em que pelo menos um dos componentes tem intensidade relativa maior que 1%.

menores que 10 eV em torno de 100 keV e 30 eV para energias menores que 1 MeV. Um procedimento de calibração para alta precisão demandaria pelo menos: (1) várias aquisições em diferentes ganhos e (2) utilização de diferentes detetores. Desta forma, eventuais erros sistemáticos seriam parcialmente cancelados. Este tipo de procedimento vai, no presente caso, na contra-mão de um processo prático de calibração de eficiência, pois a calibração de eficiência é mais fácil de se realizar com ganho fixo.

Felizmente, a identificação dos picos no espectro obtido não demanda tal nível de precisão. De fato, um procedimento usual de calibração é suficiente para obter precisões em torno de 300 eV em baixas energias e certamente menores que 1 keV nas altas, o que é suficiente para os propósitos deste trabalho. O procedimento adotado na calibração de energia envolveu: (1) calibração em largura (FWHM), junção e razão degrau para amplitude⁹ e (2) ajuste pelo método dos mínimos quadrados pelo método matricial, no qual utiliza-se a matriz de correlação de energia entre as radiações γ selecionadas para a calibração, [26].

Largura, junção e degrau/amplitude

Primeiramente, os picos foram ajustados utilizando todos os parâmetros livres. Na seleção dos picos, considerou-se importante que estes não pertençam a multipletos e que possuam probabilidade relativa de emissão maior que 1%. O critério referente a probabilidade relativa de emissão é idêntico a [3]. Ainda, existe o caso do pico de 833 keV que, por encontrar-se na borda Compton do de 1039 keV, não foi utilizado na calibração de degrau/amplitude. Entretanto, abriu-se exceção quando um dos picos pertencentes a um determinado multipletto possui área muito maior que de todos os outros (por exemplo, o multipletto em torno do pico de 2751 keV). Procedeu-se, assim, o ajuste dos picos selecionados. Obteve-se:

1. largura a meia altura com relação à posição do centróide dos picos de

⁹O IDEFIX mantém estes parâmetros fixos em todo o ajuste. Assim, quando do ajuste de um multipletto, no qual picos de absorção total, de simples escape (SE) e/ou de duplo (DE) estão presentes, os parâmetros resultantes do ajuste (largura, junção e degrau/amplitude) poderão ser equivocados.

absorção total em canais, por meio da expressão: $FWHM = \sqrt{a + bx + cx^2}$; Os coeficientes obtidos do ajuste valem: $a = -0,24(47)$ (estatisticamente equivalente a um valor nulo), $b = 0,0071(5)$, e $c = -2,0(7) \cdot 10^{-7}$. O chi-quadrado reduzido obtido do ajuste foi de $1,25^{10}$.

Figura 6.6: Calibração em largura a meia altura, FWHM, função da posição do centróide do respectivo pico de absorção total em canais. Do ajuste, $FWHM = \sqrt{a + bx + cx^2}$; onde os coeficientes obtidos valem: $a = -0,24(47)$, $b = 0,0071(5)$ e $c = -2,0(7) \cdot 10^{-7}$. O chi-quadrado reduzido do ajuste foi de $1,25$.

2. razão entre o parâmetro de junção da cauda exponencial à esquerda e da largura a meia altura com relação à energia, por meio da expressão: $\log(J/FWHM) = a + b \cdot \log(E/1039) + c \cdot \log^2(E/1039)$ (onde E é a energia em keV.), figura 6.7. Os coeficientes obtidos do ajuste valem: $a = -0,11(1)$, $b = -0,70(10)$ e $c = 0,05(17)$ (estatisticamente equivalente a um valor nulo). O chi-quadrado reduzido obtido do ajuste foi de $0,11$, figura 6.7. Do resultado obtido, percebe-se que o parâmetro de junção

¹⁰Quando o ajuste da largura a meia altura é feito com relação à energia, a, b e c relacionam-se, respectivamente, a $\rightarrow$ com o ruído eletrônico, b $\rightarrow$ flutuações estatísticas do processo de coleção de carga e fator de Fano, e c $\rightarrow$ as não-linearidades [43] (p. ex. má coleção de carga), figura 6.6.

Figura 6.7: Razão entre o parâmetro de junção e a largura a meia altura com relação à energia do respectivo pico de absorção total (J/FWHM). Do ajuste, $\log(J/FWHM) = a + b \cdot \log(E/1039) + c \cdot \log^2(E/1039)$. Do ajuste: $a=-0,11(1)$, $b=-0,70(10)$ e $c = 0,05(17)$. O chi-quadrado reduzido obtido do ajuste foi de 0,11.

Figura 6.8: Exemplo da proporção entre a parte esquerda, exponencial, e direita, gaussiana, para o pico de absorção total de 1039 keV. Nesta faixa de energia, nota-se (como era de se esperar) que a cauda exponencial ajusta o “extremo”, esquerdo do pico.

Figura 6.9: Exemplo da proporção entre a parte esquerda, exponencial, e direita, gaussiana, para o pico de absorção total de 4806 keV. Nesta faixa de energia, nota-se que a cauda exponencial forma uma “rampa”, até a posição do pico.

diminui com a energia, e conforme a junção torna-se menor, aumenta-se o tamanho da cauda exponencial à esquerda. De fato, a cauda exponencial em um pico de absorção total está relacionada com a coleção incompleta de carga no detetor. A coleção incompleta pode ser relacionada a algumas causas, entre elas, principalmente: “armadilhas”, escape de raios X, canais de superfície e escape de elétrons secundários. Logo, o aumento da cauda exponencial é coerente com o aumento da energia. As figuras 6.8 e 6.9, apresentam o ajuste de dois picos, um em menor (1039 keV) e outro em maior energia (4806 keV). Nota-se a nítida diferença da participação da cauda exponencial na composição do pico de absorção total.

3. razão degrau, D/Amp , para amplitude, Amp , com relação à energia, por meio da expressão: $D/\text{Amp} = a + b \cdot E + c \cdot E^2$ (onde E é a energia), figura 6.10. Os coeficientes obtidos do ajuste valem: $a=0,0014(42)$, $b=0,5(50) \cdot 10^{-7}$ e $c=-1,05(800) \cdot 10^{-10}$ (a , b e c estatisticamente equivalentes ao valor nulo). O chi-quadrado reduzido obtido

do ajuste foi de 1,55; destes coeficientes, é possível afirmar que a razão degrau/amplitude é estatisticamente equivalente à uma função constante, cujo valor (0,0014) é significativamente menor que a respectiva incerteza (0,0042), na faixa de energia estudada.

Figura 6.10: Calibração em degrau, D/Amp, função da energia do respectivo pico de absorção total. Do ajuste, obtém-se $D/Amp = a + b \cdot E + c \cdot E^2$ (onde E é a energia). Os coeficientes obtidos do ajuste valem: $a=0,0014(42)$, $b=0,5(50) \cdot 10^{-7}$ e $c=-1,05(800) \cdot 10^{-10}$. O chi-quadrado reduzido do ajuste foi de 1,55.

Procedimento de calibração de energia de um espectro simples

Uma vez calibrados os principais parâmetros de ajuste dos picos, procedeu-se a calibração de energia entre 1000 a 4800 keV, função das posições dos centróides, em canais, de cada pico selecionado, figura 6.11.

No ajuste, é necessário montar a matriz de covariâncias dos dados. A matriz de covariâncias das energias encontra-se em [26] e os valores das incertezas nas posições dos centróides dos picos de absorção total foram multiplicados pelo valor do chi-quadrado reduzido do respectivo ajuste disponibilizado pelo

IDEFIX ¹¹, caso seu valor fosse maior que 1; do contrário, o valor da incerteza é mantida.

Em ambos os casos estas incertezas são muito pequenas, entre 0,0021 e 0,009 keV para as incertezas em energias, e entre 0,008 e 0,085 canais para as da posição do centróide do pico de absorção total e a combinação de ambos efeitos é de, no máximo, 0,06 keV. Incertezas desta ordem resultam em um ajuste com valor muito alto de chi-quadrado reduzido, caso o ajuste seja realizado por um polinômio. Restam duas opções, ou as incertezas foram subestimadas, ou o ajuste dos dados por um polinômio não reflete os fenômenos envolvidos. Provavelmente, o problema não se encontra na subestimação das incertezas, pois as de energias foram consultadas em uma base de dados confiável e as das posições dos picos foram calculadas pelo IDEFIX e multiplicadas pela raiz do chi-quadrado reduzido¹² do ajuste do pico; entretanto, não se considerou, as não linearidades do sistema de aquisição.

As não-linearidades em um sistema de aquisição por aproximações sucessivas foi analisado em [44] por meio de um teste com um pulsador e uma fonte de ⁶⁰Co. Nesta referência, estimou-se que as não-linearidades apresentavam desvios da ordem de $\pm 0,01$ canais ao longo dos 500 canais do MCA utilizado¹³. Conseqüentemente, restam duas alternativas: (1) levantar a curva de calibração fina ou (2) introduzir um erro em canais de modo a dar conta dos erros sistemáticos introduzidos pelas aproximações sucessivas. A primeira alternativa é consistente com uma calibração de alta precisão em energia; então, adotou-se a segunda. De modo a obter um chi-quadrado reduzido próximo da unidade, foi introduzido um erro $\pm 0,01$ canais na calibração em energia [45].

¹¹Conforme discutido em [25], a aplicação do valor do chi-quadrado na correção de incertezas deve ser considerada cuidadosamente. Esta correção pode ser descartada quando, por exemplo, a mesma fonte é sempre medida. Aqui, pretende-se utilizar o ⁶⁶Ga na calibração de detectores que, provavelmente, medirão radiações γ provenientes de fontes distintas ou reações nucleares. Desta forma, as correções das incertezas pelos valores de chi-quadrado não foram descartadas. Nos mesmos moldes, este procedimento foi aplicado para todos os outros parâmetros calculados.

¹²Caso o chi-quadrado fosse maior que um.

¹³Estes desvios estão relacionados com características inerentes ao sistema de aproximações sucessivas e são causados por não-homogeneidades nos níveis de comparação do MCA.

Tabela 6.1: Transições do ^{66}Ga utilizadas na calibração em energia. As transições foram selecionadas de modo a cobrir toda a faixa de interesse.

Energias (keV)	
1039,220	1333,112
1508,158	2189,631
2422,525	2751,835
3228,800	3380,850
4085,853	4461,202
4806,007	

Resultado do ajuste de energia

Do ajuste, obteve-se $\text{Energia} = a + b \cdot x + c \cdot x^2$ (onde x é a posição do centróide do respectivo pico de absorção total). Os coeficientes obtidos do ajuste valem: $a=0,64(03)$ keV, $b=0,7125(2)$ keV/canal e $c=-1,6(4) \cdot 10^{-8}$ keV/canal². O χ^2 reduzido do ajuste foi de 1,45. Na calibração, os picos eram descartados caso: (1) estivessem em multipletos (caso pertença a um multipletto, deve ter intensidade muito maior que as dos outros componentes) (2) não tivessem intensidades relativas em torno de 1% ou maiores e (3) estivessem sob a borda Compton de uma transição muito intensa. A tabela 6.1 apresenta as transições utilizadas.

6.3.3 Calibração da razão entre área total para de pico em baixas energias

Em função da proximidade da fonte, a calibração da eficiência de pico exige o cálculo da eficiência total, pois esta é utilizada na correção por efeito soma uma vez que a quantidade de eventos removidos do pico de absorção total é proporcional a eficiência total da radiação coincidente. Primeiramente, realizou-se a calibração da razão entre a área total para a de pico em baixas energias (até 1332 keV), pois se dispõem de fonte monoenergéticas apenas nesta faixa de energia. A eficiência total foi calculada a partir da multiplicação da eficiência de pico pelo valor da razão entre as eficiências total para a de pico. Quanto à respectiva calibração em altas energias, utilizar-se-á

Figura 6.11: Calibração de energia, entre 1000 a 4800 keV, função da posição do centróide, em canais. Do ajuste, obteve-se $Energia = a + b \cdot x + c \cdot x^2$ (onde x é a posição do centróide do respectivo pico de absorção total). Os coeficientes obtidos do ajuste valem: $a=0,64(03)$ keV, $b=0,7125(2)$ keV/canal e $c=-1,6(4) \cdot 10^{-8}$ keV/canal². O chi-quadrado reduzido do ajuste foi de 1,45, utilizando-se a matriz de correlação de energias e admitindo-se erros sistemáticos, função das não-linearidades do sistema de aquisição, de 0,01 canal [45].

de outros métodos, seção 8.4.

Na determinação da razão entre as eficiências total e pico, utilizou-se as seguintes fontes monocromáticas: ^{54}Mn (834,85 keV) e ^{137}Cs (661,65 keV). O ^{60}Co , que emite apenas duas radiações γ em coincidência (1173,23 e 1332,5 keV de intensidades relativas 0,9985 e 0,9998, respectivamente) pode ser utilizado na calibração, modificando-se adequadamente a matriz de planejamento. Como ajustes deste tipo podem ser realizados por um polinômio de segundo grau [35] três fontes distintas são suficientes aos propósitos do trabalho.

Figura 6.12: O espectro do ^{137}Cs ilustra o efeito do discriminador inferior, que ignora quaisquer sinais menores que o ajustado, evitando a interferência de eventuais ruídos eletrônicos.

A razão entre as eficiências total e de pico é calculada por meio da razão entre a área total do espectro e a de pico¹⁴. As áreas dos picos são calculadas utilizando-se o IDEFIX; quanto às áreas totais do espectro, é preciso um procedimento mais elaborado, pois é necessário levar em conta a parte não observada do espectro.

O espectro medido ignora quaisquer sinais menores que o ajustado no discriminador inferior, evitando a interferência de eventuais ruídos eletrônicos, figura 6.12. Desta forma, a determinação da soma das contagens em todo o espectro é estimada a partir da extrapolação da soma de contagens nos canais propositalmente ignorados pelo sistema de aquisição de dados¹⁵. A figura 6.13 apresenta extrapolação da soma de contagens nos casos do ^{137}Cs e ^{60}Co .

Uma vez calculadas as áreas de interesse, é possível montar a matriz de planejamento entre a razão da eficiência total e a de pico função da energia,

¹⁴No caso da determinação da razão entre a eficiência total e pico de uma fonte de ^{60}Co , a soma das áreas dos picos.

¹⁵Apesar das figuras serem função do canal, a extrapolação não foi realizada em canais. O procedimento correto é a extrapolação das contagens até energia nula.

Figura 6.13: Extrapolação da soma de contagens nos canais ignorados pelo sistema de aquisição de dados, no caso das fontes de ^{137}Cs e ^{60}Co . Do ajuste, $\text{Soma} = a + b \cdot \text{canais}$, somente o parâmetro a , que quantifica o resultado da extrapolação, é de interesse.

por um polinômio do segundo grau. Assim,

$$R = \frac{\text{Área total}}{\text{Área de pico}} = a_1 + a_2 \cdot E + a_3 \cdot E^2 \quad (6.9)$$

onde R é a razão de interesse e E a energia dos respectivos picos de absorção total. Obtiveram-se as seguintes razões: $R_{^{137}\text{Cs}} = 3,85(31)$, $R_{^{54}\text{Mn}} = 4,30(4)$, e $R_{^{60}\text{Co}} = 5,61(3)$. Na montagem da matriz de planejamento, as linhas correspondentes às fontes monoenergéticas são triviais ($1 \ E_i \ E_i^2$); entretanto, para o ^{60}Co determina-se a linha desta matriz da seguinte maneira:

$$R_{^{60}\text{Co}} = \frac{\text{Área total}}{\text{Área de pico}} = a_1 + a_2 \cdot \frac{P_1 E_1 + P_2 E_2}{P_1 + P_2} + a_3 \cdot \frac{P_1 E_1^2 + P_2 E_2^2}{P_1 + P_2} \quad (6.10)$$

e, na matriz de planejamento

$$\left(1 \quad \frac{P_1 E_1 + P_2 E_2}{P_1 + P_2} \quad \frac{P_1 E_1^2 + P_2 E_2^2}{P_1 + P_2} \right)$$

onde os índices 1 e 2 designam as energias 1173 e 1332 keV, e P as áreas dos respectivos picos.

6.3.4 Razão entre as larguras de meia altura de picos de simples e duplo escape e dos picos de absorção total

Na faixa de energia de alguns MeV, a produção de pares começa a se tornar o mecanismo mais importante de interação da radiação γ . Neste processo, a energia da radiação é completamente convertida para o par formado e excesso de energia (com relação à massa de repouso do par) transforma-se em energia cinética. Ambos acabam por perder a respectiva energia cinética para o material com o qual interagem. O pósitron formado, termina por aniquilar-se no ambiente do detetor. A aniquilação deste pósitron resulta, então, em um par de fótons com aproximadamente 511 keV cada. Da conservação do momento, os fótons são emitidos em direções opostas. Como a probabilidade de interação da radiação γ com a matéria é relativamente baixa, os fótons de 511 keV poderão escapar à detecção.

Caso ambos os fótons escapem do ambiente de detecção, registra-se mais uma contagem no pico de duplo escape; caso escape apenas um deles, registra-se no de simples. Com o aumento da energia do fóton incidente, as larguras associadas dos picos de simples e duplo escape tenderão a aumentar¹⁶. As figuras 6.14 e 6.15 são o resultado desta investigação. Nelas foi graficado a razão entre as larguras a meia altura do pico de interesse (simples e duplo escapes) e do pico de absorção total, em função da energia do último. No espectro do ^{66}Ga , somente alguns picos de simples e duplo escape possuem intensidades significativas, não participam de multipletos ou não estão na borda Compton de algum outro. Na seleção destes picos foram considerados apenas os que atendem a ambos os critérios.

As larguras dos picos de simples e duplo escape aumentam com a ener-

¹⁶Por exemplo, com o aumento da energia do fóton incidente, aumenta a probabilidade de aniquilação em vôo do pósitron formado, e devido ao efeito Doppler, os picos de SE e DE podem então aumentar suas respectivas larguras.

Figura 6.14: Razão entre as larguras dos picos de simples escape do pico de absorção total, função da energia do último. Foram obtidos os seguintes resultados: $R_{FWHM_{SE}/FWHM_{AT}} = a + b \cdot E$, $a = 1,10(10)$ e $b = 4,8(32) \cdot 10^{-5}$; e o chi-quadrado reduzido do ajuste 1,4.

Figura 6.15: Razão entre as larguras dos picos de duplo escape e do pico de absorção total, função da energia do último. Foram obtidos os seguintes resultados: $R_{FWHM_{DE}/FWHM_{AT}} = a + b \cdot E$, $a = 0,25(14)$ e $b = 0,0003(1)$; e o chi-quadrado reduzido do ajuste 0,25.

gia. O espectro γ obtido apresenta poucos picos de simples e duplo escape completamente isolados e de intensidade significativa. Desta forma, o ajuste obtido é pobre, uma vez que possui poucos graus de liberdade. Foram obtidos os seguintes resultados: (1) simples escape, $R_{FWHM_{SE}/FWHM_{AT}} = a + b \cdot E$, $a = 1,10(10)$ e $b = 4,8(32) \cdot 10^{-5}$; e o chi-quadrado reduzido do ajuste 1,4 e (2) duplo escape, $R_{FWHM_{DE}/FWHM_{AT}} = a + b \cdot E$, $a = 0,25(14)$ e $b = 0,0003(1)$; e o chi-quadrado reduzido do ajuste 0,25¹⁷. O coeficiente linear do ajuste de simples escape, $4,8(32) \cdot 10^{-5}$, não pode ser considerado estatisticamente positivo a um nível de significância aceitável. Deste modo, não é possível afirmar com razoável segurança que as larguras dos picos de simples escape aumentam com relação as larguras dos respectivos picos de absorção total; o mesmo não se pode afirmar sobre os de duplo escape.

6.3.5 Razão entre as áreas dos picos de simples e duplo escape com relação às dos picos de absorção total

Nos moldes da seção anterior, realizou-se o cálculo da razão entre as áreas dos picos de simples e duplo escape com relação às dos picos de absorção total, figura 6.16.

Da mesma maneira que na seção anterior, o ajuste é pobre. Foram obtidos os seguintes resultados: (1) simples escape, $R_{Área_{SE}/Área_{AT}} = a + b \cdot E$, $a = -0,259(12)$ e $b = 1,54(6) \cdot 10^{-4}$; e o chi-quadrado reduzido do ajuste 1,13 (2) duplo escape, $R_{Área_{DE}/Área_{AT}} = a + b \cdot E$, $a = -0,260(50)$ e $b = 1,40(19) \cdot 10^{-4}$; e o chi-quadrado reduzido do ajuste 1,31. Mostrou-se que as razões $R_{Área_{SE}/Área_{AT}}$ e $R_{Área_{DE}/Área_{AT}}$ são dependentes da energia do respectivo pico de absorção total; entretanto, a razão $R_{DE/SE} = R_{Área_{DE}/Área_{AT}}/R_{Área_{SE}/Área_{AT}}$ é aproximadamente independente da energia [43]. Como $R_{Área_{SE}/Área_{AT}}$ é sistematicamente maior que $R_{Área_{DE}/Área_{AT}}$ na faixa de energia estudada, espera-se que a razão $R_{DE/SE}$, caso se mantenha independente da energia, seja um pouco menor que 1.

¹⁷Como o ajuste possui cinco pontos e dois parâmetros a ajustar, o número resultante de graus de liberdade é três e, então, a respectiva distribuição de χ^2 possui desvio padrão significativo.

Figura 6.16: Razões entre as áreas do pico de simples e duplo escape com relação às dos picos de absorção total. Foram obtidos os seguintes resultados: (1) simples escape, $R_{\text{Área SE} / \text{Área AT}} = a + b \cdot E$, $a = -0,259(12)$ e $b = 1,54(6) \cdot 10^{-4}$; e o chi-quadrado reduzido do ajuste 1,13 (2) duplo escape, $R_{\text{Área DE} / \text{Área AT}} = a + b \cdot E$, $a = -0,260(50)$ e $b = 1,40(19) \cdot 10^{-4}$; e o chi-quadrado reduzido do ajuste 1,31.

Mantendo-se o mesmo critério de seleção dos picos, torna-se difícil apresentar algum resultado, uma vez que seria necessário que o pico de absorção total, seus respectivos picos de simples e duplo escape atendam todos, simultaneamente, a estes critérios. Na construção da figura 6.17, os critérios de seleção dos picos foram relaxados, principalmente o requisito de não-participação em multipletos.

Da figura 6.17, os dados do ajuste permitem concluir que $R_{DE/SE}$ é constante ao longo da faixa de energia estudada, isto é, aceita-se a hipótese de que $R_{DE/SE}$ não variou significativamente ao longo da faixa de energia estudada, pois o chi-quadrado total, χ_{total}^2 , obtido foi de 5,05 menor que o crítico $\chi_{95\% \ 5GL}^2 = 11,07$ em um nível de 95% de significância. Ainda, o valor ajustado de $R_{DE/SE}$ foi de 0,73(02). No trabalho de [46] encontra-se

Figura 6.17: Razões entre os picos de duplo e simples escape, função da energia do respectivo pico de absorção total. O valor ajustado de $R_{DE/SE}$ foi de 0,73(2) e o chi-quadrado reduzido 1,01.

uma sistemática deste valor que, embora fracamente dependente da energia ao longo da faixa estudada¹⁸, é dependente do volume ativo do detector. A equação 6.11 apresenta a sistemática.

$$R_{DE/SE} = 36,285 \cdot V^{-0,7635} E^{-0,09659} \quad (6.11)$$

onde V é o volume ativo do detector em cm^3 e E a energia em MeV. Quando calculada para uma energia de 3 MeV (valor mediano na faixa de energia estudada) e um volume ativo de 162 cm^3 resulta $R_{DE/SE} = 0,67$. O valor obtido da sistemática diverge de 8% do valor medido¹⁹.

¹⁸Na equação 6.11, a fraca dependência na energia torna-se explícita no expoente de E .

¹⁹A comparação direta e objetiva com o valor disponível da sistemática não é possível uma vez que este não é acompanhado da respectiva incerteza.

Capítulo 7

Modelagem do decaimento

7.1 Introdução e a calibração simples de eficiência de pico

O propósito deste capítulo e do seguinte é aplicar o modelo simplificado do decaimento do ^{66}Ga na correção das áreas observadas dos picos de absorção total com relação aos efeitos secundários de detecção: efeitos somas, atenuações, *pile-up*, e tempo morto, e apresentar a respectiva calibração de eficiência de pico.

Provavelmente, a tarefa mais comum em espectroscopia γ seja a determinação das taxas de emissão de determinados fótons de interesse. De modo a realizar esta tarefa, é necessário o conhecimento da função de calibração de eficiência de pico do detector a ser utilizado, na geometria estabelecida pelo arranjo experimental, $\epsilon_{(E)}$. Por sua vez, a eficiência de pico é calibrada a partir de uma fonte de atividade e probabilidades de emissão conhecidas, sob as mesmas condições experimentais. Assim, para uma fonte de calibração de atividade Ω_f , com um conjunto de linhas de energia, $\{E_i\}$, e respectivas probabilidades de emissão, $\{p_i\}$, conhecidas, é possível determinar a eficiência de pico, na energia E_i , a partir da contagem do pico correspondente, N_i , e do tempo de aquisição, T , por meio de [25],

$$\epsilon_{(E_i)} = \frac{N_i}{T \cdot p_i \cdot \Omega_f} C_1 C_2 \dots \quad (7.1)$$

onde $\{C_i\}$ corresponde ao conjunto de correções da área do pico de interesse.

As principais correções são as seguintes: (1) efeito soma, quando da coincidência $\gamma - \gamma$ ou $\beta - \gamma$ ¹ (2) atenuações, sejam na fonte ou no detetor (3) *pile-up* e (4) tempo morto. A cada eficiência calculada, $\epsilon_{(E_i)}$, é possível estimar uma incerteza, σ_i^{ef} , que é determinada, principalmente, pela incerteza na contagem do pico de interesse e atividade da fonte de calibração².

Uma vez de posse do conjunto $\{(E_i, \epsilon_{(E_i)}, \sigma_i^{ef})\}$, $i = 1, 2, 3, \dots, n$ (n é o número de picos envolvidos no ajuste), o cálculo da função de calibração de eficiência de pico é obtida por meio do ajuste de funções do tipo [25],

$$\log \left(\frac{\epsilon(E)}{\epsilon_0} \right) = \sum_{j=1}^m a_j \left[\log \left(\frac{E}{E_0} \right) \right]^{j-1} \quad (7.2)$$

onde E_0 e ϵ_0 são a energia e eficiência de pico de referência (ambas arbitrariamente selecionadas em 1039,2 keV), respectivamente. Representando os dados do ajuste em notação matricial,

$$\vec{L} = \tilde{X}_{ef} \vec{A}_{ef} + \vec{e} \quad (7.3)$$

onde, $\vec{L} = \log \left(\frac{\epsilon}{\epsilon_0} \right)$ é o vetor dos logaritmos das razões das eficiências de pico e por sua vez $A_{efk} = a_k$, $k = 1, 2, \dots, m$, representa um componente do vetor de coeficientes a ser ajustado, $m - 1$ é o grau do polinômio de ajuste, $\vec{e}$ é o vetor de erro de L_i , e $\tilde{X}_{ef}$ é a matriz de planeamento dada por

¹Normalmente, as coincidências $\beta - \gamma$ são desprezíveis; entretanto, o valor Q do decaimento do ^{66}Ga não permite que se despreze previamente este tipo de coincidência.

²O tempo de aquisição e as probabilidades de emissão possuem incertezas significativamente menores.

$$\begin{pmatrix} L_1 \\ L_2 \\ \vdots \\ L_n \end{pmatrix} = \underbrace{\begin{pmatrix} 1 & \left[\log\left(\frac{E_1}{E_0}\right)\right] & \dots & \left[\log\left(\frac{E_1}{E_0}\right)\right]^{m-1} \\ 1 & \left[\log\left(\frac{E_2}{E_0}\right)\right] & \dots & \left[\log\left(\frac{E_2}{E_0}\right)\right]^{m-1} \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ 1 & \left[\log\left(\frac{E_n}{E_0}\right)\right] & \dots & \left[\log\left(\frac{E_n}{E_0}\right)\right]^{m-1} \end{pmatrix}}_{\tilde{X}_{ef}} \cdot \begin{pmatrix} a_1 \\ a_2 \\ \vdots \\ a_m \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} e_1 \\ e_2 \\ \vdots \\ e_n \end{pmatrix} \quad (7.4)$$

A matriz de covariância dos logaritmos das razões entre as eficiências de pico, $\tilde{V}^{ef}$, é, aproximadamente³, tal que

$$V_{i,j}^{ef} \cong \frac{\sigma_i^2}{\epsilon_{(E_i)}^2 \cdot \ln^2 10} \cdot \delta_{i,j} \quad (7.5)$$

onde $\delta_{i,j}$ é o delta de Kronecker e σ_i^2 obtém-se por meio da propagação de incertezas⁴ de ϵ_i/ϵ_0 . A estimativa de $\vec{A}_{ef}$ e a respectiva matriz de covariância é dada pelo método dos mínimos quadrados, item 6.3.1; entretanto, a correção por efeito soma depende do ajuste da função de calibração de eficiência de pico, o que desde já sugere a utilização de um processo iterativo. Ainda, a eficiência total, que é utilizada no efeito soma, não é conhecida ao longo da faixa de interesse.

7.2 A necessidade das correções dos efeitos secundários

Dependendo do arranjo experimental, os efeitos secundários de detecção podem modificar significativamente a área observada de um pico. Infelizmente, restrições inerentes à experiência podem impedir que o experimento transcorra livre de efeitos secundários significativos. A necessidade de

³Desprezando-se as covariâncias entre as probabilidades de emissão, que são desconhecidas, e as covariâncias entre as áreas dos picos de interesse, pois nenhum subconjunto dos picos envolvidos na calibração de eficiência de pico participam de um mesmo multipeto.

⁴ $\sigma_i^2 = (\sigma_i^{ef})^2 / \epsilon_0^2 + (\sigma_0^{ef})^2 \cdot \epsilon_{(E_i)}^2 / \epsilon_0^4$

correção por efeito soma entre radiações γ em coincidência ($\gamma - \gamma$) pode ser avaliada a partir de fontes calibradas nas quais este efeito seja conhecido, ou não exista; quanto às outras correções, a necessidade das respectivas correções deverá ser estimada.

7.3 Coincidência $\gamma - \gamma$

A existência de efeitos secundários de detecção, particularmente o efeito soma, é demonstrada claramente devido presença de picos de soma entre as radiações γ mais intensas e o pico de 511 keV no decaimento do ^{66}Ga , figuras 6.2 e 6.3. Ainda, na figura 7.1 apresenta-se o espectro de uma fonte ^{60}Co medida sob a mesma geometria do presente experimento; em destaque, nota-se o pico de soma entre os dois γ emitidos em coincidência no decaimento.

A figura 7.1 apesar de mostrar inequivocamente a presença do efeito do soma, por um lado; por outro, ilustra que o efeito não é, pelo menos aparentemente, dramático. Mesmo que a eficiência total do detetor, na mesma geometria, fosse conhecida para as principais radiações γ envolvidas no decaimento do ^{66}Ga , o procedimento de calibração apresentado não poderia ser aplicado diretamente, pois os valores de $C_1, C_2 \dots$ não seriam conhecidos de ante-mão, uma vez que dependem da própria eficiência a ser calibrada. A figura 7.2 apresenta a calibração da eficiência relativa⁵ de pico, $\epsilon_r(E) = \epsilon(E)/\epsilon_{(1039,2\text{ keV})}$, sem as respectivas correções apresentadas na equação 7.1.

Apesar do teste de qualidade do ajuste, chi-quadrado reduzido, ser próximo da unidade, não é possível inferir deste teste se existem, ou não, erros sistemáticos; entretanto, no caso do efeito soma, é possível identificar erros sistemáticos em curvas de calibração de eficiência de pico [25]. Basta comparar a calibração da eficiência de pico sem correções com o mesmo resultado obtido por meio de fontes mono-energéticas (que não demandam correção) ou de fontes de correção por efeito soma conhecida⁶. Na figura 7.2 encontram-

⁵Neste trabalho, eficiência “relativa” refere-se ao valor da eficiência absoluta normalizada pelo valor medido da eficiência absoluta em 1039,2 keV: 0,0181

⁶Este teste foi realizado admitindo-se, por hipótese, que as coincidências $\gamma - \gamma$ são os

Figura 7.1: Exemplo do efeito soma entre as radiações γ emitidas durante o decaimento de uma fonte calibrada de ^{60}Co sob as mesmas condições do presente experimento.

se, ainda, as eficiências relativas de pico para as fontes calibradas de ^{137}Cs e ^{60}Co ⁷, qualitativamente é possível notar que as correções necessárias serão provavelmente pequenas; quantitativamente, os valores das eficiências relativas de pico (sem correções), calculados por meio do ajuste nas energias destas mesmas fontes, permitem a comparação com os mesmos valores obtidos diretamente destas mesmas fontes, tabela 7.1.

De posse destes dois conjuntos de valores de eficiência de pico (1– ajustados do decaimento do ^{66}Ga e 2– calculados de ^{137}Cs e ^{60}Co), resta realizar um teste de hipótese com o propósito de rejeitar, ou não, a possibilidade de inexistência, ou insignificância, de erros sistemáticos. A não-rejeição desta

efeitos secundários mais relevantes; caso contrário, outros efeitos poderiam compensar o primeiro, o que tornaria o teste ineficaz.

⁷Correção por efeito soma para o ^{60}Co encontra-se no item 8.2.

Figura 7.2: Calibração de eficiência relativa de pico sem as respectivas correções apresentadas na equação 7.1. Definiu-se, arbitrariamente, $\epsilon_{r(1039,2 \text{ keV})} = 1$. O chi-quadrado reduzido obtido foi de 1,22. Ainda, em círculos abertos, os resultados das eficiências relativas de pico calculadas para fontes calibradas de ^{60}Co e ^{137}Cs , cujas correções por efeito soma são conhecidas com precisão adequada ou desnecessárias, respectivamente.

hipótese não significa necessariamente que as correções sejam desprezíveis, ou que não existam; significa, no entanto, que elas não serão significativas o suficiente, tornando a eficácia das correções questionável. A tabela 7.1 apresenta o resultado do teste de chi-quadrado da hipótese da inexistência de erros sistemáticos. O χ^2 das diferenças obtido foi de 8,6, enquanto o valor crítico do chi quadrado, $\chi^2_{3GL \ 95\%}$, a um nível de significância de 95%⁸ é de⁹ 7,8. Como o χ^2 destas diferenças é maior que o crítico, no nível de significância esperado, conclui-se que os erros observados diferem de modo

⁸Significa que existe uma probabilidade de 5% de a hipótese ter sido rejeitada quando deveria ser aceita como resultado de mero acaso.

⁹Conclusão semelhante seria obtida por meio de um teste *t-Student*.

Tabela 7.1: Verificação da inexistência, ou não, de erros sistemáticos por efeito soma entre o ajuste da eficiência relativa de pico sem correção e aquela obtida por meio de fontes com correções por efeito soma conhecidas ou nulas: 661,65 keV, ^{137}Cs ; 1173,23 keV, pico de menor energia do ^{60}Co ; e 1332,5 keV, segundo pico do ^{60}Co . O χ^2 das diferenças obtido foi de 8,6, enquanto o valor crítico do $\chi^2_{3GL\ 95\%}$ a um nível de significância de 95% é de 7,8. Rejeita-se, então, a hipótese de inexistência dos erros sistemáticos.

Verificação do erro sistemático por efeito soma			
energia (keV)	ajuste sem correção, fig. 7.2*	fontes de ^{137}Cs e ^{60}Co *	diferenças*
661,65	1,370(56)	1,420(50)	0,050(75)
1173,23	0,810(15)	0,859(14)	0,049(20)
1332,5	0,773(14)	0,805(15)	0,027(20)
χ^2 das diferenças: 8,6; valor crítico $\chi^2_{3GL\ 95\%} = 7,8^{**}$			

*Valores adimensionais.

**Três graus de liberdade pois a comparação é com o valor nulo e não com a média dos dados.

significativo dos esperados, e rejeita-se a hipótese de inexistência dos erros sistemáticos.

7.4 Efeito soma de raios X de fluorescência atômica com radiação γ

Os raios X de fluorescência atômica, resultantes de conversões internas ou capturas eletrônicas, emitidos no decaimento estudado possuem energias de no máximo 9,572 keV. A radiação X de maior intensidade é 11,2% (8,639 keV). Apesar da relativa alta intensidade, por um lado, a energia da radiação X emitida é tal que esta é significativamente absorvida no trajeto: fonte ($\cong 1,0$ mm de Zn) $\rightarrow$ ar (16 mm) $\rightarrow$ invólucro de Al (1,27 mm) $\rightarrow$ camada morta do detector de HPGe (0,70 mm). Assim, apenas na passagem pelo invólucro de Al do detetor, um raio X de 10 keV sofreria uma atenuação de aproximadamente 1/8000 na sua intensidade. Ainda, caso a coincidência X- γ fosse significativa, pelo menos alguns dos picos mais intensos do espectro

γ deveriam apresentar outros picos próximos a cada um deles, associados à soma com as respectivas radiações X em coincidência, separados em energia por não mais de 10 keV. O espectro observado, entretanto, não apresenta esta característica.

7.5 Coincidência $\beta^+ - \gamma$ e radiação de *bremsstrahlung*

Este tipo de interação acontece quando a radiação β^+ emitida pela fonte de interesse tem energia suficiente para atingir o volume ativo do detector; ou quando a mesma radiação, ao interagir com materiais exteriores ao volume ativo emite um fóton de *bremsstrahlung*, que eventualmente interage com o detector.

Apesar do arranjo experimental utilizado neste trabalho não permitir este tipo de coincidência, pois a face irradiada da chapa de Zn foi montada na direção contrária ao detector, é importante saber se este tipo de correção é relevante ou não. Caso não seja, ou caso a correção por atenuação na fonte seja mais relevante, o melhor arranjo experimental seria com a face irradiada voltada para o detector, eliminando quaisquer atenuações da radiação γ na chapa de Zn.

Como não é viável “desligar” a radiação β , o método de determinação da significância da correção por soma $\beta^+ - \gamma$ não pode ser realizada nos mesmos moldes do item 7.3; desta forma, a correção por este efeito será calculada por meio da estimativa da eficiência de detecção da radiação β .

Na faixa de energia de interesse deste trabalho, a probabilidade de interação da radiação β com o detector aumenta com a energia desta radiação, pois aumenta a capacidade da radiação β de atravessar os materiais externos à região ativa. O alto valor Q do decaimento do ^{66}Ga (5175 keV) leva a se especular sobre a significância da soma entre a radiação β , ou de seu *bremsstrahlung*, emitida durante o decaimento e a radiação γ . A correção referente a coincidência $\beta^+ - \gamma$ da área de um pico é dada por

$$A_\gamma = \frac{P_\gamma \Omega_{fonte} T^{\epsilon(E_\gamma)}}{(1 + \alpha_\gamma)} \cdot (1 - f_\beta \epsilon_\beta) \quad (7.6)$$

onde A_γ é a área do pico, isto é, eventos γ que deveriam ser detectados, não fosse a coincidência, subtraídos daqueles em coincidência $\beta^+ - \gamma$, f_β é probabilidade de emissão da radiação β , ϵ_β é a respectiva eficiência de detecção, e α_γ é o coeficiente de conversão interna. Da relação anterior, fica claro a importância da eficiência de detecção da radiação β^+ na relevância das coincidências $\beta^+ - \gamma$.

Na seleção de quais decaimentos são realmente relevantes, utilizou-se um modelo simples, unidimensional. O modelo unidimensional pressupõe incidência normal, sobreestimando a eficiência, uma vez que a radiação incidindo obliquamente atravessa mais material até atingir a região ativa do detector do que na incidência normal. Neste modelo simples, a estimativa da eficiência de detecção da radiação β^+ , ϵ_β , demanda o cálculo da eficiência geométrica, $\epsilon_{geom.}$, combinada com as probabilidades de um pósitron, P_β , ou de seu respectivo fóton de *bremsstrahlung*, alcançarem a região ativa do detector. Assim,

$$\epsilon_\beta = \epsilon_{geom.} (P_\beta + P_{bremss.}) \rightarrow \text{modelo de incidência normal} \quad (7.7)$$

onde $\epsilon_{geom.}$ é calculada por meio de

$$\epsilon_{geom.} = \left[1 - \left(1 + \frac{R_D^2}{d^2} \right)^{-1/2} \right] / 2 \quad (7.8)$$

onde $R_D = 59$ mm é o diâmetro da região ativa e $d = 20,27$ mm (16 mm $\rightarrow$ ar + 3 mm $\rightarrow$ invólucro-cristal + 1,27 mm $\rightarrow$ invólucro de Al) a distância da fonte à face mais próxima do cristal de Ge, resulta em uma eficiência geométrica de 0,34.

Resta determinar $P_\beta + P_{bremss.}$ para os decaimentos relevantes. A seleção das radiações β^+ relevantes em uma eventual necessidade de correção por soma na coincidência $\beta^+ - \gamma$ deve atender os seguintes critérios: (1) a energia da radiação emitida deverá ser suficiente para atingir a região ativa do detector

(2) as intensidades deverão ser relevantes e (3) deverão estar em coincidência com os raios γ utilizados na calibração de eficiência¹⁰. A radiação de 511 keV, emitida na aniquilação da radiação β^+ , é levada em conta na coincidência $\gamma - \gamma$, através da introdução dos níveis virtuais, ver item 3.5.

A tabela 3.1 apresentou as radiações β^+ do decaimento de interesse. Destas, somente as radiações de 1781, 924, 772, 721, 362 atendem aos requisitos 2 e 3 acima. Então, estima-se a energia limiar de detecção para, dentre os decaimentos selecionados, descartar aqueles cuja radiação não alcança o detetor. A energia da radiação β , com incidência normal, ao longo do arranjo experimental, $E_\beta(x)$, é calculada por meio de $E_\beta(x) = E_{\beta \max} - \mu(E_{\beta \max}, x)$, onde $\mu(E_{\beta \max}, x)$ é energia perdida. A energia perdida foi calculada numericamente por meio da integração do poder de frenagem¹¹ ao longo do modelo unidimensional representado na figura 7.3. Desta forma,

$$\mu(E_{\beta \max}, x) = - \int_{E_{\beta \max}}^{E_{\beta \max} - \mu(E_{\beta \max}, x)} \left(\frac{dE}{dx} \right)_{\beta + \text{bremss}} dx \quad (7.9)$$

onde o poder de frenagem, $\frac{1}{\rho} \left(\frac{dE}{dx} \right)_{\beta + \text{bremss}}$, foi calculado segundo [49], cujos resultados encontram-se na figura 7.4.

Como resultado, a figura 7.5 apresenta a relação entre a energia da radiação β^+ ao alcançar a região ativa de detecção, $E_{\beta \text{ final}}$, em função da energia originalmente apresentada no esquema de níveis [49], $E_{\beta \max}$, no modelo de incidência normal. Somente o decaimento de 1781 keV apresentou $P_\beta \neq 0$, isto é, dos pósitrons emitidos pelos decaimentos relevantes, somente o de energia 1781 keV tem energia suficiente para alcançar a região ativa do detetor. A energia limiar de detecção da radiação β^+ foi de 1040 keV e de 530 keV para a radiação de frenagem. As radiações de frenagem dos decaimentos de 1781, 924, 772 e 721 keV podem alcançar a região ativa do detetor, segundo este modelo.

¹⁰Supõem-se que mesmo no pior caso a correção deverá ser pequena. Caso contrário, o critério deverá ser modificado e incluir radiações menos intensas.

¹¹A diferença do poder de frenagem entre pósitrons e elétrons não é importante frente à outras aproximações utilizadas. De fato, por exemplo, a diferença percentual do poder de frenagem de colisão entre pósitrons e elétrons no Al em torno de 1 e 2 MeV é de 2,9 e 2,2 % [47], respectivamente. Quanto às diferenças por emissão de *bremsstrahlung*, o Al na mesma faixa de energia, apresenta diferenças da ordem de 5% [48].

Modelo simplificado de estimativa da interação da radiação β com o arranjo experimental.

Figura 7.3: Modelo de incidência normal, completamente definido pela coordenada x , utilizado no cálculo do poder de frenagem, $\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\beta+bremss}$, do arranjo experimental sobre a radiação β^+ .

Figura 7.4: Poder de frenagem, $\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\beta+bremss}$, dos materiais do arranjo experimental sobre a radiação β [49].

A determinação do espectro da radiação de frenagem envolve cálculos complexos. Em [35] todas as fontes estudadas não apresentaram coincidências significativas com a radiação de *bremsstrahlung*; entretanto, as energias en-

Figura 7.5: Estimativa da energia depositada no detector por um decaimento β após atravessar por todo arranjo experimental até o volume ativo do detector, função da energia do decaimento, no modelo de incidência normal. Em destaque, as energias dos decaimentos de interesse e o limite inferior de produção da radiação de frenagem na camada morta do detector. Somente o decaimento de 1781 keV apresentou $P_\beta \neq 0$.

volvidas nos decaimentos eram menores. Por outro lado, pode-se apresentar alguns argumentos qualitativos para se justificar a não-significância da radiação de *bremsstrahlung*.

Segundo [49] um elétron¹² de 620 MeV¹³ que foi completamente parado no Ge perde 2% de sua energia na emissão de radiação de frenagem. Deste modo, a probabilidade de emissão por decaimento de um fóton com energia tal que a sua respectiva eficiência de detecção não seja desprezível é pequena, pois: (1) o espectro da radiação β não privilegia a região de alta energia e, quanto mais baixa a energia da radiação β menor é a respectiva fração da energia de frenagem (2) os fótons que terão maior probabilidade de detecção são os emitidos exatamente na camada morta de Ge (isto é, decaimentos com energia maior que 530 keV e menor que 1040 keV - aproximadamente

¹²Supõem-se que o mesmo pode ser aproximadamente inferido para o pósitron.

¹³Valor da energia da radiação de 1040 keV ao alcançar a camada morta de Ge.

metade dos decaimentos de 1781 keV), onde a radiação β tem a sua energia diminuída pelo invólucro de Al e (3) o espectro de fótons emitidos privilegia os de baixa energia, o que aumenta a absorção fora da camada ativa.

Exemplificando, na radiação β de energia de 1040 keV¹⁴, os pósitrons alcançam a camada morta de Ge com aproximadamente 620 keV, sendo parados completamente. Da energia perdida, 2% perdem-se como radiação de frenagem [49]. Adotando-se o espectro de *bremsstrahlung* [50] da radiação β de energia de 500 keV no Ge como se fosse o da radiação total emitida, figura 7.6, é possível estimar que são detectados aproximadamente¹⁵ 0,01 fótons por cada 100 decaimentos de valor Q de 1040 keV¹⁶. Assim, pelos motivos acima, despreza-se a contribuição da radiação de *bremsstrahlung*, na coincidência $\beta - \gamma$.

Uma vez selecionada a radiação de 1781 keV, foi adotado o modelo da figura 7.7 na estimativa de ϵ_β . Este modelo integra diferentemente o poder de frenagem do arranjo experimental sobre radiação β^+ entre as distintas trajetórias possíveis entre a fonte e o detector.

No modelo de incidência normal, o valor da razão entre a integração de todo o espectro β e a integração para energias acima da limiar é aproximadamente 0,254; entretanto, este modelo sobreestima P_β . O cálculo de P_β , é realizado por meio (1) da razão entre a integração do espectro β acima da energia limiar e a integração do espectro total, para cada uma das trajetórias possíveis (2) da reflexão nos diversos materiais [22, 51] que é suposta independente da trajetória em questão e (3) probabilidade de aniquilação em vôo [17]. Então, a eficiência de detecção é estimada da mesma maneira que no

¹⁴Esse decaimento é hipotético, foi imaginado para sobreestimar a contribuição da coincidência $\gamma - brems.$, isto é, trata-se da radiação β que possui a maior possibilidade de emitir *bremsstrahlung*, na camada morta do detector. A radiação β com uma energia maior que 1040 keV passa a ser contabilizada em P_β .

¹⁵O número de fótons emitidos por cada 100 decaimentos com exatamente 1040 keV é aproximadamente 0,2; por outro lado, em 530 keV o número é nulo. Uma estimativa grosseira da média é 0,1. Entre todos os β do espectro de 1040 keV, aqueles entre 530 e 1040 keV são 35% do total, e uma vez que a eficiência geométrica é 0,34, chega-se a 0,011 (sem contar com aqueles que são absorvidos na camada morta).

¹⁶Provavelmente, o decaimento mais importante no referente às coincidências $\gamma - brems.$ é o de 924 keV, para o qual conclusões semelhantes são aplicáveis. Ainda, 924 keV encontra-se na faixa de energia estudada por [35], que se estende até 1424 keV, e despreza a contribuição da coincidência $\gamma - brems.$.

Figura 7.6: Espectro de *bremsstrahlung* emitido pela radiação β de 500 keV no Ge. No eixo vertical, o número de fótons emitidos por unidade de energia (keV) quando a radiação de 1040 keV perde aproximadamente 2% dos 620 keV referentes à energia perdida na camada morta de Ge, por radiação de frenagem.

Figura 7.7: Modelo utilizado na estimativa de ϵ_β . Este modelo é completamente definido pelas coordenadas: x distância partícula-fonte e ângulo com relação à incidência normal, ϕ . Neste modelo, há distinção na integração do poder de frenagem entre as diversas direções possíveis de incidência da radiação.

modelo anterior supondo, todavia, $P_\beta(\phi)$ depende da trajetória em questão, simplificada especificada por ϕ ou r . Assim,

$$\epsilon_\beta = (1 - R_{refl.}) (1 - P_{aniq}) \int_0^{R_D} \frac{r}{2d^2} \left(1 + \left[\frac{r}{d}\right]^2\right)^{-\frac{3}{2}} P_\beta(r) dr \quad (7.10)$$

onde $R_{refl.}$ diz respeito ao *backscattering* total do arranjo experimental (Al + Ge), e P_{aniq} é a probabilidade de aniquilação em vôo. Caso $P_\beta(r)$ seja suposto independente de r , ou ϕ , então a equação 7.10 se reduz a 7.7. No que diz respeito a razão entre a integração do espectro β acima da energia limiar e a integração do espectro total, utilizou-se espectros “estatísticos”, item 3.3. A figura 7.8 apresenta o espectro β^+ calculado para o decaimento de 1781 keV.

Quanto à reflexão nos diversos materiais presentes no arranjo experimental, a espessura de saturação de reflexão (*backscattering*) é de 0,1-0,25 g/cm² para energias de incidência em torno de 0,5-1,0 MeV; então, no Al, a espessura de saturação de *backscattering*, é, no máximo, aproximadamente 0,9 mm e o respectivo coeficiente de reflexão aproximadamente 0,08¹⁷ [51]. Raciocínio semelhante aplica-se também a camada morta de Ge, levando a um coeficiente de reflexão de aproximadamente 0,19. Os coeficientes de reflexão foram considerados aproximadamente constantes com relação à energia de incidência, dado a variação lenta do seu valor ao longo da faixa de energia de interesse. Ainda, foi suposta desprezível a capacidade de *backscattering* do ar.

A aniquilação em vôo é, também, aproximadamente constante na faixa de energia de interesse, com o seu valor em torno de 4% [17]. Desta forma, o valor encontrado de ϵ_β para a radiação de 1781 keV foi de 0,015.

¹⁷Levando em conta a razão entre os coeficientes de *backscattering*, dos elétrons e pósitrons de 1,3, [22].

Figura 7.8: Espectro de pósitrons emitidos, $\frac{2\pi^3}{g^2} N(W) \cdot dW$ (onde g é a constante de acoplamento da interação fraca), no decaimento β^+ de 1781 keV. No eixo horizontal encontra-se a energia total, W , em unidades de m_0c^2 , $W = (p^2 + 1)^{1/2}$, onde p é o momento do pósitron em unidades de m_0c . Em destaque, a energia limiar de detecção da radiação β , $W_{limiar} = 1,040/0,511 + 1 \cong 3,04$ em unidades de m_0c^2 ($W_0 = 1,781/0,511 + 1 \cong 4,49$). O valor da razão entre a integração de todo o espectro β e a integração para energias acima da limiar é aproximadamente 0,254.

7.6 Coincidência *bremsstrahlung* interno - γ

As alimentações mais intensas no decaimento de interesse acontecem por meio de captura eletrônica. Em particular, as capturas eletrônicas mais intensas alimentam estados que posteriormente decairão emitindo radiações γ de alta energia. A captura eletrônica é seguida, dentre outras, da emissão da radiação de *bremsstrahlung* interno, item 3.2.2. Fica a questão de responder se esta radiação é relevante, ou não, na estimativa do efeito soma.

De fato, este efeito não foi considerado, pois este tipo de radiação, na faixa de energia de interesse ($\cong 1500$ keV, onde a captura eletrônica é com-

petitiva), costuma a produzir $\cong 10^{-5}$ fótons por desintegração com energia média abaixo de 100 keV¹⁸ [22]. Por outro lado, os decaimentos por captura eletrônica produzem *bremsstrahlung* interno na proporção de W_0^2 , assim é de se esperar que estes decaimentos, que alimentam estados que posteriormente decairão emitindo radiações γ de baixa energia (e captura eletrônica de alta energia), possam emitir proporcionalmente mais fótons; entretanto, estes decaimentos são muito pouco competitivos nesta faixa de energia ($\cong 3000$ keV), item 3.2.2. Assim, pelas razões expostas desconsiderou-se este tipo de coincidência. Resumindo, quando a captura eletrônica é intensa, sua energia é relativamente baixa; por outro lado, quando a energia é alta, o decaimento não é competitivo.

7.7 Significância da coincidência $\beta - \gamma$

Resta, então, investigar se a eficiência e intensidade da única alimentação β^+ é significativa para determinação da curva de eficiência relativa de pico. O resultado deste estudo é determinante na recomendação de qual lado da chapa irradiada de Zn deve-se virar para o detetor, ou até mesmo se este tipo de preocupação é desnecessária, ou não.

A radiação β^+ de 1781 keV pode estar em coincidência com as radiações γ de 1333, 833 e 1039 keV; entretanto, a fração de intensidade da radiação γ de 833 keV alimentada através de 1781 keV β^+ é desprezível¹⁹.

Na figura 7.9, apresenta-se a diferença entre as eficiências relativas de pico calculadas com e sem correção por coincidências $\beta - \gamma$. Não é possível concluir que as eficiências relativas de pico, calculadas com e sem correção por coincidências $\beta - \gamma$, não diferem a um nível de significância 95%, pois o χ_{total}^2 encontrado de 23,4 é maior que o valor crítico²⁰ de $\chi_{5\% 14GL}^2 = 6,6$. Colocando de outra forma, não é possível afirmar as eficiências são iguais. Ainda, o valor encontrado de χ_{total}^2 é aproximadamente igual ao valor crítico

¹⁸No, ⁵⁵Fe, por exemplo (Q=1,006 MeV), a produção é de $\cong 3 \cdot 10^{-5}$ por desintegração e a energia média é de 70 keV.

¹⁹Acontecendo uma transição a cada 245 alimentações de 1781 keV, aproximadamente.

²⁰O número de graus de liberdade utilizado é 14, pois não se considerou a eficiência relativa em 1039,2 keV.

de $\chi_{95\% \ 14GL}^2 = 23,7$ o que praticamente confirma que os dois resultados são diferentes, a um nível de significância 95%. Apesar do valor obtido de χ_{total}^2 , o valor da maioria das eficiências calculadas não são significativamente alteradas pela correção $\beta - \gamma$, por exceção da transição de 1333 keV, figura 7.9

Figura 7.9: Diferença entre as eficiências relativas de pico com e sem correção por coincidências $\beta - \gamma$. Não é possível concluir que as eficiências relativas de pico, calculadas com e sem correção por coincidências $\beta - \gamma$, são iguais a um nível de significância 5%, pois o χ_{total}^2 encontrado de 23,4 é maior que o valor crítico de $\chi_{5\% \ 14GL}^2 = 6,6$.

7.8 Correlação angular

As correlações angulares entre as radiações γ em cascata podem ser importantes nas correções por efeito soma. Pelo menos em princípio, todo o termo de correção por efeito soma deveria ser multiplicado por um coeficiente de correlação angular médio, $\overline{W}_{ij,kl}(0^\circ)$ (onde i, j, k, e l são os níveis entre os quais ocorrem as transições). Entretanto, por apenas uma exceção (a transição em cascata entre as radiações de 1333 e 1039 keV: $0^+ \rightarrow 2^+ \rightarrow 0^+$, ambas do

tipo $E2$), desconsiderou-se este efeito pelas seguintes razões. Primeiramente, os termos de correlações angulares variam contrariamente com relação aos termos de correções por efeito soma, isto é, quanto menor a distância fonte-detetor, maiores são as correções por efeito soma e menores as por correlações angulares, e vice-versa; segundo, as correções por correlações angulares tendem a se cancelar em esquemas de decaimento complicados, por exceção de decaimentos com alta correlação angular. De fato, este é o caso do ramo de 1333 e 1039 keV que, além da alta correlação angular, envolve radiações de intensidades não-desprezíveis. Ainda, justifica-se a desconsideração das correlações $\beta - \gamma$, utilizando-se argumentos semelhantes.

7.8.1 Correlação direcional γ - γ

No que se segue, apresenta-se a determinação de $\overline{W}_{ij,kl}(0^\circ)$, para a cascata de 1333 e 1039 keV [22]. Uma cascata genérica γ - γ tipo $i \rightarrow j = k \rightarrow l$ na qual ambas as radiações são de multipolaridades puras e de ordem L_1 e L_2 , respectivamente, será denominada de $I_a(L_1)I_b(L_2)I_c$, onde I atende pelo momento angular total do estado, figura 7.10.

Figura 7.10: Esquema genérico de correlação γ - γ tipo $i \rightarrow j = k \rightarrow l$, onde $I_a(L_1)I_b(L_2)I_c$ são os estados e multipolaridades das transições envolvidas.

Então, é possível escrever para a correlação angular [22], $W(\theta)$,

$$W(\theta) = 1 + \sum_{i=2,4,\dots,k_{max}} A_{ii} P_i(\cos\theta) \quad (7.11)$$

onde A_{ii} são os coeficientes de correlação angular, $P_i(\cos\theta)$ são os polinômios de Legendre, e $k_{max} = \min(2I_b, 2L_1, 2L_2)$. Os valores de A_{ii} são calculados por meio de

$$A_{ii} = F_i(L_1, I_a, I_b) \cdot F_i(L_2, I_c, I_b) \quad (7.12)$$

onde os valores de F_i encontram-se tabelados, $F_2(2, 0, 2) = -0,5976$ e $F_4(2, 0, 2) = -1,069$. Entretanto, a geometria do problema impõe uma atenuação à correlação esperada, isto é, as dimensões do detetor funcionam como uma média experimental da correlação esperada teoricamente. Levando em conta esta atenuação, os valores da correlação, $W(\theta)$, e os coeficientes, A_{ii} , modificam-se respectivamente por $\overline{W}(\theta)$ e A_{ii}^* , da seguinte maneira:

$$\overline{W}(\theta) = 1 + \sum_{i=2,4,k_{max}} A_{ii}^* P_i(\cos\theta) \quad (7.13)$$

$$A_{ii}^* = F_i(L_1, I_a, I_b) \cdot F_i(L_2, I_c, I_b) \cdot Q_i^2 \quad (7.14)$$

Os coeficientes de atenuação geométrica, Q_i , são calculados conforme o método apresentado em [52] e ilustrado na figura 7.11.

$$Q_i = \frac{\int_0^{\phi_{max}} \epsilon_{(\phi)} \sin\phi P_{(cos\phi)} d\phi}{\int_0^{\phi_{max}} \epsilon_{(\phi)} \sin\phi d\phi} \quad (7.15)$$

onde $\epsilon_{(\phi)}$, suposta constante²¹, é a dependência da eficiência com o ângulo de incidência da radiação. Na figura 7.11, o valor de $\delta_{(E_\gamma)}$ representa a distância efetiva onde, aproximadamente, ocorre a detecção da radiação. O valor médio de $\delta_{(E_\gamma)}$ para o detetor estudado foi estimado em 34 ± 5 mm [35].

Obteve-se Q_2 e Q_4 iguais a 0,57 e 0,03 respectivamente. Conseqüentemente, foi possível construir a figura 7.12, que representa a correlação angu-

²¹Hipótese adotada em [22] na execução de cálculos aproximados.

Figura 7.11: Geometria utilizada na determinação dos valores de Q_i , [35]. O valor de $\delta_{(E_\gamma)}$ representa a distância efetiva onde, aproximadamente, ocorre a detecção da radiação. No presente experimento, $d = 20,27\text{mm}$, $\delta_{(E_\gamma)} \cong 34\text{mm}$, e $\phi_{max} \cong 47^\circ$ [35].

lar média, $\overline{W}(\theta)$, para a transição em cascada entre as radiações de 1333 e 1039 keV. Em destaque, o valor de interesse $\overline{W}(0^\circ) = 1,11$ e o mesmo valor sem a devida correção angular por atenuação geométrica da correlação entre as radiações de interesse, $W(0^\circ) = 2,5$. Conseqüentemente, mesmo no pior caso, a correção por efeito soma é alterada em aproximadamente 11% devido aos efeitos de correlação angular.

7.8.2 Correlação direcional β - γ

Um dos decaimentos β possui energia e intensidade suficientemente relevantes para a sua consideração no efeito soma. Entretanto, desconsiderou-se a correlação direcional β - γ na quantificação deste efeito, pois em um experimento de correlação (ou na detecção em coincidência em um mesmo detetor) o que se mede é a correlação angular média entre o elétron e a radiação γ em coincidência, levando em conta todas as direções do neutrino e todos os estados de spin do neutrino e elétron, além da atenuação geométrica do detetor. A consideração destes efeitos torna a contribuição da correlação angular desprezível nas coincidências β - γ .

Figura 7.12: Correlação angular, com e sem atenuação geométrica, para a cascata entre as radiações de 1333 e 1039 keV ($0^+ \rightarrow 2^+ \rightarrow 0^+$, ambas do tipo $E2$, caso de maior correlação angular entre as radiações mais intensas e em coincidência no decaimento de interesse). Em destaque, o valor da correlação angular para o ângulo de correlação de 0° com e sem atenuação geométrica, $\bar{W}(0^\circ)=1,11$ e $W(0^\circ) = 2,5$, respectivamente.

7.9 Correção por empilhamento e tempo morto

A perda de contagens de eventos por tempo morto e o empilhamento são efeitos indesejáveis de detecção que podem alterar as contagens dos picos de absorção total. A magnitude destes efeitos aumenta com a taxa de contagens; porém, não depende da geometria do experimento ou esquema de decaimento.

O sistema de aquisição utilizado foi operado no modo “tempo vivo” de modo que as correções por tempo morto são desnecessárias; entretanto, não se pode dizer o mesmo do empilhamento. O empilhamento é o resultado da detecção simultânea de duas radiações γ provenientes dos decaimentos de núcleos distintos. Assim, caso este efeito seja significativo, as radiações envolvidas no decaimento podem não ser contadas corretamente, pois dois eventos podem se sobrepor ou, ainda, um evento pode ser contado indevidamente. O empilhamento depende da taxa de contagem e do tempo de processamento de cada evento, representado pelo *shapping time*. Apesar do

shapping time alto ($10\mu s$), a taxa de contagem do experimento foi baixa.

Os efeitos de empilhamento são atenuados pela presença de um mecanismo de rejeição ao empilhamento (*pile-up rejection*) no sistema de aquisição de dados. Entretanto, a rejeição ao empilhamento possui suas limitações; por exemplo, o sistema de rejeição ao empilhamento é incapaz de distinguir eventos cuja separação temporal seja da ordem de tempo de subida de um pulso. De forma a avaliar a relevância do empilhamento no presente experimento, utilizou-se uma variante do método do gerador de pulsos [53] tomando uma fonte de ^{60}Co , fixa, no papel do gerador de pulsos. A variação da contagem total foi realizada por meio da variação do posicionamento de uma fonte de ^{207}Bi , figura 7.13.

Figura 7.13: Arranjo experimental destinado a avaliar a relevância do empilhamento nas condições do presente experimento. Uma fonte de ^{60}Co permaneceu fixa durante todo o procedimento, enquanto uma fonte ^{207}Bi teve sua posição com relação ao detetor variada com o objetivo de mudar a contagem total em cada aquisição.

Para cada uma das posições da fonte de ^{207}Bi , foram calculadas as áreas de cada um dos dois picos do ^{60}Co e a área total do espectro. De posse destas áreas e do tempo (vivo) de contagem, obteve-se as respectivas taxas de contagens para cada uma das posições da fonte de ^{207}Bi . O resultado encontra-se na figura 7.14. Da figura, fica claro que a taxa de contagem total não influenciou significativamente naquelas de cada um dos picos de

absorção total da fonte de ^{60}Co , dentro da faixa de taxa de contagens total utilizada neste experimento. Isto é, aceita-se a hipótese de que não houve variação significativa nos valores das contagens dos referidos picos de absorção total, pois o χ^2_{total} encontrado de 3,20 é bem menor que o valor crítico de $\chi^2_{95\% \ 20GL} = 10,85$.

Figura 7.14: Contagem em cada um dos picos de uma fonte fixa de ^{60}Co função da taxa total de contagens. A taxa de contagem total não influenciou significativamente naquelas de cada um dos picos da fonte de ^{60}Co , dentro da faixa de taxa de contagens total utilizada neste experimento (200 - 900 contagens/s). Isto é, aceita-se a hipótese de que houve não variação significativa nos valores das contagens dos referidos picos de absorção total, pois o χ^2_{total} encontrado de 3,20 é menor que o valor crítico de $\chi^2_{95\% \ 20GL} = 10,85$.

7.10 Correção por atenuação

Resta estimar as correções por atenuação na fonte. Como o objeto de interesse é a eficiência relativa de pico, a não-consideração da atenuação da radiação γ na fonte produz erros nesta eficiência de, no máximo, da ordem de $\cong e^{(\mu_{1039\text{keV}} - \mu_{4806\text{keV}}) \cdot \Delta x} \cong 0,019$, onde Δx é a espessura da fonte e μ o co-

eficiente de atenuação de massa na energia pertinente. Este valor máximo de correção é aproximadamente de mesma magnitude das incertezas envolvidas, de modo que a pertinência da correção deve ser investigada.

Na figura 7.15, apresenta-se a diferença entre as eficiências relativas de pico calculadas com e sem correção por atenuação. Os coeficiente de atenuação de massa foram obtidos de [40]. É possível concluir que as eficiências relativas de pico, calculadas com e sem correção por atenuação, não diferem significativamente entre si a um nível de significância 5%, isto é, aceita-se a hipótese de que as eficiências são iguais, pois o χ^2_{total} encontrado de 1,71 é menor que o valor crítico de $\chi^2_{5\% \ 14GL} = 6,57$.

Assim, é indiferente a correção por atenuação, mantida a espessura da chapa de Zn (1 mm) e a atividade da fonte produzida²². Logo, o procedimento experimental recomendado é utilizar o lado oposto ao irradiado da chapa de Zn voltado para o detetor. Deste modo, a radiação β de 1781 keV, cuja coincidência $\beta - \gamma$ é significativa, é completamente absorvida no conjunto chapa de Zn + invólucro de Al de detetor.

²²Uma maior atividade da fonte produzida resultaria em erros de contagens menores, o que por sua vez torna as correções por atenuação na fonte relativamente mais significativas.

Figura 7.15: Diferença entre as eficiências relativas de pico com e sem correção por atenuação na fonte. A correção por atenuação é indiferente, mantida a espessura da chapa de Zn (1 mm) e a atividade da fonte produzida, isto é, aceita-se a hipótese de que as eficiências são iguais, pois o χ^2_{total} encontrado de 1,71 é menor que o valor crítico de $\chi^2_{5\% 14GL} = 6,57$.

Capítulo 8

Calibração de eficiência de pico

8.1 Procedimento iterativo de calibração de eficiência

Uma vez estabelecidas quais correções são relevantes, e como o procedimento experimental deve ser realizado de modo a minimizá-las, procede-se à calibração de eficiência.

8.1.1 Fluxograma

Durante a determinação da curva de calibração de eficiências relativas de pico, foi utilizado o fluxo de trabalho apresentado na figura 8.1. As eficiências de pico são estimadas inicialmente por meio dos valores das áreas dos picos, sem correção alguma, iniciando o processo iterativo. Quanto às correções, o principal parâmetro a ser estimado é a razão entre as eficiências total e de pico; entretanto, desconhece-se o valor deste parâmetro na região de altas energias. Conseqüentemente, o procedimento iterativo deverá procurar pelas curvas de calibração de eficiência relativa de pico, $\epsilon_r(E)$, e da razão entre as eficiências total e de pico, $R(E)$, ambas funções da energia, tais que após as respectivas correções o chi-quadrado total do ajuste simultâneo seja minimizado, isto é, procura-se minimizar:

Figura 8.1: Fluxograma de trabalho utilizado durante a determinação da curva de calibração de eficiência de pico. Inicialmente, as eficiências de pico são estimadas por meio dos valores das áreas dos picos, sem correção alguma. As correções por efeito soma são determinadas por meio do “chute” da curva de razão entre as eficiências total e de pico, incluindo a região de altas energias. O objetivo do procedimento é a minimização do chi-quadrado total, χ_{total}^2 , isto é, a soma do chi-quadrado do ajuste da eficiência relativa, $\chi_{efic.}^2$, e do chi-quadrado do ajuste da razão entre as eficiência total e de pico, $\chi_{t/p}^2$.

$$\chi_{total}^2 = \chi_{efic.}^2 + \chi_{t/p}^2 \quad (8.1)$$

onde $\chi_{efic.}^2$ é o chi-quadrado do ajuste de eficiência e $\chi_{t/p}^2$ do ajuste da razão entre as eficiências totais e de pico. Uma vez que a fonte produzida não teve sua atividade determinada por outros meios, torna-se necessário o cálculo da

eficiência absoluta para alguma transição de interesse. A transição escolhida foi a de 1039,2 keV, $E_0 \rightarrow \epsilon(E_0)$. Ainda, é necessário corrigir as coincidências com as radiações de aniquilação, 511 keV, observáveis no espectro, ou não, por meio da introdução dos níveis virtuais, item 3.5.

Resumindo, no fluxograma da figura 8.1 o ramo principal (“Área dos Picos” $\rightarrow$ “Minimização”) segue o procedimento comum de uma calibração de eficiência; entretanto, ao longo dos cálculos são necessárias outras informações que são estimadas ao longo do processo de modo a minimizar χ_{total}^2 , conforme descrito em detalhe no item 8.5.

8.2 Determinação da eficiência absoluta de pico utilizando fontes calibradas de ^{60}Co e ^{137}Cs

Mesmo na calibração da eficiência relativa de pico, é obrigatório o conhecimento da eficiência absoluta para a correção por efeito soma. O cálculo da eficiência absoluta realiza-se por meio da eficiência absoluta de referência, $\epsilon(E_0)$; quanto às eficiências absolutas de pico em outras energias, calcula-se como $\epsilon(E_i) = \epsilon_r(E_i) \cdot \epsilon(E_0)$ ao longo do processo iterativo.

O valor selecionado para a energia da transição de referência, E_0 , é aquela da transição mais intensa no decaimento de interesse, isto é, de 1039 keV, pois a sua alta contagem minimiza os respectivos erros propagados. A eficiência de pico em 1039 keV é determinada por meio de fontes calibradas de ^{137}Cs e ^{60}Co . O cálculo da eficiência utilizando o ^{137}Cs é direto; resta, então, corrigir as áreas dos picos do ^{60}Co por efeito soma. A figura 7.1 apresenta o espectro γ obtido do decaimento do ^{60}Co na mesma geometria do presente experimento.

O cálculo da eficiência absoluta de pico no ^{60}Co utilizou: (1) as razões da eficiência total para de pico nas energias de 1173 e 1332 keV, R_1 e R_2 respectivamente, obtidas de 6.3.3 (2) probabilidades de emissão das radiações de energias 1173 e 1332 keV, p_1 e p_2 , respectivamente [20] e (3) atividade da fonte e tempo de aquisição, $\Omega_{^{60}\text{Co}}$ e $T_{^{60}\text{Co}}$, respectivamente¹.

¹A correlação angular entre as radiações emitidas foi desprezada, item 7.8. Ainda, os

Assim, é possível escrever para as eficiências absolutas de pico nas energias 1173 e 1332 keV, $\epsilon_{(1173)}$ e $\epsilon_{(1332)}$, respectivamente:

$$\begin{aligned}\epsilon_{(1173)} &= \frac{A_1}{T_{60Co} \cdot \Omega_{60Co} \cdot p_1 (1 - \epsilon_{(1332)} \cdot R_2)} \\ \epsilon_{(1332)} &= \frac{A_2}{T_{60Co} \cdot \Omega_{60Co} \cdot p_2 (1 - p_1 \cdot \epsilon_{(1173)} \cdot R_1/p_2)}\end{aligned}\quad (8.2)$$

onde A_1 e A_2 são as respectivas áreas dos picos e p_1 e p_2 são muito próximos da unidade. Estas equações são equivalentes a adotar os seguintes valores de correção na equação 7.1: $C_1 = 1/(1 - \epsilon_{(1332)}R_2)$ e $C_2 = 1/(1 - p_1\epsilon_{(1173)}R_1/p_2)$. Como o cálculo de um dos valores depende outro, o processo é iterativo; sendo iniciado com os valores de eficiência calculados sem correção e interrompido quando a área resultante do pico de soma, A_{soma} , calculada por meio de

$$A_{soma} = T_{60Co} \cdot \Omega_{60Co} \cdot p_1 \cdot \epsilon_{(1173)} \cdot \epsilon_{(1332)} \quad (8.3)$$

for compatível com os mesmos valores obtidos experimentalmente. Os valores encontrados de $\epsilon_{(1173)}$ e $\epsilon_{(1332)}$ foram 0,0163(3) e 0,0145(3), respectivamente. O valor calculado da área do pico de soma foi de 642,87; o valor obtido desta área a partir do espectro do ^{60}Co foi de 633(25).

O valor da eficiência absoluta de pico em 1039 keV ajustada por meio das fontes de ^{137}Cs e ^{60}Co não observa a diferença entre o posicionamento destas fontes de calibração e a produzida no presente experimento. Utilizou-se, então, o software MCNP5 para estimar a correção necessária, encontrando-se $\epsilon(1039\text{ keV}) = 0,0168(3)$. A partir da eficiência absoluta de pico em 1039 keV e por meio da intensidade de emissão desta transição, determinou-se a atividade do radioisótopo de interesse, Ω_{66Ga} . Assim, o valor de eficiência de pico em 1039 keV não representa um grau de liberdade do ajuste de eficiência, pois é conhecido previamente por meio da calibração em baixas energias; por

coeficiente de conversão interna foram também desprezados, pois são muito pequenos $\cong 10^{-4}$ quando comparados com as incertezas envolvidas $\cong 10^{-2}$.

outro lado, não se pode dizer o mesmo de Ω_{66Ga} , cujo valor é constantemente atualizado ao longo do processo iterativo, uma vez que depende das correções aplicadas ao valor da área do pico de 1039 keV.

8.3 Modelagem do decaimento

8.3.1 Introdução

De modo a evitar complexidades desnecessárias, foi adotado o modelo simplificado de decaimento proposto no item 3.7. Do modelo, destacam-se: (1) as radiações γ mais intensas utilizadas no ajuste de eficiência (2) as radiações de aniquilamento e (3) a radiação β de 1781 keV.

8.3.2 Radiação de aniquilamento

No item 6.1 apresentou-se o espectro γ obtido do experimento. Neste espectro, é possível identificar alguns picos como os referentes à soma entre uma transição intensa do decaimento do ^{66}Ga e a radiação de aniquilamento em coincidência. Utilizando as áreas destes picos de soma, A_{511,γ_i}^{soma} , é possível corrigir diretamente as áreas dos picos de interesse envolvidos, A_{γ_i} , por meio de

$$A_{\gamma_i}^* - A_{\gamma_i} = A_{511,\gamma_i}^{soma} \cdot R_{511} \quad (8.4)$$

onde $A_{\gamma_i}^*$ é a área do pico corrigida da coincidência entre γ_i e a radiação de aniquilação e R_{511} é a razão de eficiência total para pico em 511 keV. As transições cujas coincidências com a radiação de aniquilação são as mais intensas foram as de 1039 e 2189 keV. Caso a área do pico de soma entre γ_i e a radiação de aniquilação não fosse obtido diretamente do espectro, utilizou-se os níveis virtuais de 511 keV, item 3.5.

8.3.3 A modelagem do efeito soma nas coincidências

$$\gamma - \gamma$$

Uma vez que a meia-vida de um estado excitado ao decaimento γ é geralmente muito pequena quando comparada a resolução temporal da instrumentação empregada², torna-se possível a coincidência entre duas transições de uma mesma “cascata”. Estas coincidências podem alterar significativamente as contagens observadas nos picos de absorção total.

No caso destas coincidências serem desprezíveis, a área de um pico referente a uma transição entre os níveis i e j , $A_{\gamma_{i,j}}$, figura 8.2, é dada pela seguinte expressão:

$$A_{\gamma_{i,j}} = \Omega \cdot T \cdot P_{\gamma_{i,j}} \cdot \epsilon(E_{\gamma_{i,j}}) \quad (8.5)$$

onde Ω , T , $P_{\gamma_{i,j}}$, $\epsilon(E_{\gamma_{i,j}})$, são, respectivamente, a atividade da fonte, tempo de aquisição, probabilidade de emissão da radiação $\gamma_{i,j}$ e eficiência do detetor na energia pertinente.

As áreas dos picos resultantes do decaimento do ^{66}Ga podem ter suas áreas aumentadas ou diminuídas pelo efeito soma $\gamma - \gamma$, conforme o esquema simplificado de decaimento proposto na figura 3.3. A área de um pico é aumentada, por exemplo, quando uma transição entre os níveis i e l , $\gamma_{i,l}$, encontra-se em *crossover* com as transições $\gamma_{i,j}$ e $\gamma_{j,l}$, figura 8.2. Neste caso, a área do pico $A_{\gamma_{i,l}}$ é acrescida de $\Delta A_{\gamma_{i,l}}^+$, cujo valor é dado pela seguinte expressão

$$\Delta A_{\gamma_{i,l}}^+ = P_{\gamma_{i,j}} \cdot \xi_{(i,j)(j,l)} \cdot \epsilon(E_{\gamma_{i,j}}) \cdot \epsilon(E_{\gamma_{j,l}}) \cdot \omega(\gamma_{i,j}, \gamma_{j,l}; 0^\circ) \quad (8.6)$$

onde $\xi_{(i,j)(j,l)}$ e $\omega(\gamma_{i,j}, \gamma_{j,l}; 0^\circ)$ são a probabilidade de emissão de $\gamma_{j,l}$ dado que $\gamma_{i,j}$ foi emitido e a correlação angular entre estas duas radiações em um ângulo de 0° , respectivamente. Por outro lado, as áreas dos picos referentes às transições $\gamma_{i,j}$ e $\gamma_{j,l}$ sofrem decréscimo, pois um evento de absorção total de uma delas pode estar em coincidência com qualquer outro tipo de evento relacionado com a outra. Então, o decréscimo na área do pico $\gamma_{i,j}$, $\Delta A_{\gamma_{i,j}}^-$ é

²Por exceção dos estados isoméricos.

dada pela seguinte expressão:

$$\Delta A_{\gamma_{i,j}}^- = P_{\gamma_{i,j}} \cdot \xi_{(i,j)(l,m)} \cdot \epsilon(E_{\gamma_{i,j}}) \cdot R(E_{\gamma_{l,m}}) \cdot \epsilon(E_{\gamma_{l,m}}) \cdot \omega(\gamma_{i,j}, \gamma_{l,m}; 0^\circ) , \text{ se } j > l \quad (8.7)$$

onde $R(E_{\gamma_{l,m}})$ é razão entre as eficiências total e de pico para a transição

Figura 8.2: Esquema genérico de decaimento.

em cascata. Semelhantemente,

$$\Delta A_{\gamma_{i,j}}^- = P_{\gamma_{i,j}} \cdot \xi_{(l,m)(i,j)} \cdot \epsilon(E_{\gamma_{i,j}}) \cdot R(E_{\gamma_{l,m}}) \cdot \epsilon(E_{\gamma_{l,m}}) \cdot \omega(\gamma_{i,j}, \gamma_{l,m}; 0^\circ) , \text{ se } m > i \quad (8.8)$$

Montando-se expressões análogas entre todas as radiações relevantes é possível obter as correções de todos os picos desejados. Exemplificando, apresenta-se a expressão obtida para o pico de 1039 keV (transição entre os níveis $1 \rightarrow 0$

do ^{66}Zn).

$$\begin{aligned}
A_{\gamma_{1,0}} + A_{511, \gamma_{1,0}}^{soma} \cdot R_{511} = \Omega \cdot P_{\gamma_{1,0}} \cdot (\epsilon(E_{\gamma_{1,0}}) \dots \\
- \frac{P_{\gamma_{2,1}}}{\Sigma} \cdot \epsilon(E_{\gamma_{2,1}}) \cdot \epsilon(E_{\gamma_{1,0}}) \cdot R(E_{\gamma_{2,1}}) \dots \\
- \frac{P_{\gamma_{20,2}}}{\Sigma} \cdot \epsilon(E_{\gamma_{20,2}}) \cdot \epsilon(E_{\gamma_{1,0}}) \cdot R(E_{\gamma_{20,2}}) \dots \\
- \frac{P_{\gamma_{20,1}}}{\Sigma} \cdot \epsilon(E_{\gamma_{20,1}}) \cdot \epsilon(E_{\gamma_{1,0}}) \cdot R(E_{\gamma_{20,1}}) \dots \\
- \frac{P_{\gamma_{25,1}}}{\Sigma} \cdot \epsilon(E_{\gamma_{25,1}}) \cdot \epsilon(E_{\gamma_{1,0}}) \cdot R(E_{\gamma_{25,1}}) \dots \\
- \frac{P_{\gamma_{28,8}}}{\Sigma} \cdot \epsilon(E_{\gamma_{28,8}}) \cdot \epsilon(E_{\gamma_{1,0}}) \cdot R(E_{\gamma_{28,8}}) \dots \\
- \frac{P_{\gamma_{3,1}}}{\Sigma} \cdot \epsilon(E_{\gamma_{3,1}}) \cdot \epsilon(E_{\gamma_{1,0}}) \cdot R(E_{\gamma_{3,1}}) \dots \\
- \frac{P_{\gamma_{9,1}}}{\Sigma} \cdot \epsilon(E_{\gamma_{9,1}}) \cdot \epsilon(E_{\gamma_{1,0}}) \cdot R(E_{\gamma_{9,1}}))
\end{aligned} \tag{8.9}$$

onde Σ representa a soma das probabilidades de emissão de todas as transições que alimentam o nível 1 ($P_{\gamma_{m,n}}/\Sigma = \xi_{(m,n)(1,0)} \rightarrow$ do esquema de decaimento real) e $A_{511, \gamma_{1,0}}^{soma}$ é a área do pico referente a coincidência com a radiação de aniquilação. Apesar do nível 1 não ser alimentado diretamente por um decaimento tipo β^+ , existe a possibilidade da transição $1 \rightarrow 0$ do ^{66}Zn (1039 keV) estar em coincidência com alguma outra radiação de aniquilação cuja respectiva alimentação β^+ alimenta um nível no qual a subsequente cascata acaba por terminar na transição $1 \rightarrow 0$.

8.4 A razão entre as eficiências total e de pico em altas energias

A correção do efeito soma $\gamma - \gamma$ demanda o conhecimento da razão entre as eficiências total e de pico em toda a faixa de energia onde as correções são necessárias; entretanto, o cálculo desta razão exige a disponibilidade de fontes mono-energéticas ou de fontes cujos respectivos esquemas de decaimento resultem em correções simples, nesta mesma faixa de energia, o que

não se encontra disponível.

Caso fosse possível “desligar” todas as transições do decaimento do ^{66}Ga por exceção das duas mais energéticas, o decaimento do ^{66}Ga teria procedimento de correção por efeito soma semelhante ao do ^{60}Co , disponibilizando a razão entre as eficiências total e de pico em 4461 e 4806 keV, $R_{E\uparrow} = (A_{4461} + A_{4806})/A_{total}$ e seu respectivo erro, $\sigma R_{E\uparrow}$, (onde A_{4461} e A_{4806} são as áreas dos picos de 4461 e 4806 keV, respectivamente; e A_{total} a área deste suposto espectro). Inspirado nesta analogia, a metodologia de cálculo procura, ao longo do processo iterativo, figura 8.1, encontrar o valor de $R_{E\uparrow}$ e seu respectivo erro, $\sigma R_{E\uparrow}$, tais que o chi-quadrado do ajuste conjunto entre as eficiências de pico e razão entre as eficiências total e de pico, χ_{total}^2 , seja minimizado, conforme será detalhado a seguir.

8.5 A aplicação do método

Conhecidas as correções das áreas dos picos, procede-se a implementação do método. O método de cálculo da eficiência de pico é um processo iterativo, figura 8.1.

As eficiências de pico a serem ajustadas, $\epsilon(E_{\gamma_i})$, são funções da área do respectivo pico, A_i , da atividade da fonte, $\Omega_{^{66}\text{Ga}}$, das outras eficiências de pico (correções), $\{\epsilon(E_{\gamma_j}), \epsilon(E_{\gamma_k}) \dots\} \rightarrow \vec{\epsilon}$, dos parâmetros do esquema de decaimento, $\{P_{\gamma_i}, P_{\gamma_j} \dots\} \rightarrow \vec{P}$, das razões entre as eficiências total e de pico, $\{R(E(\gamma_i)), R(E(\gamma_j)) \dots\} \rightarrow \vec{R}$, de alguma eventual coincidência com a radiação de aniquilação, A_{511, γ_i}^{soma} , da razão entre as eficiências total e de pico em altas energias, $R_{E\uparrow}$ e respectivo erro, $\sigma R_{E\uparrow}$, e a eficiência absoluta de pico em 1039 keV, ϵ_0 . Assim,

$$\epsilon(E_{\gamma_i}) = F_i(\vec{\epsilon}, \vec{R}, [R_{E\uparrow}, \sigma R_{E\uparrow}], \Omega ; \epsilon_0, \vec{P}) \quad (8.10)$$

onde todos os argumentos após ‘;’ são parâmetros conhecidos, sendo importante salientar que a atividade da fonte, Ω , é desconhecida previamente, sendo calculada iterativamente ao longo do procedimento. Ainda, os colchetes indicam que a dependência nos parâmetros não é explícita. É possível escre-

ver para Ω a equação 8.9 nos mesmos moldes da equação 8.10,

$$\begin{aligned}\Omega &= (A_{\gamma_{1,0}} + A_{511, \gamma_{1,0}}^{soma} \cdot R_{511}) / (P_{\gamma_{1,0}} \cdot (\epsilon(E_{\gamma_{1,0}}) \dots \\ &\quad - \frac{P_{\gamma_{2,1}}}{\Sigma} \cdot \epsilon(E_{\gamma_{2,1}}) \cdot \epsilon(E_{\gamma_{1,0}}) \cdot R(E_{\gamma_{2,1}}) \dots)) \\ &= F_{\Omega}(\vec{\epsilon}, \vec{R}, [R_{E_{\uparrow}}, \sigma_{R_{E_{\uparrow}}}] ; \epsilon_0, \vec{P})\end{aligned}\quad (8.11)$$

De posse do conjunto de valores das eficiências de pico, $\{\epsilon(E_{\gamma_i})\}$ (inicialmente sem correção), procede-se (item 7.1) o ajuste das eficiências de pico com relação à energia³, obtendo-se

$$\vec{L} = \tilde{X}_{ef} \vec{A}_{ef} + \vec{e} \quad (8.12)$$

e, o valor do chi-quadrado do ajuste de eficiência de pico, χ_{efic}^2 .

$$\chi_{efic}^2 = (\vec{L} - \tilde{X}_{ef} \cdot \vec{A}_{ef})^t \cdot V_{ef}^{-1} \cdot (\vec{L} - \tilde{X}_{ef} \cdot \vec{A}_{ef}) \quad (8.13)$$

Semelhantemente, ajusta-se os valores da razão entre as eficiência total e de pico⁴, $\{R_{E_{\uparrow}}; R(E(\gamma_i)), \dots\}$, por um polinômio do segundo grau com relação à energia⁵, obtendo-se $\chi_{t/p}^2$. Dos dois ajustes, obtém-se

$$\begin{aligned}\chi_{total}^2(R_{E_{\uparrow}}, \sigma_{R_{E_{\uparrow}}}; \epsilon_0, \dots) &= \chi_{efic}^2([R_{E_{\uparrow}}, \sigma_{R_{E_{\uparrow}}}] ; \epsilon_0, \dots) + \dots \\ &\quad \chi_{t/p}^2(R_{E_{\uparrow}}, \sigma_{R_{E_{\uparrow}}}; \epsilon_0, \dots)\end{aligned}\quad (8.14)$$

Finalmente, por meio de um método *simplex* de procura direta Nelder-

³Polinômio do segundo grau do logaritmo da eficiência, normalizada com relação a ϵ_0 , função do logaritmo da energia normalizada para o valor de referência, item 7.1.

⁴Novamente, ‘;’, separa as razões entre as eficiências total e de pico conhecidas (fontes disponíveis) e $R_{E_{\uparrow}}$ a ser determinada ao longo do processo. Por motivos de clareza é conveniente explicitar que $\{R(E(\gamma_i)), \dots; R_{E_{\uparrow}}\}$ trata do conjunto de grandezas obtidas das fontes disponíveis e, por exceção de $R_{E_{\uparrow}}$, conhecidas de ante-mão. Na expressão das eficiências de pico, as razões entre as eficiências total e de pico nas energias das transições de interesse do ^{66}Ga são calculadas a partir do ajuste realizado para estes valores no passo anterior do procedimento iterativo, e portanto ajustados ao longo do processo.

⁵As fontes utilizadas foram ^{54}Mn , ^{137}Cs e ^{60}Co .

Mead [54], determina-se o valor do par de valores $R_{E\uparrow}$ e $\sigma_{R_{E\uparrow}}$ que minimiza a função $\chi^2_{total}(R_{E\uparrow}, \sigma_{R_{E\uparrow}}; \epsilon_0, \dots)$. Ainda, é importante enfatizar que este procedimento não perfaz o ajuste das eficiências de pico e das razões entre as eficiências totais e de pico simultaneamente. Este procedimento procura os valores de $R_{E\uparrow}$ e $\sigma_{R_{E\uparrow}}$ tais que os ajustes de cada um dos conjuntos de dados, separadamente, produzam um $\chi^2_{total}(R_{E\uparrow}, \sigma_{R_{E\uparrow}})$ que é o menor possível.

8.6 Resultados

O procedimento detalhado anteriormente permite obter o ajuste de eficiência de pico e das razões entre as eficiências total e de pico, figuras 8.3 e 8.4, através de quatro ou cinco interações normalmente. Quanto ao ajuste de eficiência de pico, o que se encontra graficado é o valor normalizado desta eficiência com relação ao valor calculado em 1039 keV, por meio de fontes calibradas de ^{137}Cs e ^{60}Co , chamado aqui de “eficiência relativa”.

O $\chi^2_{efic.}$ reduzido do ajuste de eficiência de pico é de 0,93 e a curva ajustada: $\log(\frac{\epsilon_r(E)}{\epsilon_{r, 1039 \text{ keV}}}) = a + b \cdot \log(\frac{E}{1039,2}) + c \cdot \log^2(\frac{E}{1039,2})$, onde $a = -0,0013(41)$, $b = -0,84(7)$ e $c = -0,112(123)$. O resultado obtido para o coeficiente quadrático, c , que é estatisticamente equivalente a zero, não permite inferir se a eficiência de pico do detetor utilizado, função da energia (log-log), é não-linear na região de interesse.

Quanto a razão entre as eficiências totais e de pico: o $\chi^2_{t/p}$ reduzido do ajuste é de 0,25 e a curva ajustada: $R(E) = a + b \cdot (\frac{E}{10^3}) + c \cdot (\frac{E}{10^3})^2$, onde $a = 1,86(50)$, $b = 2,32(61)$ e $c = 0,74(33)$ (energia, E , em keV). As incertezas relativamente grandes quando comparadas aos valores ajustados mostram que o experimento e procedimento realizados não são eficazes na determinação destes parâmetros. Na figura 8.4, os pontos referentes ao ^{60}Co e ^{66}Ga são apenas uma representação pictórica, pois as respectivas razões calculadas por meio da equação 6.10 utilizam mais de uma energia por ponto.

Figura 8.3: Ajuste de eficiência de pico função da energia (log-log). Na figura, as eficiências de pico foram normalizadas com relação ao valor de eficiência de pico calculado em 1039 keV por meio de fontes calibradas de ^{137}Cs e ^{60}Co . O χ^2 reduzido do ajuste é de 0,93 e a curva ajustada: $\log(\frac{\epsilon_r(E)}{\epsilon_{r,1039 \text{ keV}}}) = a + b \cdot \log(\frac{E}{1039,2}) + c \cdot \log^2(\frac{E}{1039,2})$, onde $a = -0,0013(41)$, $b = -0,84(7)$ e $c = -0,112(123)$, e energia, E , em keV.

Figura 8.4: Ajuste das razões entre as eficiências total e de pico função da energia. O χ^2 reduzido do ajuste é de 0,25 e a curva ajustada: $R(E) = a + b \cdot \left(\frac{E}{10^3}\right) + c \cdot \left(\frac{E}{10^3}\right)^2$, onde $a = 1,86(50)$, $b = 2,32(61)$ e $c = 0,74(33)$, e energia, E, em keV.

Capítulo 9

Simulação por Monte Carlo

9.1 Introdução

O propósito deste capítulo é simular o experimento realizado utilizando o método de Monte Carlo e comparar os resultados obtidos com o experimento. O método de Monte Carlo é um método estatístico com diversas aplicações em áreas como a física. Em contraste com os métodos determinísticos, as técnicas de Monte Carlo obtêm soluções de problemas complexos simulando individualmente cada partícula e registrando alguns aspectos de seu comportamento médio [55]. No caso de transporte de partículas, é como se fosse um experimento numérico.

No presente trabalho, utilizou-se o código MCNP5. O MCNP5 é um código de transporte de Monte Carlo de propósito geral: de espectro contínuo de energia, de geometria generalizada, dependente do tempo, com acoplamento entre nêutrons, fótons e elétrons. No presente trabalho, utilizou-se o acoplamento entre fótons e elétrons. O MCNP5 é capaz de simular fótons na faixa de energia de 1 keV a 100 GeV e elétrons entre 1 keV a 1 GeV. A maioria dos dados de interação de elétrons e fótons é atômica; entretanto, dados foto-nucleares são considerados. Quanto ao transporte de fótons, o MCNP5 pode tratar os espalhamentos como coerentes, ou não, considerando a emissão fluorescente, produção de pares com produção de fótons com aniquilação e *bremsstrahlung*. Quanto aos elétrons e pósitrons, são transportados em

um modelo de frenagem contínua, considerando a emissão de raios X K e *bremsstrahlung*.

Recentemente, [12] obteve uma curva de calibração de eficiência até 3,5 MeV cujos cálculos por técnicas de Monte Carlo apresentaram erros da ordem de 0,4 a 3,8 %. Neste tipo de estudo, os principais resultados são a comparação, entre o experimento e o código utilizado, da eficiência de pico e das razões de escape.

9.2 Geometria

Os detalhes do interior do detetor não são descritos pelo fabricante. A fim de conhecer os detalhes necessários, foi realizada uma radiografia do detetor empregado, figura 9.1. As radiografias foram obtidas com o auxílio dos Srs. Jorge Clementino dos Santos e Felipe P. Jaldin Ferrufino do Centro de Combustível Nuclear do IPEN. Durante a exposição, foram utilizados os seguintes parâmetros: tensão 80 keV, corrente 8 mA, exposição 35 s, distância da fonte 195 cm, apoiando-se o detetor horizontalmente na chapa fotográfica. Em [56],

Figura 9.1: Radiografias do detetor empregado no experimento. As radiografias apresentam vistas separadas de 90°, horizontal e lateral.

Tabela 9.1: Principais dimensões utilizadas no modelo geométrico do detetor: valores nominais (segundo fabricante), dimensões conforme [56] e o presente experimento.

Dimensão	Nominal (cm)	ref. [56] (cm)	^{66}Ga (cm)
comprimento do cristal	5,9	5,9	6,1 (a)
raio do cristal	2,95	2,95	2,95 (a)
diâmetro do furo interno	-	0,47	0,35 (b)
comp. do furo interno	-	4,0	4,5 (b)
esp. da camada morta (lateral)	0,07	0,16	0,15 (b)
esp. da camada morta (frontal)	-	0,13	0,15 (b)
esp. da camada morta (interna/frontal)	-	0,16	0,15 (b)
esp. da camada morta (interna/lateral)	-	0,17	0,15 (b)
espessura da carcaça	1,27	1,27	1,27 (a)
distância do cristal à carcaça	0,3	0,3	0,3 (a)
$^{66}\text{Ga} \rightarrow$ presente experimento (a) radiografia e (b) ajuste da eficiência de pico.			

o mesmo detetor empregado no presente arranjo experimental teve suas dimensões determinadas por meio do ajuste da eficiência de pico. A tabela 9.1 apresenta as principais dimensões do detetor obtidas: (1) através da radiografia, corrigidas por distorções (“paralaxe”)¹ e (2) ajuste por meio eficiência de pico em 1039,2 keV. Quanto às dimensões do furo interno do cristal de Ge, seu diâmetro foi suposto igual ao do “dedo de Cu” e comprimento² igual a 4,5 cm.

A partir destas informações e do arranjo experimental, obteve-se o seguinte modelo da geometria do experimento, figura 9.2. Uma vez que é inexequível

¹Determinada por meio da comparação entre uma dimensão conhecida, ou diretamente mensurável (diâmetro do cristal de Ge, ou diâmetro do invólucro de Al), e a respectiva dimensão medida diretamente na radiografia.

²Poder-se-ia perguntar a razão de não se escolher as dimensões do furo interno conforme [56]. Nesta referência, todas as dimensões desconhecidas foram ajustadas; porém, neste trabalho a dimensão do dedo de Cu, por exemplo, era conhecida da radiografia, não existindo motivo para escolher um diâmetro do furo interno diferente desta dimensão. Assim, para compensar um raio do furo interno maior em [56], selecionou-se um comprimento maior. Do contrário, as eficiências de pico ou seriam superestimadas, ou resultariam em espessuras das camadas mortas significativamente maiores que aquelas obtidas por [56].

representar todos os elementos do arranjo experimental na simulação, tratou-se de representar apenas os mais significativos: cristal de Ge e suas respectivas camadas mortas, invólucro de Al, “dedo frio” de Cu, tampa de suporte de plástico e blindagem de Pb.

Figura 9.2: Geometria utilizada na simulação. Cada cor corresponde a um “material”: verde $\rightarrow$ ar, branco $\rightarrow$ vácuo, azul escuro $\rightarrow$ cobre, vinho $\rightarrow$ cristal de germânio e camada morta, azul claro $\rightarrow$ PVC, laranja $\rightarrow$ zinco e magenta $\rightarrow$ blindagem de chumbo.

9.3 Espectro

Determinada a geometria e materiais a serem utilizados no modelo, foram simuladas as respostas para cada um dos fótons de maior intensidade do decaimento do ^{66}Ga . A figura 9.3 apresenta alguns dos espectros obtidos em diferentes faixas de energia. As simulações foram realizadas sob a supervisão da Prof^a. Dr^a. Nora Lia Maidana. As energias dos fótons selecionados para a simulação são as mesmas das radiações γ mais intensas no decaimento do ^{66}Ga , sendo que cada simulação teve duração de 120 minutos³.

³Suficiente para que as incertezas associadas as eficiências de pico serem significativamente menores que aquelas obtidas do experimento.

9.4 Resultados

9.4.1 Eficiências

I. Eficiência de pico

As dimensões desconhecidas do arranjo experimental (camadas mortas do cristal de Ge e dimensões do “dedo frio”), foram ajustadas a partir do valor da eficiência de pico em 1039,2 keV determinada a partir do experimento. Quanto às eficiências em altas energias, estas se mostraram importantes no ajuste da relação entre o espaço preenchido pelo “dedo frio” de Cu no furo interno do cristal de Ge. Por exemplo, caso o furo do cristal seja preenchido completamente pelo dedo de Cu, as eficiências de pico em altas energias são subestimadas.

Na simulação, a fonte foi considerada pontual uma vez que os dados experimentais foram corrigidos pela extensão geométrica da fonte. A figura

Figura 9.3: Espectros típicos obtidos do MCNP5 para as energias de 4806, 2751 e 1039 keV. As contagens dos picos estendem-se além das escalas das figuras para a visualização do comportamento do espectro.

9.4 apresenta o resultado da comparação entre as eficiências de pico obtidas do experimento e aquelas simuladas por meio do MCNP5. A comparação entre a simulação e o experimento mostrou-se satisfatória sendo o χ^2 reduzido obtido desta comparação de 0,87⁴.

Figura 9.4: Comparação entre as eficiências de pico obtidas do experimento e aquelas do MCNP5. O χ^2 reduzido da comparação entre o experimento e a simulação é de 0,87.

II. Razão entre as eficiências total e de pico

Uma vez que as dimensões desconhecidas do arranjo experimental foram ajustadas de modo a concordar com a eficiência de pico experimental, a eficiência total obtida pela simulação do experimento provavelmente não concordará

⁴A qualidade do ajuste não surpreende, uma vez que a eficiência de pico em baixas energias foi ajustada por meio dimensão da camada morta, e em altas energia por meio de detalhes do furo interno.

com os respectivos resultados experimentais. De fato, este efeito foi observado em [7] que utilizou um fator de correção, multiplicador Compton⁵, para a área total do espectro subtraída da área do pico de absorção total, de modo a corrigir as áreas de pico por efeito soma $\gamma - \gamma$. A figura 9.5 apresenta a comparação entre a razão da eficiência total para a de pico obtidas do experimento e do MCNP5, para alguns valores do multiplicador Compton.

Figura 9.5: Comparação entre a razão da eficiência total para a de pico obtidas do experimento e do MCNP5, para alguns valores do multiplicador Compton. A linha contínua representa o ajuste da razão da eficiência total para a de pico obtida do experimento.

9.4.2 Escapes

Procedendo-se da mesma forma com relação às áreas dos picos de escape, obteve-se a comparação entre as razões de escape simples/duplo obtidas do

⁵Que, por hipótese, foi suposto constante com a energia.

Figura 9.6: Comparação entre as razões de escape simples obtidas do experimento e do MCNP5. O χ^2 reduzido da comparação entre o experimento e a simulação é de 5,6. No gráfico de resíduos é possível identificar que o número de dados experimentais obtidos é significativamente menor que o número de radiações γ simuladas no MCNP5, item 6.3.5.

experimento e daquelas simuladas por meio do MCNP5.

I. Escape simples

A figura 9.6 apresenta a comparação referente à razão de escape simples. A comparação entre as razões de escape simples obtidas do experimento e do MCNP5 mostrou-se insatisfatória sendo o χ^2 reduzido obtido desta comparação de 5,6. Dos resultados, é possível identificar diferenças significativas para energias maiores que 3500 keV, sendo a probabilidade que estas diferenças sejam fruto do mero acaso desprezíveis; isto é, $P_{7GL}(\chi^2 > 5,6 \cdot 7)$ é muito pequena. Na referência [12], a mesma comparação também não foi bem sucedida, sendo necessária uma correção atribuída à aniquilação em vôo para que a simulação concordasse com os dados experimentais.

II. Escape duplo

A discrepância da razão entre as áreas dos picos de escape simples e aquelas dos picos de absorção total, experimental e simulada, não se repetiu com os picos de escape duplo, sendo satisfatória a comparação entre o experimento e a simulação. A figura 9.7 apresenta a comparação entre a simulação e o experimento. O χ^2 reduzido da comparação entre o experimento e a simulação é de 0,9.

Figura 9.7: Comparação entre as razões de escape duplo obtidas do experimento e do MCNP5. O χ^2 reduzido da comparação entre o experimento e a simulação é de 0,9. No gráfico de resíduos é possível identificar que o número de dados experimentais obtidos é significativamente menor que o número de radiações γ simuladas no MCNP5, item 6.3.5.

III. Razão de escapes

No item 6.3 a razão entre as áreas de escape simples e duplo mostrou-se aproximadamente constante na faixa de energia do experimento. O valor ajustado desta razão vale $R_{DE/SE} = 0,73(02)$ com χ^2 reduzido de 1,01.

A comparação com a simulação mostrou o mesmo comportamento na faixa de energia do experimento, sendo o χ^2 reduzido obtido da comparação entre o experimento e a simulação de 0,82. A figura 9.8 apresenta a comparação entre a simulação e o experimento. Em resumo, a capacidade do

Figura 9.8: Comparação entre as razões de escape obtidas do experimento e do MCNP5. O χ^2 reduzido da comparação entre o experimento e a simulação é de 0,82.

software MCNP5 em simular o experimento não pode ser verificada adequadamente, pois algumas dimensões desconhecidas no experimento (dedo frio e camadas mortas) foram ajustadas de modo a realizar o melhor ajuste possível entre as eficiências de pico (da simulação e experimento). Desta forma, é impossível justificar a razão, limitação do *software* $\times$ dimensões desconhecidas, para a discordância entre outros dados (eficiências de escapes e $R_{t/p}$).

Capítulo 10

Conclusão

No presente trabalho foi possível produzir uma fonte de ^{66}Ga e utilizá-la como padrão de calibração de energia, FWHM, ponto de junção e eficiências de pico de absorção total e escapes de radiação γ para detetores semicondutores tipo HPGe na faixa de energia entre 833 e 4806 keV. Estes parâmetros de calibração são importantes para o ajuste adequado dos picos de absorção total e respectivos escapes que eventualmente são alterados por efeitos cinemáticos das reações envolvidas.

Na produção desta fonte foi estudada a condição ótima de produção cuja implementação não foi possível, pois os parâmetros ótimos de produção exigiam que o ciclotron empregado operasse sob condições instáveis. Conseqüentemente, esta restrição reduziu a atividade final da fonte produzida frente à condição ótima.

A metodologia de trabalho apresentada visou minimizar os efeitos secundários de detecção: coincidências, atenuações, empilhamentos e tamanho da fonte. Destes principais efeitos, a coincidência $\gamma - \gamma$ foi a mais relevante, sendo a sua minimização dependente da alteração dos vínculos impostos na produção da fonte. Na correção das coincidências $\gamma - \gamma$ utilizou-se de um modelo simplificado do esquema de decaimento, por meio do qual foi possível corrigir as áreas observadas dos picos de absorção total.

Uma vez realizadas as correções necessárias foram apresentadas as calibrações de eficiência de pico e da razão entre as eficiências total e de pico,

ambas funções da energia do pico de absorção total, por meio do ajuste conjunto destes dados. Adicionalmente, foram apresentados os seguintes resultados: eficiências de simples e duplo escape e a sua razão, largura à meia altura, razão entre as larguras à meia altura dos picos de picos de simples e duplo escape com relação àquelas dos picos de absorção total e ponto de junção, todos função da energia do pico de absorção total. Destes resultados destaca-se o do ponto de junção que apresenta, para o detetor e condições experimentais utilizadas, a mudança significativa da forma do pico de absorção total com a energia.

Finalmente, foi realizada uma simulação do processo de transporte de radiação do experimento, por meio do software MCNP5, cujos resultados foram comparados com os experimentais. As características principais do detetor ou foram observadas diretamente através de radiografia, quando possível, ou ajustadas aos dados experimentais, quando inacessíveis. A simulação realizada mostrou-se em acordo com os resultados experimentais para a eficiência de pico e a razão entre as eficiências de escape duplo e de pico, e em desacordo com a razão entre as eficiências de escape simples e de pico e a razão entre as eficiências total e de pico.

Apêndice A

Produção dos isótopos do Ga: revisão da literatura

A.1 Introdução

O objetivo deste apêndice é proceder uma revisão da literatura sobre a produção dos principais isótopos do Ga. A importância desta revisão reside na correta seleção dos dados a serem utilizados na otimização dos parâmetros da produção. A referência [14] apresenta, entre outros, exatamente estas mesmas informações até o ano de 1993 e [57] apresenta novos resultados até 1999. Mais recentemente, 2001, [58] atualiza os dados, comparando-os com resultados calculados teoricamente¹. Ainda, uma investigação na biblioteca de dados EXFOR, apresentou algumas referências mais modernas, 2005, em concordância com os outros dados experimentais.

A apresentação desta revisão dividir-se-á, nos mesmos moldes de [14], nos seguintes tópicos: (I) produção do ^{66}Ga , item A.2 (II) produção do ^{67}Ga , item A.2.1 e (III) produção do ^{68}Ga , item A.2.2².

¹A bibliografia desta referência apresenta dados experimentais até 1999 [57].

²A mesma pesquisa na biblioteca EXFOR mostra o autor Levkoskij - 1991, é sistematicamente “esquecido” em [14]. Uma explicação razoável é que embora a posição em energia da seção de choque máxima esteja em acordo com outras investigações, os valores da seção de choque são excessivamente altos: www-nds.ipen.br/medical/Zn7p7Ga0.html.

Figura A.1: Seções de choque da reação $^{66}\text{Zn}(p,n)^{66}\text{Ga}$ [9]. Alguns dos dados apresentados, mais recentes que em [14], não se enquadram na discussão.

A.2 Produção do ^{66}Ga

Reação $^{66}\text{Zn}(p,n)^{66}\text{Ga}$.

A referência [14] procedeu um levantamento das seções de choque da reação $^{66}\text{Zn}(p,n)^{66}\text{Ga}$. Foram encontradas 12 investigações. Em todas as investigações, utilizou-se alvos de Zn de composição isotópica natural, por exceção de Tarkanyi *et al.* (1990). Em alguns trabalhos, as contribuições para a produção do ^{66}Ga referentes às reações $^{67}\text{Zn}(p,2n)^{66}\text{Ga}$ e $^{68}\text{Zn}(p,3n)^{66}\text{Ga}$ foram separadas da reação de interesse (por meio da diferença entre as funções de excitação de núcleos vizinhos e utilizando alvos com diferentes graus de enriquecimento). As seções de choque investigadas encontram-se na figura A.1.

A referência [14] dividiu estas investigações, arbitrariamente, em três grupos, conforme o valor máximo obtido para a seções de choque:

1. Este grupo, Blaser *et al.* - 1951, Howe - 1958, Hille *et al.* - 1972,

Tárkánui *et al.* - 1990, Szelecsényi *et al.* - 1991, caracteriza-se pela concordância nos valores da magnitude das seções de choque. Neste grupo, o valor médio do máximo desta função de excitação, σ_{max} , é de 650 mb, com a respectiva energia em torno de 12,4 MeV.

2. No grupo seguinte, Barrandon *et al.* - 1975, Blosser e Handley - 1995, Bonardi e Birattari - 1983, Nortier *et al.* - 1991, os canais entre as reações (p,n) e (p,2n) não foram separados. Conseqüentemente, os dados destes investigadores são úteis até aproximadamente 13 MeV.
3. Finalmente, o último grupo, Hermanne *et al.* - 1992, Kopecký - 1990 e Little e Lagunas-Solar - 1983, apresentam valores de seção de choque sistematicamente menores que daqueles do primeiro grupo. Entretanto, há concordância no valor da energia de σ_{max} : 470 mb em torno de 12,2 MeV. Ainda, os valores de energia apresentados por Little e Lagunas-Solar - 1983 aparentam estar sistematicamente 3 MeV maiores que os mesmos valores apresentados por outros autores.

Ainda, quanto às estimativas teóricas das curvas da função de excitação ALICE/85/300 (Blann -1984) e STRAPE (Uhl e Strohmaier - 1976) estas concordam com o primeiro grupo e, entretanto, as de ALICE (Blann e Bisplinghoff -1982) com o segundo.

Reação $^{67}\text{Zn}(\text{p},2\text{n})^{66}\text{Ga}$.

A referência [14] apresenta três investigações da reação $^{67}\text{Zn}(\text{p},2\text{n})^{66}\text{Ga}$: Little e Lagunas - Solar (1983), Tárkányi *et al.* - 1990, Dmitriev - 1986. Quanto à metodologia de obtenção desta função de excitação, Little e Lagunas Solar - 1983 [15], utilizaram o método da separação, conforme explicado anteriormente. A figura A.2 apresenta as seções de choque investigadas.

O valor do pico de máximo da função de excitação de Little e Lagunas Solar - 1983, [15], e Tárkányi *et al.* - 1990 foi estimado em 24 MeV ($\sigma_{max} \cong 320$ mb) e 21 MeV ($\sigma_{max} \cong 520$ mb), respectivamente. As estimativas teóricas das curvas de excitação, ALICE (Nowotny e Kehl - 1987) e STAPRE (Tárkányi *et al.*), apresentaram para o pico do máximo da função de excitação

Figura A.2: Seções de choque da reação $^{67}\text{Zn}(p,2n)^{66}\text{Ga}$ [9]. Alguns dos dados apresentados, mais recentes que [14], não se enquadram na discussão.

21 MeV ($\cong 360$ mb) e 22 MeV ($\cong 410$ mb), respectivamente, concordando com os valores de Tárkányi *et al.*.

Reação $^{68}\text{Zn}(p,3n)^{66}\text{Ga}$.

A referência [14] apresenta três investigações da reação $^{68}\text{Zn}(p,3n)^{66}\text{Ga}$: Little e Lagunas - Solar (1983) [15] Hermanne *et al.* - 1992, McGee *et al.* - 1970, que não concordam entre si. Uma consulta em [9] revela outras fontes. A concentração de dados experimentais até 30 MeV estão provavelmente associados a limites de energia dos respectivos aceleradores. A figura A.3 apresenta as seções de choque investigadas.

Nowotny e Kehl - 1987 (ALICE) apresentaram cálculos teóricos desta seção de choque, de onde é possível concluir que o máximo da função de excitação encontra-se em $\sigma = 170$ mb, em torno de 34 MeV.

Figura A.3: Seções de choque da reação $^{68}\text{Zn}(p,3n)^{66}\text{Ga}$ [9].

A.2.1 Produção do ^{67}Ga

Reação $^{67}\text{Zn}(p,n)^{67}\text{Ga}$.

A referência [14] apresenta nove investigações da reação $^{67}\text{Zn}(p,n)^{67}\text{Ga}$. Tendo como referência estes dados experimentais, é possível concluir que a função de excitação da reação $^{67}\text{Zn}(p,n)^{67}\text{Ga}$ tem máximo em torno de 10 MeV (660 mb); entretanto, a investigação de Little e Lagunas - Solar (1983) [15] apresenta o mesmo pico 2 MeV acima do pico de energia obtido por outros investigadores. A figura A.4 apresenta as seções de choque investigadas. Ainda, função da importância radioterapêutica do ^{67}Ga , os valores recomendados para a respectiva seção de choque encontram-se disponíveis³.

As estimativas teóricas, ALICE/85/300 (Nortier *et al.*-1991, Nowotny e Kehl - 1987 e Tarkanyi *et al.*), permitem obter: $\sigma_{max} = 660$ mb, em torno de 9,8 MeV, 600 mb e 10,2 MeV e 660 mb e 10 MeV, respectivamente. Estes cálculos teóricos encontram-se em acordo com os resultados experimentais,

³Em [9] (e nas figuras A.4 e A.5), os valores recomendados aparecem com data de 1905 (Takacs); entretanto, o ano correto é 2005.

Figura A.4: Seções de choque da reação $^{67}\text{Zn}(p,n)^{66}\text{Ga}$ [9]. Encontram-se graficadas, também, as seções de choque recomendadas, Takacs - 2005.

por exceção daqueles de Little e Lagunas [15].

Reação $^{68}\text{Zn}(p,2n)^{67}\text{Ga}$.

A referência [14] apresenta cinco levantamentos da função de excitação da reação $^{68}\text{Zn}(p,2n)^{67}\text{Ga}$. Uma pesquisa em [9] revela muitas outras investigações, reflexo, provavelmente, da importância do ^{67}Ga como fonte de radiação para tratamentos terapêuticos. Ainda, analogamente a seção de choque anterior, os valores recomendados para a respectiva seção de choque encontram-se disponíveis.

Em função dos dados experimentais, é possível concluir que o máximo da função de excitação encontra-se por volta de 20 MeV; quanto ao respectivo valor da função de excitação, há divergência entre as experiências, com os valores variando entre $420 \text{ mb} < \sigma_{max} < 883 \text{ mb}$. As estimativas teóricas, ALICE/85/300 (Nowotny e Kehl - 1987) e STAPRE (Tarkanyi *et al.* - 1990), permitem obter 690 mb, em torno de 19 MeV e 890 mb, em torno de 19,5 MeV, respectivamente. A referência [14] conclui, conseqüentemente, que a

Figura A.5: Seções de choque da reação $^{68}\text{Zn}(p,2n)^{67}\text{Ga}$ [9]. Encontram-se graficadas, também, as seções de choque recomendadas, Takacs - 2005.

posição do máximo das funções de excitação calculadas teoricamente não encontram suporte experimental. A figura A.5 apresenta as seções de choque investigadas.

A.2.2 Produção do ^{68}Ga

Reação $^{68}\text{Zn}(p,n)^{68}\text{Ga}$.

A referência [14] apresenta dez investigações da função de excitação da reação $^{68}\text{Zn}(p,n)^{68}\text{Ga}$, e em [9] encontram-se outras duas mais antigas e em energias mais baixas. As investigações apresentadas concordam razoavelmente acima de 7 MeV, por exceção de Hermanne *et al.* (1992) na faixa de energia de 12 a 18 MeV, exibindo máximo de 820 mb em torno de 12 MeV.

As estimativas teóricas, ALICE/85/300 (Nortier *et al.*-1991) e STAPRE Tarkanyi *et al.* - 1992, permitem obter: $\sigma_{max} = 960$ mb, em torno de 12,5 MeV, e 920 mb, em torno de 12,0 MeV, respectivamente. Estes cálculos teóricos encontram-se em acordo com os resultados experimentais. A figura

Figura A.6: Seções de choque da reação $^{68}\text{Zn}(p,n)^{68}\text{Ga}$ [9].

A.6 apresenta as seções de choque investigadas.

Apêndice B

Determinação experimental das seções de choque de produção

B.1 Introdução

O objetivo deste apêndice é proceder uma revisão da literatura sobre a produção dos principais isótopos do Ga. As seções de choque de reações nucleares induzidas por partículas carregadas são essenciais em algumas situações com aplicações práticas (produção de radioisótopos para fins medicinais, medidas de desgaste, radiobiologia . . .). Em particular, os processos de produção de radioisótopos para fins medicinais (ou para outros fins) dependem significativamente de valores precisos para as diversas seções de choque envolvidas, até mesmo as seções de choque das impurezas são determinantes na necessidade, ou não, do enriquecimento de alvos. No presente caso, as seções de choque são determinantes na seleção do ponto ótimo de produção.

B.2 Técnicas experimentais

As seguintes técnicas são freqüentemente utilizadas em conjunto para a construção das funções de excitação de interesse [59]: (I) método de ativação utilizando a técnica *stacked-foil* e feixe de ciclotron (II) feixe de ciclotron controlado por copo de Faraday e reações de monitoramento e (III) medida

Figura B.1: Arranjo simplificado de um dispositivo experimental geralmente empregado no levantamento das funções de excitação de interesse. Destacam-se os alvos, monitores, copo de Faraday e o feixe incidente.

da atividade dos alvos irradiados por espectroscopia γ convencional sem separação química.

A figura B.1 apresenta um arranjo simplificado de um dispositivo experimental geralmente empregado no levantamento das funções de excitação de interesse (IAEA-TECDOC-1211). Será descrito a seguir, com maiores detalhes, cada uma das técnicas citadas.

B.3 Método de ativação por *stacked-foil*

Neste método, alguns alvos fabricados geralmente na forma de chapas finas são dispostos em sequência e irradiados uma única vez. A degradação em energia do feixe é determinada por meio do cálculo do poder de frenagem [16]. O valor de energia atribuído a uma seção de choque é o seu valor médio ao longo de um dos alvos (levando em consideração a mudança da função de excitação ao longo do alvo). Entretanto, a técnica tem algumas desvantagens, especialmente quando se emprega um número excessivo de alvos. Existem, ainda, outros problemas a serem contornados: o feixe pode perder intensidade ao longo dos alvos, devido a perda de foco “outfocusing”; a energia do feixe não é estimada corretamente, função de erros na espessura

dos alvos, e no cálculo do poder de frenagem; alargamento em energia do feixe; e resfriamento insuficiente dos alvos.

O primeiro e último problema podem ser contornados utilizando uma corrente baixa do feixe do ciclotron. Quanto ao segundo e terceiro, deve-se diminuir o número de chapas e/ou utilizar chapas de monitoramento. De qualquer modo [59] afirma que após 8-10 MeV de absorção da energia do feixe pelos alvos empilhados, é comum erros de 1-2 MeV em energia¹.

B.4 Monitores de reação

Embora existam muitos fatores que possam causar erros significativos durante a determinação experimental das seções de choque de interesse, os erros sistemáticos na obtenção do valor do fluxo do feixe encontram-se certamente entre os mais importantes. Normalmente, utiliza-se a corrente elétrica induzida pelo feixe carregado em um copo de Faraday; entretanto, íons e elétrons secundários (gerados pela interação do feixe do ciclotron no gás remanescente do vácuo) podem causar erros não-desprezíveis.

Ao invés de se tomar as complicadas medidas necessárias para evitar a interação dos íons e elétrons secundários com o copo de Faraday, é mais interessante utilizar chapas monitoras. As chapas monitoras são construídas com material cuja seção de choque é muito bem conhecida na região de interesse. Assim, ao invés de se obter valores absolutos para as seções de choque (utilizando o copo de Faraday), as medidas são efetuadas relativamente à seção de choque da reação monitora. A utilização de monitores é ideal quando a utilização do copo de Faraday torna-se, por algum motivo, inexecutável².

¹Estes erros são mais comuns em alvos desenvolvidos por eletrodeposição [59].

² Exemplificando, no arranjo experimental de [57], foram utilizados: (1) até 8 alvos de $15 \frac{mg}{cm^2}$ de 10-12 mm de diâmetro (2) *backings* de Ni ou Cu (3) tempos de irradiação e corrente de 60 min e 600 nA, respectivamente (4) copo de Faraday e (5) monitores de Cu ($Cu(p,xn)^{62,63}Zn$ e $^{65}Cu(p,n)^{65}Zn$).

B.5 Alvos e medida da atividade resultante

Geralmente, os alvos utilizados na determinação das seções de choque são confeccionados em material isotopicamente enriquecido³, quando a reação tem particular interesse terapêutico⁴. Os alvos utilizados para o levantamento das seções de choque são dispostos em compartimentos submetidos a vácuo. Nas reações envolvendo os isótopos do Zn de interesse, utilizam-se normalmente alvos com *backing* de Ni e revestimento de Cu ou Ni, “espessuras” de $15 \frac{mg}{cm^2}$, e diâmetro de 10 mm [59].

Uma vez irradiados, os alvos e monitores tem a suas respectivas atividades medidas por meio de espectroscopia γ simples. Normalmente, não se realiza a separação química dos produtos das reações.

B.6 Determinação das seções de choque

O cálculo da seção de choque é obtido por meio da equação padrão da ativação. Caso seja possível considerar o fluxo do feixe de partículas incidentes, I (partículas/s), constante durante o transcorrer do bombardeamento de um alvo altamente enriquecido (de espessura e e “densidade” ρ de núcleos do isótopo de interesse por unidade de volume), é possível calcular a atividade ao final do bombardeamento (EOB), $A(E, t = \Delta t_{irrad})$, após transcorrido um tempo de irradiação, Δt_{irrad} , função da energia de incidência do feixe, E , por meio da expressão B.1.

$$A(E, t = \Delta t_{irrad}) = I (1 - e^{-\lambda \Delta t_{irrad}}) \int_{E_{saída}=f(e, E_{ent.}, \rho)}^{E_{ent.}=E} \left\{ \frac{1}{\rho} \frac{dE'}{dx} \right\}^{-1} \sigma(E') dE' \quad (B.1)$$

onde λ é a constante de decaimento do núcleo produto referente a reação nuclear de interesse. Por outro lado, esta mesma relação pode ser utilizada na determinação da seção de choque desejada a partir da atividade medida do

³O procedimento de confecção emprega a eletrodeposição do material enriquecido em finas chapas de alta pureza disponíveis comercialmente [59]

⁴Por exemplo, *Beaver et al*-1978, *Boothe*-1991, e *Brown et al*-1973 utilizaram alvos de ⁶⁸Ga enriquecido.

produto da reação. Assim, supondo a utilização de um alvo muito fino, isto é, de tal forma que é possível considerar o poder de frenagem aproximadamente constante ao longo do alvo, $\frac{dE'}{dx} \cong \text{const.}$, é interessante simplificar o cálculo da integral da expressão B.1 através da seguinte aproximação⁵:

$$\int_{E_{saída}}^{E_{ent.}=E} \left\{ \frac{1}{\rho} \frac{dE'}{dx} \right\}^{-1} \sigma(E') dE' \cong \sigma_{\text{médio}} \rho e = \sigma_{\text{médio}} N_S$$

caso $\frac{dE'}{dx} \cong \text{const.}$ (B.2)

onde N_S (número de núcleos/unidade de superfície) é a densidade superficial do alvo e $\sigma_{\text{médio}}$ é a seção de choque média referente ao alvo em análise, cuja respectiva energia pode calculada através da integração do poder de frenagem, $\frac{1}{\rho} \frac{dE}{dx}$, ao longo dos alvos até aquele de interesse. Assim, a seção de choque para a energia do alvo em questão, $E \cong \frac{E_{ent.} + E_{saída}}{2}$, fica

$$\sigma_{\text{médio}}(E) = \frac{A(E, t = \Delta t_{\text{irrad}})}{I N_S (1 - e^{-\lambda \Delta t_{\text{irrad}}})} \quad (\text{B.3})$$

onde um rearranjo adequado pode explicitar a corrente de bombardeamento, I , quando a seção de choque é previamente conhecida com a precisão adequada, como no caso dos alvos monitores de reações.

As atividades resultantes de cada um dos alvos irradiados (inclusive dos alvos monitores) podem ser medidas por meio de um detector semicondutor, cujas curvas de calibração de energia e eficiência, $\epsilon(E_\gamma)$ ⁶, encontram-se disponíveis de antemão, por meio da expressão B.4:

$$A(E, t = \text{início da medida}) = \frac{N_{\text{pico}} \prod C_j}{\epsilon(E_\gamma) P^\gamma} \frac{\lambda}{1 - e^{-\lambda \Delta t_{\text{med.}}}} \quad (\text{B.4})$$

onde $\Delta t_{\text{med.}}$ é o intervalo de tempo de medida da radiação γ resultante do decaimento do produto da reação, N_{pico} é a contagem do pico de absorção total escolhido (cuja energia é E_γ), P^γ é a respectiva probabilidade

⁵Descartando a possibilidade de uma ressonância.

⁶ E_γ é a energia do fotopico escolhido para a análise de espectroscopia γ , E é a energia do feixe incidente no alvo em questão.

de emissão por decaimento, e $\prod C_j$ encarrega-se das eventuais correções necessárias (*dead-time*, *pile-up*, atenuações...). Uma vez que é normalmente necessário aguardar o “resfriamento” dos alvos irradiados, resta relacionar a atividade no final do bombardeamento, $A(E, t = \Delta t_{irrad})$, com aquela no início da medição, $A(E, t = \text{início da medida}) = A(E, t = \Delta t_{irrad})e^{-\lambda \Delta t_{resf.}}$. Finalmente, obtém-se a seção de choque⁷:

$$\sigma_{\text{médio}}(E) = \frac{\lambda N_{\text{pico}} \prod C_j e^{\lambda \Delta t_{resf.}}}{IN_S (1 - e^{-\lambda \Delta t_{irrad}}) (1 - e^{-\lambda \Delta t_{med.}})} \quad (\text{B.5})$$

na expressão B.5 acima, todos os termos são conhecidos, ou estimáveis, incluindo I , que pode ser obtido por uma expressão semelhante aplicada aos alvos monitores da reação⁸, o que torna claro a natureza relativa do cálculo da seção de choque desejada com relação a monitora.

B.7 Enriquecimento limitado dos alvos

Infelizmente, nem sempre é possível enriquecer os alvos até o desejado. Por exemplo, o ^{67}Ga é normalmente enriquecido até 91,5% [59]. Se nenhuma das impurezas presentes produz reações concorrentes a que se pretende estudar, calcula-se a seção de choque supondo enriquecimento perfeito e, então, corrige-se o valor na proporção do enriquecimento realmente obtido. Entretanto, quando as impurezas presentes (p. ex. $^{67}\text{Ga}(\text{p}, \text{n})$ e $^{68}\text{Ga}(\text{p}, 2\text{n})$ acima da energia limiar da segunda) concorrem significativamente com a reação a ser estudada torna-se necessário utilizar um procedimento experimental mais elaborado.

⁷Na mesma unidade de área escolhida para a especificação de N_S (número de núcleos/unidade de área).

⁸Rearranjando-se a equação B.5 de modo a explicitar I função, dentre outros, da seção de choque da reação de monitoramento, que é por hipótese bem conhecida.

B.8 Alvos com enriquecimento limitado

Primeiramente, obtêm-se as funções de excitação absoluta de alvos de diferentes composições isotópicas⁹, na região de energia de interesse (x_i^j significa: fração do isótopo j , no alvo composto i , que são conhecidos previamente¹⁰). Uma vez que alvos de diferentes composições provavelmente serão avaliados em conjuntos diferentes de energias, é necessário obter uma função de excitação absoluta ajustada para cada uma das diferentes composições ($\sigma_i^{\text{abs. e ajust.}}$) na região de energia de interesse.

Finalmente, é possível ajustar linearmente as seções de choque desejadas, σ^j (que é seção de choque da reação pela qual o isótopo j concorre), para uma determinada energia de interesse, e_μ , às seções de choque absolutas e ajustadas. Utilizando representação matricial, os dados podem ser dispostos da seguinte forma

$$\begin{pmatrix} \sigma_1^{\text{abs. e ajust.}}(e_\mu) \\ \sigma_2^{\text{abs. e ajust.}}(e_\mu) \\ \vdots \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} x_1^1 & x_1^2 & \dots \\ x_2^1 & x_2^2 & \dots \\ \vdots & \vdots & \ddots \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \sigma^1(e_\mu) \\ \sigma^2(e_\mu) \\ \vdots \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \epsilon_1(e_\mu) \\ \epsilon_2(e_\mu) \\ \vdots \end{pmatrix} \quad (\text{B.6})$$

onde ϵ_i são os erros resultantes do ajuste para cada composição isotópica. Na forma compacta:

$$\tilde{\sigma}_{e_\mu}^{\text{abs. e ajust.}} = \tilde{X} \tilde{\sigma}_{e_\mu} + \tilde{\epsilon} \quad (\text{B.7})$$

onde as seções de choque $\tilde{\sigma}$ são ajustadas para cada uma das energias $\{e_\mu\}$, cuja estimativa pelo método dos mínimos quadrados é fornecida pela equação:

$$\tilde{\sigma}_{e_\mu} = (\tilde{X}^t \tilde{V}_{e_\mu}^{-1} \tilde{X})^{-1} \tilde{X}^t \tilde{V}_{e_\mu}^{-1} \tilde{\sigma}_{e_\mu}^{\text{abs. e ajust.}} \quad (\text{B.8})$$

onde $\tilde{V}_{e_\mu}$ é a matriz de covariância de $\tilde{\sigma}_{e_\mu}^{\text{abs. e ajust.}}$ previamente conhecida do

⁹O número necessário de composições isotópicas diferentes depende do número de reações concorrentes. Se duas reações concorrem, p.ex. é impossível descobrir as seções individuais a partir de apenas um alvo.

¹⁰Note que $\sum_j x_i^j$ não é necessariamente igual a 1, uma vez que nem todos os isótopos concorrem conjuntamente.

ajuste realizado para as seções absolutas.

B.9 Degradação de energia

O cálculo da degradação da energia ao longo dos alvos é normalmente realizada por meio das fórmulas e dados de Andersen and Ziegler [16]. O valor de energia associado a um determinado alvo é geralmente atribuído ao valor calculado a altura da metade de sua espessura. As incertezas obtidas variam entre 0,2 - 0,8 MeV [59].

B.10 Discussão sobre as incertezas

Normalmente, as fontes de incertezas para o cálculo das seções de choque absolutas são as seguintes [59]: (1) contagem, 1-5% (2) eficiência do detector e geometria, 3-5% (3) dados sobre os decaimentos, 1-2% (4) densidade superficial dos alvos, 5-7 % e (5) corrente de bombardeamento, 3-5% (todas relativas). Todas estas incertezas propagam-se quadraticamente, uma vez que possuem origem independente.

As incertezas das seções de choque absolutas (materializadas na matriz de covariâncias $\tilde{V}_{e_\mu}$) não contabilizam todas as incertezas das seções de choque procuradas. A expressão para a incerteza final nas seções de choque procuradas é calculada por meio da seguinte expressão:

$$\tilde{V}_{\sigma_{e_\mu}} = (\tilde{X}^t \tilde{V}_{e_\mu} \tilde{X})^{-1} \quad (\text{B.9})$$

onde $\tilde{V}_{\sigma_{e_\mu}}$ é a matriz de covariância das seções de choque procuradas, na energia e_μ . Ao final, as incertezas referentes as seções pesquisadas geralmente costumam a variar entre 9-15%¹¹.

¹¹Por exemplo, *Blosser e Handley*-1955: 10-14 %, e *Hermanne et al.* - 1992: 8,5 %.

Apêndice C

Fórmula semi-empírica de Weizsaecker

Quantitativamente, é possível explicar, utilizando a fórmula semi-empírica, o motivo do núcleo ^{66}Zn ser o isóbaro β estável (na série $A=66$) para o decaimento do núcleo ^{66}Ga . Segundo a fórmula semi-empírica.

$$m(Z, A) = Zm_p + (A - Z)m_n - a_V A + a_S A^{2/3} + a_C Z^2 A^{-1/3} + a_A \left(Z - \frac{A}{2}\right)^2 A^{-1} \pm \delta \quad (\text{C.1})$$

onde, $a_V = 15,85 \text{ Mev}/c^2$; $a_S = 18,34 \text{ Mev}/c^2$; $a_C = 0,71 \text{ Mev}/c^2$; $a_A = 92,86 \text{ Mev}/c^2$; e $\delta = 11,46 A^{-1/2} \text{ Mev}/c^2$. A expressão semi-empírica é quadrática em Z . Uma vez que $A = 66$ é um número par, a relação semi-empírica de Weizsaecker produz duas parábolas ($m(Z, A) \times Z$) devido à diferentes energias de emparelhamento. Os núcleos da série estão em uma ou outra parábola, conforme sejam par-par ou ímpar-ímpar. O número de prótons, $Z_{\min}$, para o qual a massa nuclear de uma série de isóbaros é mínima ocorre quando,

$$\left(\frac{\partial m(Z, A)}{\partial Z} \right)_{A=\text{constante}} = 0 \quad (\text{C.2})$$

cujo resultado, utilizando os valores das constantes da equação semi-empírica, é,

$$Z_{min} = \frac{A}{1,98 + 0,015A^{2/3}} \quad (C.3)$$

Quando aplicado a $A = 66$, resulta $Z_{min} \cong 29,7$. Então, o núcleo mais estável desta série de isóbaros é o Cu (ímpar-ímpar) ou Zn (par-par).

Figura C.1: Esquema do decaimento β , na série A=66, dos núcleos isobáricos em torno de $Z = 30$ (Zn). A figura apresenta os resultados da aplicação direta da fórmula semi-empírica de Weizsaecker. O núcleo estável ao decaimento β , desta série de isóbaros, é o ^{66}Zn .

Apêndice D

Esquema de decaimento

O modelo de esquema de decaimento é uma simplificação do esquema real [20]. Neste esquema encontram-se: as energias dos níveis do ^{66}Zn em keV, as energias de transição entre estes níveis em keV, o valor Q das transições β , a intensidade do decaimento β^+ , intensidade da captura eletrônica e $\log(ft)$. As intensidades referem-se a cada 100 decaimentos do núcleo pai (^{66}Ga).

Figura D.1: Esquema de decaimento do ^{66}Ga [60].

Figura D.2: Esquema de decaimento do ^{66}Ga [60], continuação.

Figura D.3: Esquema de decaimento do ^{66}Ga [60], continuação.

Figura D.4: Esquema de decaimento do ^{66}Ga [60], continuação.

Apêndice E

Matriz de correlação de energia

As matrizes de correlação de energia apresentadas a seguir disponibilizam o coeficiente de correlação

$$\rho_{i,j} = \frac{\text{cov}(E_i, E_j)}{\sigma_i \cdot \sigma_j}$$

onde $\text{cov}(E_i, E_j)$ é a covariância entre as energias E_i e E_j (em keV) e σ_i a incerteza relativa a energia E_i . Em azul, na horizontal e vertical, encontram-se as energias da radiação γ do decaimento do ^{66}Ga . Ao lado (vertical), ou logo acima (horizontal), de cada energia encontra-se a respectiva incerteza. Por exemplo, o coeficiente de correlação entre as energias 1418,756(6) keV (vertical) com 1508,156(7) keV (horizontal) vale 0,035.

Tabela E.1: Matriz de correlação de energias do decaimento do ^{66}Ga [26]. O valor de cada elemento da matriz é o coeficiente de correlação, $\rho_{i,j} = \frac{\text{cov}(E_i, E_j)}{\sigma_i \cdot \sigma_j}$, onde $\text{cov}(E_i, E_j)$ é a covariância entre as energias E_i e E_j e σ_i a incerteza relativa a energia E_i .

Energias (keV) e incertezas		Coeficientes de correlação														
833,533	0,002	1,000														
1039,220	0,003	0,042	1,000													
1333,115	0,005	0,121	0,046	1,000												
1418,756	0,006	0,182	0,108	-0,467	1,000											
1458,661	0,012	0,048	0,004	0,058	0,014	1,000										
1508,156	0,007	-0,140	-0,260	0,063	0,035	0,031	1,000									
1898,835	0,007	0,043	0,096	0,198	0,324	0,035	0,081	1,000								
1918,334	0,005	-0,082	0,143	0,352	0,595	0,050	0,150	0,516	1,000							
2189,623	0,006	0,041	-0,210	0,224	0,330	0,050	0,321	0,492	0,547	1,000						
2422,525	0,008	0,046	0,087	0,121	0,224	0,021	0,114	0,183	0,336	0,235	1,000					
2751,841	0,005	0,295	0,152	0,382	0,639	0,066	0,092	0,511	0,928	0,540	0,928	1,000				
2780,096	0,018	0,038	0,100	0,040	0,058	0,013	0,032	0,055	0,084	0,054	0,084	0,054	1,000			
3228,806	0,006	0,061	0,275	0,242	0,376	0,051	0,190	0,530	0,606	0,882	0,606	0,882	0,530	1,000		
3380,849	0,007	0,151	0,160	0,117	0,130	0,046	0,874	0,135	0,190	0,252	0,190	0,252	0,135	0,190	1,000	
3422,038	0,009	0,106	0,109	0,087	0,104	0,032	0,286	0,105	0,150	0,209	0,150	0,209	0,105	0,150	0,209	1,000
3432,307	0,008	0,121	0,217	0,105	0,139	0,035	0,247	0,134	0,199	0,207	0,199	0,207	0,134	0,199	0,207	1,000
3766,852	0,010	0,272	0,082	0,098	0,125	0,037	0,132	0,105	0,120	0,177	0,120	0,177	0,105	0,120	0,177	1,000
4085,860	0,010	0,177	0,240	0,161	0,253	0,036	0,059	0,414	0,352	0,448	0,352	0,448	0,414	0,352	0,448	1,000
4461,200	0,010	0,111	0,398	0,094	0,128	0,030	0,186	0,126	0,181	0,131	0,181	0,131	0,126	0,181	0,131	1,000
4806,008	0,011	0,267	0,351	0,105	0,147	0,036	0,053	0,125	0,152	0,109	0,152	0,109	0,125	0,152	0,109	1,000
833,533	0,002	0,003	0,003	0,005	0,006	0,012	0,007	0,007	0,005	0,006	0,007	0,005	0,006	0,007	0,005	0,006
1039,220	0,003	0,003	0,003	0,005	0,006	0,012	0,007	0,007	0,005	0,006	0,007	0,005	0,006	0,007	0,005	0,006
1333,115	0,005	0,005	0,005	0,005	0,006	0,012	0,007	0,007	0,005	0,006	0,007	0,005	0,006	0,007	0,005	0,006
1418,756	0,006	0,006	0,006	0,006	0,006	0,014	0,008	0,008	0,006	0,008	0,008	0,006	0,008	0,008	0,006	0,008
1458,661	0,012	0,004	0,004	0,058	0,014	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000
1508,156	0,007	-0,140	-0,260	0,063	0,035	0,031	0,081	0,511	0,928	0,540	0,928	0,540	0,928	0,540	0,928	0,540
1898,835	0,007	0,043	0,096	0,198	0,324	0,035	0,081	0,511	0,928	0,540	0,928	0,540	0,928	0,540	0,928	0,540
1918,334	0,005	-0,082	0,143	0,352	0,595	0,050	0,150	0,516	1,000	0,547	1,000	0,547	1,000	0,547	1,000	0,547
2189,623	0,006	0,041	-0,210	0,224	0,330	0,050	0,321	0,492	0,547	1,000	0,547	1,000	0,547	1,000	0,547	1,000
2422,525	0,008	0,046	0,087	0,121	0,224	0,021	0,114	0,183	0,336	0,235	1,000	0,336	0,235	1,000	0,336	0,235
2751,841	0,005	0,295	0,152	0,382	0,639	0,066	0,092	0,511	0,928	0,540	0,928	0,540	0,928	0,540	0,928	0,540
2780,096	0,018	0,038	0,100	0,040	0,058	0,013	0,032	0,055	0,084	0,054	0,084	0,054	0,084	0,054	0,084	0,054
3228,806	0,006	0,061	0,275	0,242	0,376	0,051	0,190	0,530	0,606	0,882	0,606	0,882	0,530	0,606	0,882	0,530
3380,849	0,007	0,151	0,160	0,117	0,130	0,046	0,874	0,135	0,190	0,252	0,190	0,252	0,135	0,190	0,252	0,135
3422,038	0,009	0,106	0,109	0,087	0,104	0,032	0,286	0,105	0,150	0,209	0,150	0,209	0,105	0,150	0,209	0,105
3432,307	0,008	0,121	0,217	0,105	0,139	0,035	0,247	0,134	0,199	0,207	0,199	0,207	0,134	0,199	0,207	0,134
3766,852	0,010	0,272	0,082	0,098	0,125	0,037	0,132	0,105	0,120	0,177	0,120	0,177	0,105	0,120	0,177	0,105
4085,860	0,010	0,177	0,240	0,161	0,253	0,036	0,059	0,414	0,352	0,448	0,352	0,448	0,414	0,352	0,448	0,352
4461,200	0,010	0,111	0,398	0,094	0,128	0,030	0,186	0,126	0,181	0,131	0,181	0,131	0,126	0,181	0,131	0,126
4806,008	0,011	0,267	0,351	0,105	0,147	0,036	0,053	0,125	0,152	0,109	0,152	0,109	0,125	0,152	0,109	0,125

Tabela E.1.1: Matriz de correlação de energias do decaimento do ⁶⁶Ga, continuação.

Energias (keV) e incertezas	2422,525	0,008	1,000									
	2751,841	0,005	0,339	1,000								
	2780,096	0,018	0,070	0,095	1,000							
	3228,806	0,006	0,273	0,604	0,102	1,000						
	3380,849	0,007	0,165	0,238	0,085	0,325	1,000					
	3422,038	0,009	0,133	0,184	0,067	0,258	0,366	1,000				
	3432,307	0,008	0,179	0,236	0,089	0,309	0,375	0,304	1,000			
	3766,852	0,010	0,114	0,217	0,075	0,213	0,244	0,194	0,209	1,000		
	4085,860	0,010	0,171	0,404	0,071	0,556	0,209	0,162	0,202	0,164	1,000	
	4461,200	0,010	0,149	0,215	0,091	0,320	0,386	0,955	0,345	0,203	0,203	1,000
	4806,008	0,011	0,131	0,245	0,097	0,276	0,273	0,212	0,256	0,962	0,962	0,962
		0,008		0,005	0,018	0,006	0,007	0,009	0,008			0,010
		2422,525		2751,841	2780,096	3228,806	3380,849	3422,038	3432,307			3766,852

4085,860	0,010	1,000
4461,200	0,010	0,221
4806,008	0,011	0,220
		1,000

0,010	0,010	0,011
4085,860	4461,200	4806,008

Referências Bibliográficas

- [1] H. Bichsel, D.E. Groom, e S.R. Klein: *Passage of particles through matter*, Cap. 27. Revised September 2005 by H. Bichsel (University of Washington), D.E. Groom (LBNL), e S.R. Klein (LBNL), 2005.
- [2] B. Marianski e A. Marcinkowski: *γ -ray standards for detector efficiency calibration at high energies*. Coordinated Research Project: *Update of X- and γ -ray Decay Data Standards for Detector Calibration*, Report on the works completed under the IAEA Research Contracts 10314/R0/R1/R2, The Andrzej Soltan Institute for Nuclear Studies, 2002.
- [3] C.M. Baglin, E. Browne, E.B. Norman, G.L. Molnar, T. Belgya, e F. Szelecsényi Zs. Révay: *^{66}Ga : a standard for high-energy calibration of Ge detectors*. Nucl. Inst. and Meth., 481:365–377, 2002.
- [4] <http://www.ipen.br/cac/ciclotrons.html>: *Dados das características principais do Ciclotron Cyclone 30, do Instituto de Pesquisas Energético Nucleares*.
- [5] M. Herman e A.L. Nichols: *INDC International Nuclear Data Committee update of x-ray decay data standards for detector calibration and other applications*. Relatório Técnico, INDC, 2000.
- [6] K. Sudarshan, A.G.C. Nair, R.N. Acharya, Y.M. Scindia, A.V.R. Reddy, S.B. Manohar, e A. Goswami: *Capture γ -rays from ^{60}Co as multi γ -ray efficiency standard for prompt γ -ray neutron activation analysis*. Nucl. Instr. and Meth., 457(e):180–186, 2001.
- [7] C.O. Guimarães: *Eficiência de detetores HPGe para fótons de 4 a 10 MeV*. Dissertação de Mestrado, Instituto de Física da Universidade de São Paulo, USP/IF/SBI-037/2005.
- [8] D.B. Tridapalli: *Estudo da função resposta de um detetor HPGe a fótons da reação $^{19}\text{F}(p, \alpha\gamma)^{16}\text{O}$* . Dissertação de Mestrado, Instituto de Física da Universidade de São Paulo, USP/IF/SBI-001/2007.

- [9] www.nndc.bnl.gov/exfor3/exfor00.htm: *EXFOR - Banco de dados de reações nucleares*.
- [10] A. Marcinkowski e B. Marianski: *Compilation and evaluation of high energy γ -ray standards from nuclear reaction*, IAEA report INDC(POL)-014. Relatório Técnico.
- [11] A. Marcinkowski e B. Marianski: *Recommended cross sections for production of high-energy γ -ray from $^{12}\text{C}^*$ excited in capture and inelastic scattering*, SINS(Z-1)-No 02/1999. Relatório Técnico, IAEA, 1999.
- [12] R.G. Helmera, N. Nicab, J.C. Hardyb, e V.E. Iacobb: *Precise efficiency calibration of an HPGe detector up to 3.5 MeV, with measurements and Monte Carlo calculations*. Appl. Radi. and Isot., 2004.
- [13] M. Tanimizu, Y. Asada, e T. Hirata: *Absolute Isotopic Composition and Atomic Weight of Commercial Zinc Using Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry*. Analytical Chemistry, 74(22):5814–5819, 2002.
- [14] Szelecsfynyi, T.E. Boothe, E. Tavano, e M. E. Plitnikas: *Compilation of Cross Sections/Thick Target Yields for ^{66}Ga , ^{67}Ga and ^{68}Ga Production Using Zn Targets up to 30 MeV Proton Energy*. Appl. Radiat. Isot., 45(4):473–500, 1994.
- [15] F.E. Little e M.C. Lagunas-Solar: *Cyclotron Production of ^{67}Ga , Cross Sections and Thick-Target Yields for the $^{67}\text{Zn}(p,n)$ and $^{68}\text{Zn}(p,2n)$ Reactions*. Int. J. Appl. Radiat. Isot., 34(3):631–637, 1983.
- [16] J. F. Ziegler: *SRIM - The Stopping and Range of Ions in Matter*. <http://www.srim.org/>.
- [17] B. Firestone (editor): *Table of Radioactive Isotopes*. John Wiley, 1996.
- [18] L.M. Unger (editor): *Specific Gamma-Ray dose constants for nuclides important to dosimetry and radiological assessment*. Oak Ridge National Laboratory, 1982.
- [19] T. Mayer-Kuckuk (editor): *Física Nuclear*. Fundação Calouste Gulbenkian, 1993.
- [20] M.Bé e outros (editores): *Table of Radionuclides*. Bureau International des poids et mesures, 2004.

- [21] M. E. Phelps, D. G. Sarantites, e W. G. Winn: *Decay of ^{56}Co and ^{66}Ga : Energy and intensity standardization*. Nuclear Physics A, 149:647–672, 1970.
- [22] K. Siegbahn (editor): *Beta- and Gamma-ray Spectroscopy*. Interscience publishers INC - New York North-Holland Company, 1955.
- [23] J. Hamilton: *Internal conversion process*. Academic Press, 1965.
- [24] D.C. Camp e G.L. Meredith: *The decays of ^{56}Co and ^{66}Ga and precise gamma-ray intensities*. Nuclear Physics A, 166:349–377.
- [25] K. Debertin e R. G. Helmer: *Gamma- and X-ray spectrometry with semiconductor detectors*. North-Holland, 1988.
- [26] Z.O. Guimarães-Filho: *Energias de raios gamma padrões: suas covariâncias e relações com as constantes fundamentais*. Tese de Doutorado, Instituto de Física da Universidade de São Paulo, 2004.
- [27] R. G. Helmer e C. D. van der Leun: *Recommended standards for γ -ray energy calibration (1999)*. Nucl. Instr. and Meth., 450:35–70, 2000.
- [28] E.R. Cohen e B.N. Taylor: *The 1986 adjustment of the fundamental physical constants*. Reviews of Modern Physics, 59(4):1121–1148, 1987.
- [29] S. Raman, C. Yonezawa, H. Matsue, H. Iimura, e N. Shinohara: *Efficiency calibration of a Ge detector in the 0.1 - 11.0 MeV region*. Nucl. Instr. and Meth., 454(e):389–402, 2000.
- [30] E.T. Journey, J.W. Starnner, J.E. Lynn, e S. Raman: *Thermal-neutron capture by ^{14}N* . Phys. Rev. C, 56(1):118–134, 1997.
- [31] S. Raman: *Proceedings of the Fourth International Symposium on Neutron-Capture Gamma-ray Spectroscopy and Related Topics*. Institute of Physics, Bristol, 1981.
- [32] C. Alderliesten e P.M. Endt: *Precision energy determination of gamma-rays from the $^{66}\text{Ga}(p,n)^{66}\text{Zn}$ decay*. Nucl.Phys. A575, 297 (1994).
- [33] G.E. Coote. Nucl. Instrum. Meth., 124(309), 1975.
- [34] G.J. Schmid, R.M. Chasteler, C.M. Laymon, H.R. Weller, E.F. Moore, C.R. Bybee, J.M. Drake, D.R. Tilley, G.Vavrina, e P.M. Wallace: *Correction Factors for γ -Ray Relative Intensities in the ^{66}Ga Radioisotope*. Nucl.Phys. A607, 139 (1996).

- [35] R. M. Castro: *Transformando o ^{152}Eu em um Padrão de Calibração de Eficiência para a Detecção de Gammas*. Tese de Doutorado, Instituto de Física da Universidade de São Paulo, USP/IF/SBI-074/2003.
- [36] ORTEC: *Quality assurance data sheet, detector model N° GEM-30185-5, serial N° 34-TP309330A*. Relatório Técnico.
- [37] ORTEC: *Model 572 Spectroscopy amplifier and pile-up rejector operating and service manual*. Relatório Técnico.
- [38] ORTEC: *Model AD114 CAMAC 16k ADC Operating and service manual*. Relatório Técnico.
- [39] ORTEC: *Model HM413 CAMAC FERA-BUS histogramming memory operating and service manual*. Relatório Técnico.
- [40] J. H. Hubbell e S. M. Seltzer: *Tables of X-Ray Mass Attenuation Coefficients and Mass Energy-Absorption Coefficients from 1 keV to 20 MeV for Elements $Z = 1$ to 92 and 48 Additional Substances of Dosimetric Interest*. National Institute of Standards and Technology, 1996.
- [41] P. Gouffon: *Manual do programa IDEFIX*. Relatório Técnico, IFUSP-LAL, 1983.
- [42] V.R. Vanin e P. Gouffon: *Tópicos avançados em tratamento estatístico de dados em Física Experimental*. LAL-IFUSP, 1996.
- [43] G.F. Knoll: *Radiation Detection and Measurement*. John Wiley & Sons, 1979.
- [44] Z. Liu, L. Peng, L. Wei, e T. Chang: *Fine analysis of the calibration curve for a HPGe spectrometer in gamma ray energy measurement*. Nucl. Instr. and Meth., 432:122–129, 1999.
- [45] G. Kenchian: *Espectroscopia Gama do ^{100}Rh* . Tese de Doutorado, Instituto de Física da Universidade de São Paulo, 1995.
- [46] A. Owensl, N. Gehrels, S.M. Pascarelle, e B.J. Teegarden: *Monte-Carlo Calculations of Ge Detector Escape-Peak Efficiencies*. IEEE transactions on nuclear science, 38(2):221–225, 1991.
- [47] F. Rohrlich e B. C. Carlson: *Positron-Electron Differences in Energy Loss and Multiple Scattering*. Phys. Rev., 93(1):38–44, Jan 1954.

- [48] L. Kim, R. H. Pratt, S. M. Seltzer, e M. J. Berger: *Ratio of positron to electron bremsstrahlung energy loss: An approximate scaling law*. Phys. Rev. A, 33(5):3002–3009, May 1986.
- [49] L. Pages, E. Bertel, H. Joffre, e L. Sklavenitis: *Energy Loss, Range, and Bremsstrahlung Yield for 10-keV to 100-MeV Electrons in Various Elements and Chemical Compounds*. Atomic Data, Vol.4, p.1, 4, 1972.
- [50] S. M. Seltzer e Martin J. Berger: *Bremsstrahlung energy spectra from electrons with kinetic energy 1 keV-10 GeV incident on screened nuclei and orbital electrons of neutral atoms with $Z = 1-100$* . Atomic data and nuclear data tables (1986), 1986.
- [51] C. Tang: *Reflection of electrons from material surfaces*. Radiation Physics and Chemistry Volume 57, Issues 3-6, March 2000, Pages 731-734.
- [52] J. Barrette, G. Lamoureux, e S. Monaro: *Geometrical correction factors for angular correlation measurements with Ge(Li) detectors*. Nucl. Inst. and Meth., 1971.
- [53] G. Gilmore e J.D. Hemingway (editores): *Practical Gamma-Ray Spectrometry*. Wiley, 1995.
- [54] Mordecai Avriel: *Nonlinear Programming: Analysis and Methods*. Dover, 2003.
- [55] X 5 Monte Carlo Team (editor): *MCNP-A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5*. Los Alamos National Laboratory, 2003.
- [56] Luiza Venturini, Nora L. Maidana, e Vito Vanin: *Aramis: A computer code to estimate total end peak efficiencies of an HPGe photon detector*. International Nuclear Atlantic Conference - INAC, 2007.
- [57] A. Hermanne, F. Szelecsnyi, M. Sonck, S. Takfics, F. Törkfinyi, e P. Van den Winkel: *New cross section data on $^{66}\text{Zn}(p,2n)^{67}\text{Ga}$ and $^{nat}\text{Zn}(p,xn)^{67}\text{Ga}$ nuclear reactions for the development of a reference data base*. Radi. and Nucl. Chem., 240(2):623–630, 1999.
- [58] K. Gul: *Calculations for the excitation functions of 3-26 MeV proton reactions on ^{66}Zn , ^{67}Zn and ^{68}Zn* . Appl. Rad. and Isot., 54:311–318, 2001.

- [59] F. Szelecsényi: *Measurement of Cross Sections of Proton Induced Nuclear Reactions on Ti, Ni, Zn, Cd, and Au up to 30 MeV and Their Application in Radioisotope Production*. Tese de Doutorado.
- [60] M. R. Bhat (editor): *Nuclear Data Sheets for $A = 66$* . National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, Upton, NY 11973, USA, 1998.