Universidade de São Paulo
Instituto de Física

Transformando o ^{152}Eu em um
Padrão de Calibração de Eficiência
para Detecção de Gamas

Ruy Morgado de Castro

Orientador: Prof. Dr. Vito Roberto Vanin

Tese Apresentada ao Instituto de Física
da Universidade de São Paulo para
obtenção do título de Doutor em Ciências

Banca Examinadora:

Prof.	Dr.	Carlos Roberto Appoloni	(UEL)
Prof.	Dr.	Nilberto Heder Medina	(IFUSP)
Prof.	Dr.	Odair Lelis Gonzalez	(CTA)
Profª.	Dra.	Thereza Borello Lewin	(IFUSP)
Prof.	Dr.	Vito Roberto Vanin	(IFUSP)

São Paulo
2003

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

FICHA CATALOGRÁFICA

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

Castro, Ruy Morgado de

Transformando o ^{152}Eu em um Padrão de Calibração de
Eficiência para Detecção de Gamas.
São Paulo, 2003

Tese (Doutoramento) Universidade de São Paulo
Instituto de Física - Depto. de Física Experimental

Orientador: Prof. Dr. Vito Roberto Vani n
Área de Concentração: Física

Unitermos:

1. Desintegração Nuclear;
2. Radioatividade;
3. Métodos Experimentais;
4. Instrumentação Nuclear;
5. Decaimento do ^{152}Eu .

USP/IF/SBI-074/2003

Aos
meus pais,
Ruy e Maria Alice.

Agradecimentos

Eu gostaria de agradecer a todas as pessoas que contribuíram direta ou indiretamente na realização deste trabalho.

Agradeço especialmente ao Professor Vito Vanin, pela sua paciência, apoio e orientação, que foram fundamentais para o desenvolvimento deste trabalho.

Também agradeço a todos os professores, alunos e funcionários do Laboratório do Acelerador Linear, pela ajuda na solução de problemas técnicos.

Ao Professor Paulo Pascholati, pelo companheirismo, sugestões, ajuda com detalhes do trabalho e na edição e revisão da tese.

Aos amigos Zwinglio e Cesar de O. Guimarães, autores de vários programas utilizados na análise de dados, pela ajuda em detalhes do trabalho e na revisão da Tese.

Aos amigos David Barg Filho, Antonio C. Hernandez e ao professor Philippe Gouffon pela ajuda na parte computacional.

À Ana Cecília de S. Lima pelo companheirismo e ajuda na edição e revisão da Tese.

Aos amigos Nora L. Maidana e Eduardo Nascimento por sugestões em detalhes do trabalho.

Aos técnicos Alexandre Malafronte, Alfredo Bonini, Carlos U. Quinarelli, Eduardo Monteiro e Renato C. Neves pelo auxílio na parte eletrônica.

Aos amigos Adriana Barioni, Carlos Takiya, Diogo Tridapali, Francis Bringas, Joel Mesa, Juan Y. Zevallos-Chávez, Marcos Amaku, Marcelo Filadelfo, Marcelo Yamashita, Marlete M. P. Assunção, Militão V. Figueredo, Patrícia Perso, Paulo B. Rios, Paulo T. D. Siqueira, Reinaldo Guarino, Renato T. Vargas, Rogério Tramontano, Ricardo F. Barbosa, Shan P. Tsai, Vanessa Chiste e Wanderley P. Sá.

Às secretárias Sandra M. Santos, Therezinha M. S. Faracini e Vera B. Canteiro pela ajuda constante.

Aos amigos da Universidade de Taubaté e do Instituto de Estudos Avançados do Centro Técnico Aeroespacial, em especial da Divisão de Sensoriamento Remoto.

Também agradeço a todos aqueles que não contribuíram diretamente com o trabalho, mas que foram muito importantes na minha formação.

Ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq), Fundação de Ampararo à Pesquisa do Estado de São Paulo (FAPESP) e Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA) pelo apoio financeiro.

À minha família, pelo apoio e incentivo.

Resumo

Neste trabalho foram desenvolvidas as etapas necessárias para transformar a fonte policromática de ^{152}Eu , $t_{1/2} = 13,525(14)$ anos, em um padrão de calibração de intensidade gama para detetores de HPGe. Foram colocados, por meio de medições de espectroscopia γ - γ do decaimento do ^{152}Eu , 4 níveis no esquema do ^{152}Sm , dos quais 1 novo, e 36 transições, sendo 25 no ^{152}Sm e 11 no ^{152}Gd , das quais 23 foram observadas pela primeira vez. O conjunto dos efeitos secundários de detecção e sua influência sobre as áreas dos picos foram modelados e validados experimentalmente. As áreas dos picos foram descritas a partir das eficiências de detecção e dos parâmetros de decaimento: razões de ramificação, frações de alimentação beta, multipolaridades das transições e coeficientes de conversão interna. As áreas foram ajustadas aos valores experimentais, obtidos em medições de espectroscopia gama simples, fornecendo estimativas para razões de ramificação e frações de alimentação beta dos esquemas de níveis do ^{152}Sm e do ^{152}Gd , de onde foram obtidas as intensidades e correlações estatísticas das transições gama mais intensas que seguem o decaimento do ^{152}Eu .

Abstract

The steps needed to transform the polychromatic ^{152}Eu , $t_{1/2} = 13,525(14)$ y, γ -ray source into a standard for efficiency calibration of HPGe detectors have been developed. Through γ - γ coincidence measurements of the ^{152}Eu decay, 4 levels were placed in the ^{152}Sm scheme, one new, and 36 transitions, 25 in the ^{152}Sm and 11 in ^{152}Gd , where 23 were observed for the first time. The influence of secondary detection effects in the peak areas were evaluated and the corresponding models have been experimentally checked. Peak-area formulas have been derived from the efficiencies and decay parameters: branching ratios, beta feeding fractions, transition multipolarities and internal conversion coefficients. The experimental data from the γ -ray singles spectrum were fitted by the Least-Squares Method, providing estimates for the branching ratios and beta feeding fractions for the level schemes of ^{152}Sm and ^{152}Gd , allowing the calculation of the intensities and statistical correlations of the most intense gamma transitions following the ^{152}Eu decay.

Conteúdo

Agradecimentos	iv
Resumo	vi
Abstract	vii
1 Introdução	1
2 Espectroscopia γ-γ do ^{152}Eu	5
2.1 Espectroscopia γ - γ	5
2.2 Arranjo Experimental	7
2.2.1 Sistema Multidetetor	7
2.3 Aquisição e Redução dos Dados	10
2.3.1 Armazenamento dos Dados em Modo Fila	10
2.3.2 Separação dos Dados	11
2.3.3 Coincidências Totais e Acidentais	13
2.3.4 Matriciação e Simetrização dos Dados	14
2.4 Medições	14
2.5 Análise das Matrizes de Coincidência	17
2.6 Calibrações	19
2.6.1 Calibração de Largura a Meia Altura	19
2.6.2 Calibração Precisa de Energia	20
2.6.3 Calibração de Eficiência	22
2.7 Resultados	24
2.7.1 Níveis	27
2.7.2 Transições Gama	28
2.7.3 Energias	33
2.7.4 Intensidades	34
3 Efeitos de Detecção	36
3.1 Modelando a Área de um Pico	37
3.2 Soma	39
3.2.1 Soma Gama-Gama	39

3.2.2	Soma de Gamas e Betas	41
3.3	Empilhamento	49
3.3.1	Rejeição de Empilhamento	49
3.3.2	Correção Devido a Taxa de Contagens	50
3.3.3	Determinação da Área do Pico de Empilhamento	53
3.3.4	Empilhamento no ^{152}Eu	54
3.4	Correlação Angular	56
3.4.1	Desenvolvendo o Formalismo	56
3.4.2	Fator de Atenuação Geométrico da Correlação pelo Detetor	58
3.4.3	Correlação Angular no ^{152}Eu	60
3.5	Geometria de Detecção	67
3.5.1	Definição da Geometria	67
3.5.2	Distância Fonte-Detetor	68
3.5.3	Simetria Axial	72
3.5.4	Reprodutibilidade da Geometria	73
3.5.5	Definição do Arranjo	75
3.6	Contaminante	75
3.6.1	Esquema de Decaimento do ^{154}Eu	76
3.6.2	Determinação da Contaminação do ^{154}Eu	76
4	Espectroscopia Simples do ^{152}Eu	78
4.1	Arranjo Experimental	78
4.1.1	Detetor e Eletrônica	79
4.1.2	Geometria	80
4.2	Aquisição e Redução de Dados	81
4.2.1	Aquisição de Dados	81
4.2.2	Redução dos Dados	81
4.3	Determinação das Áreas dos Picos	83
4.4	Medições do ^{152}Eu	84
4.4.1	Baixa Taxa de Contagens	85
4.4.2	Alta Estatística	88
4.4.3	Radiação de Fundo	88
4.5	Calibrações	88
4.5.1	Largura	89
4.5.2	Energia	90
4.5.3	Eficiência	90
4.5.4	Eficiência Total - Razão Total para Pico	93
4.6	Seleção de Transições	96
4.6.1	Contaminação de ^{154}Eu	97
4.6.2	Fundo	98
4.6.3	Multipletos no ^{152}Eu	98
4.6.4	Efeitos Secundários de Detecção	98

5	Modelando a Observação do Decaimento do ^{152}Eu	101
5.1	Método Geral	102
5.2	Aplicando o Método	104
5.2.1	Esquema de Níveis Simplificado	104
5.2.2	^{152}Gd	105
5.2.3	^{152}Sm	108
5.3	Intensidade γ	110
6	Discussão	113
6.1	Método Experimental	113
6.2	Padrão γ	116
6.3	Perspectivas	117
7	Conclusão	118
A	Fontes padrão	120
A.1	Relação das Fontes Primárias para Calibração de Eficiência	120
A.2	Construção	123
	Bibliografia	125

Capítulo 1

Introdução

O aumento de precisão na calibração de eficiência dos detetores de radiação gama tem resultado na melhoria da qualidade dos dados de intensidade de emissão gama, abrindo novas perspectivas de medida para o estudo das propriedades específicas dos núclídeos. Dada a seletividade dos processos nucleares, nenhuma reação nuclear permite a determinação de todos os níveis nucleares de um núclídeo. Assim, além do interesse geral na observação da emissão dos fótons pelo núcleo, em certos casos, o estudo dos esquemas de níveis nucleares por meio das transições eletromagnéticas é insubstituível.

Os procedimentos utilizados para calibrar a eficiência de detetores de germânio hiperpuro (HPGe) permitem obter uma precisão relativa de aproximadamente 1%. Este valor está limitado, basicamente, pela falta de um procedimento de calibração adequado, além da impossibilidade prática na obtenção de um conjunto bem amplo de fontes cuja atividade seja conhecida com precisão suficiente.

Para realizar uma calibração precisa de eficiência é necessário um procedimento que considere desde aspectos da geometria de detecção, passando pelos detalhes da produção de fontes, até as particularidades da construção do detetor. Também é necessário levar em consideração os efeitos secundários de detecção, bem como, controlar a precisão do posicionamento geométrico das fontes e o tempo morto de contagem. Além disso, uma calibração de eficiência absoluta deve ser realizada com várias fontes monocromáticas, cujas energias se distribuam ao longo de todo o intervalo de energia de interesse. No entanto, obter todas estas condições, com um conjunto de fontes com atividades calibradas e com meias-vidas adequadas, é muito difícil e custoso. Vale lembrar que os princípios básicos para a calibração de eficiência não são novos [1], mas eles, ainda, são pouco aplicados cotidianamente [2].

Na prática, para a calibração de eficiência, é preferível utilizar fontes radioativas com muitas transições gama, de modo que a observação de uma única fonte, ou no

máximo duas, seja suficiente para calibrar o sistema. Neste caso, acaba-se utilizando uma calibração de eficiência relativa. Este procedimento, embora minimize os erros devidos à precisão no posicionamento da fonte e no tempo morto, exige que se leve em conta muitos fenômenos secundários de detecção associados à contagem de uma fonte com esquema de decaimento complexo.

As correções dos efeitos secundários de detecção, para arranjos experimentais típicos, são da ordem de alguns por cento e introduzem grandes incertezas nas intensidades das transições gamas. Como as fontes também são calibradas com uma incerteza em torno de um por cento, cria-se um ciclo onde não é importante ter uma precisão alta na atividade porque as correções têm uma incerteza alta e como nem todas correções são levadas em consideração, as atividades não são obtidas com uma boa precisão. Conseqüentemente, a incerteza relativa em uma calibração de eficiência é da ordem de um por cento [3].

Para quebrar este ciclo é necessário determinar os parâmetros de decaimento de uma fonte secundária de calibração, tentando minimizar os efeitos secundários de detecção e realizando as correções quando estas forem significativas. Além dos efeitos secundários, também é necessário levar em consideração as correlações estatísticas entre os dados experimentais de intensidade de emissão, geralmente negligenciadas na literatura.

Um exemplo desta correlação pode ser observado nos dados de intensidades das transições mais intensas que seguem o decaimento do ^{152}Eu , $T_{1/2} = 13,525(14)$ anos, apresentados no TECDOC-619 [4], que corresponde à compilação dos dados de intensidade de 14 transições obtidas por 31 Laboratórios. Da análise desses dados percebe-se a existência da correlação estatística ¹ entre as intensidades das transições, conforme pode ser observado na Figura 1.1, onde as intensidades de emissão para vários pares de transição gama obtidas em cada um dos experimentos são representadas por gráficos de pontos.

Muito embora os coeficientes de correlação entre os pares de transições gama tenham sido calculados, eles não refletem corretamente a dependência estatística devido às condições experimentais utilizadas nos diversos Laboratórios. Uma tentativa de extrair estes coeficientes com um método não paramétrico revelou-se infrutífera [5].

Assim, o objetivo deste trabalho é desenvolver os procedimentos necessários para determinar as probabilidades de decaimento das transições gama que seguem o de-

¹A correlação estatística entre as intensidades (I), das transições γ_1 e γ_2 , pode ser obtida por:

$$\rho = \frac{\langle (I_{\gamma_1} - \langle I_{\gamma_1} \rangle) \cdot (I_{\gamma_2} - \langle I_{\gamma_2} \rangle) \rangle}{\sigma_{I_{\gamma_1}} \cdot \sigma_{I_{\gamma_2}}}$$

Figura 1.1: Cada gráfico apresenta os dados de probabilidade de emissão de um par de transições gama que seguem o decaimento do ^{152}Eu . São plotados os dados obtidos por 31 experimentos relatados no TEC-DOC 619 [4]. Os valores plotados são as diferenças em relação ao valor médio das medições, normalizadas pelas incertezas. Em cada gráfico também é mostrado o coeficiente de correlação, ρ , obtido.

caimento do ^{152}Eu ² com precisão relativa melhor que 1%, estimando as correlações estatísticas e transformando esse nuclídeo em padrão secundário ³ de intensidade gama de alta precisão. Para isto é necessário efetuar uma calibração de eficiência que utilize muitas fontes monocromáticas com características bem conhecidas e de alta precisão, levando em consideração a resposta efetiva de um detetor.

A fonte de ^{152}Eu foi escolhida por emitir muitos gamas entre 100 e 1400 keV, com intensidade superior a 0,01 gama por decaimento. O ^{152}Eu decai por emissão β^- ao ^{152}Gd e por Captura Eletrônica e emissão β^+ ao ^{152}Sm . De acordo com a literatura [7], existem no decaimento do ^{152}Eu 14 transições com intensidade superior a 1% por decaimento e mais uma centena de transições, não utilizadas para fins de calibração, com intensidade inferior a este limite.

Mesmo tendo sido bastante utilizado e razoavelmente estudado, o ^{152}Eu apresenta várias inconsistências no esquema de decaimento relatado. Na literatura, a maior parte dos trabalhos somente fornece valores de intensidade para as transições mais intensas e poucos apresentam um esquema de decaimento completo e com informações consistentes para o conjunto das transições gama.

²Para facilitar a leitura do trabalho o decaimento do ^{152}Eu , $T_{1/2} = 13,525(14)$ anos, é citado apenas como decaimento do ^{152}Eu .

³Um nuclídeo constitui um padrão primário [6] de calibração quando é possível determinar as probabilidades de decaimento gama, ou intensidades, de suas transições sem utilizar significativamente medições com radiação gama. Geralmente estes nuclídeos possuem um esquema de decaimento simples e sua atividade pode ser calibrada com precisão. Assim, um nuclídeo constitui um padrão secundário quando as probabilidades de emissão gama dependem de medições de intensidade gama.

Neste trabalho, são apresentadas no Capítulo 2, as medições de coincidência γ - γ realizadas. Por meio delas foi possível observar novos níveis e transições e assim obter um esquema de decaimento do ^{152}Eu com melhor precisão.

No Capítulo 3 são estudados os efeitos secundários de detecção que podem influenciar na determinação das intensidades das transições. Em seguida, no Capítulo 4, são apresentadas as medições de espectroscopia gama simples do ^{152}Eu . No Capítulo 5, são obtidas as intensidades e as correlações estatísticas das transições a partir dos parâmetros de decaimento.

A discussão sobre a metodologia e os diversos modelos desenvolvidos, bem como das perspectivas de obtenção de um padrão secundário, estão apresentadas no Capítulo 6. Finalmente, no Capítulo 7 estão as conclusões do trabalho.

Capítulo 2

Espectroscopia γ - γ do ^{152}Eu

Por meio da avaliação dos dados de intensidade gama disponíveis na Literatura [7], verificou-se que as transições gama de alta intensidade do ^{152}Eu são bem conhecidas, com aproximadamente 30 trabalhos em 30 anos, dos quais 21 trazem informações experimentais úteis [8–28]. No entanto, há grandes discrepâncias nos valores das intensidades de muitas transições fracas e intermediárias. Além disso, em muitos trabalhos o esquema de decaimento foi elaborado somente a partir de resultados de medições de espectroscopia gama simples.

O esquema de decaimento foi pouco estudado por meio de medições de coincidência γ - γ , com apenas 5 trabalhos [10, 16, 20, 23, 24] nestes últimos 30 anos. Na Tabela 2.1 são apresentadas, de forma resumida, as características dos experimentos efetuados. Pode-se observar que a medição mais completa do esquema de decaimento data de 1972 [20]. Desde então, os estudos realizados pouco contribuíram para melhorar o conhecimento do esquema de decaimento do ^{152}Eu , pois as medições foram pouco extensas e também não tiraram proveito do progresso tecnológico recente.

Portanto, para verificar as informações disponíveis na literatura, que apresentam grandes diferenças nas intensidades e muitos detalhes do esquema a serem esclarecidos [7, 29], tornou-se necessário estudar o esquema de decaimento do ^{152}Eu . Para tanto, foram realizadas medições de coincidência γ - γ .

2.1 Espectroscopia γ - γ

Inicialmente foi realizada uma medida de coincidência γ - γ na qual foram usados 4

Trabalho	Detetores	Nº de <i>Gates</i>	Janelas de coincidência - <i>Gates</i>
Riedinger [24]	NaI x Ge(Li)	12	Gd: 344, 367, 411 e 520 Sm: 121, 244, 444, 488, 719, 964, 1085 e 1112
Barrette [23]	Ge(Li) x Ge(Li)	4	Gd: 344 Sm: 121, 244, e 688
Baker [20]	Ge(Li) x Ge(Li)	45	Gd: 271, 315, 344, 367, 411, 503, 520, 534, 586, 674, 678, 713, 764, 778, 930, 1089 e 1109-1112 Sm: 121, 244, 251, 269-271, 275, 295, 315-316, 329-330, 416, 444, 488, 563-566, 656, 674, 686-688, 719, 769, 810, 839-841, 867, 919, 926, 963-944, 1005, 1085, 1109-1112, 1212, 1408, 1457 e 1528
Ismail [16]	NaI(Tl) x Ge(Li)	2	Sm: 121 e 275
Stewart [10]	Ge(Li) x Ge(Li)	11	Gd: 344, 411, 586 e 779 Sm: 121, 244, 444, 688, 842, 919 e 964

Tabela 2.1: Características resumidas dos trabalhos de coincidência γ - γ do ^{152}Eu . Os valores das energias associadas às janelas de coincidência estão em keV.

detetores HPGe: 3 coaxiais para gamas e um planar, para raios X e gamas de baixas energias. Desta experiência, cujos resultados já foram apresentados [30], foram obtidas duas matrizes de dados: uma com a coincidência entre os detetores coaxiais e a outra com a coincidência entre o detetor de raio X e os demais detetores.

A análise destes dados permitiu inserir as transições γ de 212 e 237 keV no esquema de níveis do ^{152}Sm e confirmar a existência de uma transição de 563 keV, não observada anteriormente. Este experimento também sugeriu a existência de dois novos níveis no esquema do ^{152}Sm com energias de 1776 e 1779 keV.

Uma nova medida, com arranjo experimental ligeiramente diferente e outra fonte de ^{152}Eu , foi planejada a partir dos resultados desta medição. As principais mudanças foram relacionadas à contaminação de ^{154}Eu na fonte de ^{152}Eu , à eficácia da blindagem de chumbo entre os detetores (necessária para evitar que fótons espalhados em um detetor fossem detetados no outro) e às grandezas que determinam a estatística de contagem de gamas de alta energia: o tempo de contagem, a atividade da fonte e eficiência dos detetores.

2.2 Arranjo Experimental

Para as medições de espectroscopia γ - γ foi utilizado o sistema multidetetor de atividade residual [31] do Laboratório do Acelerador Linear, que permite a utilização de até 8 detetores simultaneamente.

As medições foram realizadas com 3 ou 4 detetores de germânio hiper-puro (HPGe). Na Tabela 2.2 são apresentadas as principais características dos detetores utilizados.

Detetor	Volume (cm ³)	Eficiência relativa a NaI(Tl) (%)	Resolução (keV)		Fabricante
			121 keV	1408 keV	
1	58	10	1,5	2,4	Ortec
3	89	15	1,5	2,4	Ortec
4	160	33	1,5	2,4	Ortec
7	196	45	1,4	2,5	Eurisys

Tabela 2.2: Principais características dos detetores utilizados nas medições de coincidência γ - γ . Cada detetor está identificado por um número, que corresponde ao número da porta do Multidetetor que foi usada. Na coluna 4 estão os valores de resolução medidos no espectro total, com cerca de 3 meses de tempo de contagem.

Os detetores foram colocados de modo que os eixos de simetria de detetores vizinhos formassem ângulos de 90°, conforme mostrado na Figura 2.1. Foram utilizadas blindagens de chumbo a fim de evitar a coincidência entre a detecção de um gama por espalhamento Compton em um detetor e a detecção do gama espalhado no outro. Foram utilizados blocos de chumbo com uma espessura aproximada de 5 cm para a blindagem lateral entre os detetores e placas de chumbo de espessura aproximada de 1 cm entre as faces dos detetores. Um esquema do arranjo utilizado pode ser visto na Figura 2.1. Neste arranjo, a fonte foi posicionada em um orifício na intersecção das blindagens frontais.

2.2.1 Sistema Multidetetor

O sistema multidetetor [31], mostrado na Figura 2.2, é composto por 3 partes: as linhas lentas e as rápidas dos detetores e o Controlador.

Figura 2.1: Vista superior do arranjo experimental das medições de espectroscopia γ - γ , mostrando a disposição da blindagem de chumbo entre os detetores. A fonte foi posicionada em um orifício na intersecção das blindagens frontais.

Figura 2.2: Diagrama esquemático do sistema multidetector. É mostrado o Controlador e as linhas lenta e rápida associadas a um detetector. Ver texto para a identificação dos módulos.

Linha Lenta

A eletrônica de coincidência lenta, cuja resolução em tempo está na faixa de alguns microsegundos, é responsável pelo tratamento dos sinais provenientes dos detetores para a determinação das energias dos gamas.

A linha lenta era constituída por um amplificador de espectroscopia ORTEC 572 [32] ou 673 [33], do qual foram utilizadas: a saída linear unipolar (Uni.), a saída lógica de rejeição de empilhamento (*Inh.*) e de ocupado (*busy*). A primeira estava conectada ao conversor analógico digital (*Analogic to Digital Converter* - ADC) e as duas últimas ao Controlador. O ADC utilizado é um modelo AD413A [34] da ORTEC, padrão CAMAC, do tipo de aproximações sucessivas com 4 entradas de 8k canais, cada uma.

Linha Rápida

A eletrônica de coincidência rápida verifica a coincidência em tempo dos eventos detetados num intervalo de tempo de até 200 ns, com uma resolução na faixa de nanosegundos.

A linha rápida era composta por um amplificador rápido (*Timing Filter Amplifier* - TFA) ORTEC 454 [35] conectado a um discriminador de fração constante (*Constant Fraction Discriminator* - CFD) ORTEC 473A [36], que fornecia sinais para referência de tempo por meio de pulsos lógicos rápidos no padrão NIM. Uma saída do CFD era conectada ao Controlador e a outra saída foi atrasada para posicionar adequadamente o sinal de parada do conversor de tempo (*Time to Digital Converter* - TDC) LeCroy 2228A [37], que fornece a diferença em tempo entre o sinal de *START* gerado pelo Multidetetor e o sinal de *STOP* de cada um dos sinais atrasados dos CFD's.

Controlador

O Controlador MULTI [31] opera verificando a coincidência dos sinais provenientes dos amplificadores e discriminadores em vários níveis, que correspondem a refinamentos sucessivos da validação de coincidência, e controla a aquisição de dados.

Inicialmente, o MULTI verifica a existência da coincidência entre dois detetores utilizando os sinais da linha rápida. Nesta primeira etapa, existindo a coincidência, o ADC é zerado e é gerado um sinal de *START* para o TDC, criando uma referência de tempo para as coincidências. Em seguida, é verificada a existência de sinais válidos de energia nos detetores correspondentes aos sinais de tempo gerados pela linha rápida, utilizando os sinais lógicos de ocupado e de empilhamento provenientes dos amplificadores de espectroscopia. Caso os sinais sejam válidos, são abertas as portas

dos ADC's e dos TDC's para a conversão. Na etapa seguinte, é verificado se ocorreram as conversões, dentro do tempo máximo de conversão dos digitalizadores. Caso existam pelo menos duas conversões de sinais de energia e pelo menos duas conversões de sinais de tempo, a aquisição dos dados é realizada.

Se alguma das condições não é satisfeita, o sistema retorna ao estado de espera e fica aguardando por uma nova coincidência.

2.3 Aquisição e Redução dos Dados

A aquisição dos dados no sistema Multidetetor é controlada pelo programa MULTI [38], sendo os dados de energia e tempo, de cada evento de coincidência, armazenados em arquivos em modo fila.

Posteriormente, os dados são separados e agrupados pelas coincidências entre detetores. Também são obtidos os respectivos espectros de tempo. Depois é verificada a estabilidade das medições ao longo da medida. Em seguida, os dados são separados em coincidências totais e acidentais, permitindo que os dados (entre pares de detetores) sejam agrupados. Para facilitar o tratamento dos dados são criadas matrizes bidimensionais, onde cada canal da matriz é proporcional à energia dos gamas envolvidos na coincidência.

2.3.1 Armazenamento dos Dados em Modo Fila

Para cada coincidência detetada, é armazenada uma máscara, que informa os detetores que participaram da coincidência, além das energias dos gamas detetados e os intervalos de tempo com o sinal de referência do controlador.

No arquivo de dados são armazenados: um byte para a máscara; 2 bytes, que correspondem aos 8k canais de histogramação do ADC, para a energia em cada detetor; 2 bytes, que correspondem aos 2k canais de histogramação do TDC, para o intervalo de tempo em cada detetor. Portanto, para cada evento, com a participação de 2, 3 ou 4 detetores, são armazenados respectivamente 9, 13 ou 17 bytes.

Os dados são armazenados na memória do computador e são gravados, em blocos de 64 kbytes, em um arquivo em disco. Quando o tamanho do arquivo se aproxima de 3 Mbytes ele é fechado e cria-se um novo arquivo. Assim, em cada arquivo são registrados aproximadamente 300 mil eventos.

2.3.2 Separação dos Dados

A primeira etapa da redução de dados consiste em construir, a partir dos arquivos fila, espectros unidimensionais com a projeção em energia para cada detetor. Por meio destes espectros pode-se verificar a estabilidade do sistema, fornecendo subsídios para o tratamento dos dados.

Neste processo é realizada uma compressão dos dados, onde os espectros unidimensionais de 8k canais são reduzidos a 4k canais, pela soma dos conteúdos de cada par de canais vizinhos. Na Figura 2.3 pode-se observar um espectro típico obtido neste processo.

Figura 2.3: Espectro de raios γ de uma fonte de ^{152}Eu para um dos detetores, obtido a partir da projeção e compressão de um arquivo fila. A dispersão em energia é de aproximadamente 0,64 keV/canal.

Por meio destes espectros é possível acompanhar a estabilidade do sistema de aquisição de dados ao longo do tempo de contagem. A verificação é necessária porque pequenas variações do ganho ou da linha de base (zero) da eletrônica, mais especificamente nos amplificadores lineares e ADCs, comprometem a resolução em energia dos espectros.

A verificação da estabilidade é realizada, basicamente, acompanhando a posição, largura e área de três fotopicos nos vários espectros. Pelo acompanhamento das posições são obtidos os coeficientes para a relocação dos espectros. No acompanhamento da largura a meia altura (FWHM) de um fotopico é verificado se houve uma alteração de ganho, durante a medição, que possa degradar a resolução em energia do espectro.

Dependendo da estabilidade do sistema em cada série de medições, os eventos do arquivo fila eram relocados e reunidos em um espectro. No entanto, quando os picos eram mais largos que a média, os dados referentes ao arquivo fila eram descartados. Na Figura 2.4, pode ser observada a evolução da posição e da largura de um fotopico em vários espectros.

Figura 2.4: Acompanhamento da posição e largura correspondente ao fotopico da transição de 121 keV durante uma medição. No Gráfico A é mostrado o acompanhamento da posição do fotopico nos Detetores 1 (típico) e 7 (pior caso), cujas posições variavam entre os canais 190 e 192 e 181 e 188, respectivamente. Na Gráfico B é mostrado o acompanhamento da largura no detector 7. A largura do fotopico, no detector 1, permaneceu constante dentro das flutuações estatísticas e, por isso, não foi apresentada.

A relocação dos eventos de um arquivo fila é feita pelo Programa Corrigeganho [39], a partir de dois parâmetros, um termo constante e outro linear.

Juntamente com a relocação dos eventos, as coincidências são separadas de acordo com o par de detetores envolvidos no evento, armazenando-se as informações correspondentes às energias e aos intervalos de tempo.

2.3.3 Coincidências Totais e Acidentais

Os espectros de tempo são obtidos a partir das diferenças de tempo entre os eventos em cada par de detetores. Como as respostas em tempo dos detetores e suas eletrônicas associadas são ligeiramente diferentes, os espectros obtidos para cada par de detetores são também ligeiramente diferentes. Na Figura 2.5 é mostrado um espectro de tempo característico, onde são observadas tanto as coincidências Reais quanto as Acidentais, conforme discussão a seguir.

Figura 2.5: Espectro das diferenças de tempo para gamas de alta energia. São mostradas as regiões usadas para separar as coincidências Totais e Acidentais. A dispersão em tempo é de 0,25 ns/canal e a resolução é de ~ 15 ns. A escala vertical é logarítmica.

As coincidências Acidentais são obtidas a partir de sinais que não provêm do mesmo decaimento, não existindo, portanto, uma relação em tempo entre estes sinais. Com isto, o espectro da diferença de tempo dos sinais possui uma distribuição aproximadamente uniforme.

As coincidências Reais devem-se a gamas provenientes de um mesmo decaimento e, portanto, têm sinais de tempo relacionados. O espectro das diferenças de tempo tem uma distribuição parecida com uma gaussiana.

Deste modo, os espectros das diferenças de tempo obtidos nas medições γ - γ são uma superposição das coincidências Reais e Acidentais, conforme pode ser observado na Figura 2.5.

Observando o espectro de tempo pode-se definir a região de tempo em torno dos picos como a de coincidências Totais, que correspondem às coincidências Reais mais as coincidências Acidentais. As coincidências Acidentais são obtidas a partir de duas regiões de tempo, uma à direita e outra à esquerda do pico de coincidência, tendo cada uma delas a metade da largura da janela de tempo utilizada para as coincidências Totais. Então, para obter as coincidências Reais é necessário subtrair as coincidências Acidentais das coincidências Totais.

2.3.4 Matriciação e Simetrização dos Dados

A partir dos arquivos de dados relocados em energia e janelados em tempo, são constituídas matrizes bidimensionais γ - γ , de $4k \times 4k$ canais², para facilitar a leitura e armazenamento dos dados. Como os dados de interesse são apenas os de coincidência, a matriz pode ser simetrizada se a calibração em energia nas duas dimensões da matriz forem iguais. Esta tarefa é realizada pelo programa SIMETRIZA [40].

2.4 Medições

Como o objetivo destas medições foi estabelecer o esquema de decaimento do ^{152}Eu , era importante obter uma estatística de contagens suficientemente elevada. Assim, foi utilizada uma fonte bastante ativa e uma alta eficiência de detecção, durante um grande período de tempo.

Neste experimento foi utilizada uma fonte de ^{152}Eu produzida no Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), com um encapsulamento especial para as medições de espectroscopia γ - γ e atividade aproximadamente igual a 1,0 MBq. A distância entre a fonte e as faces das cápsulas dos detetores foi de aproximadamente 6 cm. Com isto, obteve-se uma taxa de contagem de aproximadamente 300 eventos por segundo, sendo armazenados em média 3,5 arquivos fila de ~ 300 mil eventos em uma hora de aquisição de dados.

Foram realizadas medições, de forma não contínua, durante 3 meses, com um tempo útil de aproximadamente 65 dias e sendo obtidos 15 Gb de dados. Na Figura 2.6 podem ser observadas as variações da posição e largura de um fotopico ao longo de toda medição. Uma faixa de dois dias da Figura 2.6, em torno do 60º dia de medição, pode ser observada com mais detalhe na Figura 2.4.

Figura 2.6: Variação da posição e largura do fotopico correspondentes a transição de 121 keV no Detetor 1 ao longo da medição.

No espectro gama simples, obtido a partir do arquivo fila para cada detetor, foram ajustados os picos correspondentes aos gamas de 244, 778 e 1408 keV do ^{152}Eu , com os quais foi obtida uma calibração de energia por uma reta. Com isto, os dois parâmetros de relocação são definidos para que a calibração em energia após a relocação seja $E = 0,50 \cdot x$ keV, onde x é o número do canal. A relocação dos eventos de um arquivo fila foi feita pelo Programa Corrigeganho [39].

As coincidências Totais e Acidentais foram obtidas analisando os espectros de diferença de tempo para cada par de detetores. As janelas de tempo Totais, ver Figura 2.7, variaram entre 67 e 133 ns. Estas janelas eram propositadamente largas, pois janelas mais estreitas poderiam reduzir sensivelmente a estatística de contagem, principalmente das coincidências em baixa energia onde a marcação de tempo gera uma distribuição de tempo dos eventos menos precisa.

Na Figura 2.8, são mostrados os espectros das coincidências, Totais e Acidentais, obtidas numa janela colocada em torno dos picos correspondentes à transição gama de 344 keV que segue o decaimento do ^{152}Eu .

Finalmente foram obtidas duas matrizes de coincidência, a Total e a Acidental, com cerca de $8,5 \cdot 10^8$ e $1,7 \cdot 10^8$ eventos, respectivamente.

Figura 2.7: Espectros de tempo característicos obtidos para todas as coincidências em diferentes pares de detetores. Quando era definida uma coincidência γ - γ de alta energia, ou seja, eram selecionadas janelas em energia em torno de dois gamas de alta energia, o espectro de tempo obtido era semelhante ao mostrado na Figura 2.5. A dispersão em tempo de cada canal era de 0,25 ns.

Figura 2.8: Espectros de raios γ obtidos com as coincidências, Totais e Acidentais, com o pico correspondente a transição gama de 344 keV. A dispersão em energia é de 0,50 keV/canal.

2.5 Análise das Matrizes de Coincidência

A análise dos dados das matrizes $\gamma\text{-}\gamma$ foi realizada ajustando-se os picos de coincidência bidimensionais pelo Programa Bidim [41], cuja tela inicial é mostrada na Figura 2.9. Na janela de navegação pode ser observada a matriz das coincidências totais e, na janela principal, a região correspondente desta matriz.

A função utilizada [41] para ajustar os picos bidimensionais é composta por um pico gaussiano, calhas associadas com uma função degrau (devido aos espalhamentos e à coleção incompleta de carga) e um fundo plano. Com isto estão representados os principais efeitos de detecção em coincidência.

Figura 2.9: Tela do programa Bidim. Na janela do navegador onde pode ser observada a matriz simetrizada das coincidências. Na tela principal pode ser observada a região indicada por um quadrado na janela do navegador. Nesta região podem ser observadas algumas coincidências e as calhas associadas as transições gamas mais intensas.

Para realizar um ajuste é necessário selecionar a região de interesse da matriz e fornecer os parâmetros iniciais de ajuste (posição dos picos e de calhas externas, largura a meia altura do pico, etc.). Ainda é possível vincular e/ou fixar as posições de picos e calhas bem como usar calibrações de largura a meia altura do pico. Na Figura 2.10 é mostrada uma tela do Programa Bidim por meio da qual podem ser fornecidas, pelo usuário, algumas estimativas dos parâmetros de ajuste. Pode-se realizar o ajuste de vários picos (multipletos) em uma mesma região e também ajustar calhas externas provenientes de espalhamentos de transições gamas não observadas na região de ajuste.

Figura 2.10: Tela do Programa Bidim onde são fornecidas, pelo usuário, algumas estimativas dos parâmetros de ajuste.

Figura 2.11: Resultado de um ajuste utilizando o Programa Bidim. Pode-se observar a coincidência entre as transições de 919 e 735 keV, que confirma a existência do nível de 1776 keV no ^{152}Sm .

O programa fornece os parâmetros ajustados, tais como posição, amplitude e largura dos picos e das calhas, e calcula a área do pico. Ele também apresenta os indicadores de qualidade do ajuste, tais como chi-quadrado reduzido, resíduos e convergência. O programa permite que todos estes resultados sejam salvos em arquivos. Também podem ser exportados pelo programa os dados brutos, os valores obtidos e os resíduos para a região ajustada. Na Figura 2.11 pode ser observada uma tela com o resultado de um ajuste.

2.6 Calibrações

Para facilitar os ajustes dos picos, diminuindo o número de parâmetros a serem ajustados, e ajudar na identificação/separação dos picos que aparecem em multipletos, foi realizada uma calibração da largura a meia altura dos picos. Além da calibração de largura foi realizada uma calibração precisa de energia, que também foi utilizada para identificar os picos sem ambiguidade. Para determinar as intensidades das novas transições foi realizada uma calibração de eficiência através das coincidências das transições mais intensas do ^{152}Eu .

2.6.1 Calibração de Largura a Meia Altura

Os pontos de calibração foram obtidos das larguras dos picos de coincidências com a transição de 121 keV. Foram utilizadas preferencialmente as coincidências com picos de grande área e, nos casos onde foi ajustado um multipeto, apenas um dos picos foi utilizado. O gráfico da largura a meia altura em função da posição é mostrado na Figura 2.12. No ajuste da curva, pelo Método dos Mínimos Quadrados [42], aos dados experimentais foi utilizada uma parábola (função utilizada no Programa Bidim). Pode-se observar que as larguras têm um comportamento bem definido, mas apresentam flutuações superiores às suas incertezas. Assim, esta calibração foi utilizada apenas para os picos de baixa estatística, onde a incerteza da área devido a outros parâmetros é muito mais significativa.

Figura 2.12: *Largura a meia altura dos picos ajustados em função da posição. A linha contínua representa a curva de calibração ajustada.*

2.6.2 Calibração Precisa de Energia

Mesmo com uma calibração preliminar de energia (0,50 keV/canal), escolhida para a relocação dos espectros, foi necessário realizar uma calibração precisa para determinar as energias das novas transições.

Durante a realização desta calibração, observou-se uma dependência da posição do pico de uma transição com a posição do pico da transição coincidente, observada no outro detetor [43], conforme pode ser observado na Figura 2.13. Na parte inferior da Figura é mostrada a energia obtida para a transição de 344 keV em relação à posição das transições em coincidência, calculada simplesmente com o ganho de 0,50 keV/canal estabelecido na relocação dos espectros. A hipótese mais provável para esta dependência é a interferência entre os ADC's do conversor AD413A [34] da ORTEC, que contém 4 ADC's em um único módulo CAMAC.

Para contornar este problema foi incluída na função de calibração de energia uma dependência com a posição da transição coincidente. Portanto, na calibração de energia pelo Método dos Mínimos Quadrados [42] foram utilizados 7 parâmetros, sendo uma constante, 5 parâmetros relacionados à coordenada x da matriz de dados e 1 parâmetro relacionado à coordenada y, conforme a expressão:

$$E = a_0 + \sum_{i=1}^5 a_i \cdot x^i + a_6 \cdot y \quad (2.1)$$

Figura 2.13: Dependência da calibração de energia com a posição da transição coincidente, para os picos de coincidência envolvendo a transição de 344 keV. Na parte inferior os pontos correspondem aos valores calculados utilizando como calibração o ganho de 0,50 keV/canal, estipulado na relocação dos dados, e a reta inclinada mostra a energia calculada de uma transição em relação à posição da transição coincidente. Na parte superior, é mostrado o resultado da calibração precisa em energia obtida para a transição de 344 keV e a reta constante mostra a energia de referência da transição de 344 keV.

onde x e y são as posições nas coordenadas x e y da matriz de dados, respectivamente. Assim x é obtido através da expressão:

$$x = \frac{C - C_R}{C_R}$$

onde:

C é a posição, em canais, do pico de absorção total de energia e
 C_R é um canal de referência, que neste caso é igual a 1500.

No ajuste foram levados em consideração os resultados da análise da matriz de coincidências totais, em que as coincidências reais predominam. Além disso, só foram utilizados os ajustes de pico para os quais o chi-quadrado reduzido fosse pequeno (menor que 2) e que não correspondessem a uma das transições observadas pela primeira vez ou posicionadas no esquema neste trabalho.

Foram incluídos no ajuste 270 dados que utilizam como referência aproximadamente 95 transições gama apresentadas na literatura [7]. O chi-quadrado reduzido obtido foi 0,84 com uma probabilidade de ser excedido de aproximadamente 90%. Os resíduos

obtidos no ajuste são mostrados na Figura 2.14. O valor ajustado para o parâmetro a_6 , que indica a dependência da energia calculada com a posição da transição coincidente na coordenada y , é 0,026(4) keV.

Figura 2.14: *Resíduos, normalizados pela incerteza, da calibração precisa de energia da matriz de coincidência γ - γ .*

Usando a calibração de energia obtida, foram interpoladas as energias de todas transições observadas, independente de terem sido levadas em consideração na calibração. Novamente só foram levados em consideração os picos para os quais os ajustes resultaram em um qui-quadrado reduzido menor que 2. A média ponderada das energias obtidas, levando em consideração as suas covariâncias, foi o valor adotado para a energia das transições. Foram utilizados 431 dados e determinadas as energias de 133 transições. O chi-quadrado reduzido obtido foi 0,47, indicando uma superestimação dos desvios-padrões. No entanto, decidiu-se manter essas estimativas dos desvios-padrões porque os diversos efeitos levados em conta: não linearidade dos ADC's; interdependência dos canais dos ADC's e superposição de detetores, devem gerar erros maiores em certas regiões, sem que seja possível definir quais dados foram afetados.

2.6.3 Calibração de Eficiência

Para determinar as intensidades das transições gama, observadas na medição de coincidência, foi realizada uma calibração de eficiência. Esta calibração baseou-se na matriz de coincidências acidentais [44–46].

A área de um pico na matriz de coincidências acidentais, envolvendo as transições γ_1 e γ_2 , pode ser calculada pela equação:

$$A_{\gamma_1, \gamma_2} = \Omega \cdot P_{\gamma_1} \cdot \varepsilon_{\gamma_1} \cdot \Omega \cdot P_{\gamma_2} \cdot \varepsilon_{\gamma_2} \cdot \Delta t \cdot \tau \quad . \quad (2.2)$$

onde:

Ω	é a atividade da fonte;
P_{γ_1} e P_{γ_2}	são as probabilidades de emissão dos gamas 1 e 2, respectivamente;
ε_{γ_1} e ε_{γ_2}	são as eficiências de detecção dos gamas 1 e 2, respectivamente;
Δt	é o tempo de contagem e
τ	é a largura da janela de tempo para coincidências do sistema.

Selecionando as coincidências acidentais com a transição γ_2 , pode-se calcular a eficiência relativa entre dois gamas, γ_1 e uma transição gama de referência, conforme a expressão:

$$\frac{\varepsilon_{\gamma_1}}{\varepsilon_{\gamma_r}} = \frac{A_{\gamma_1, \gamma_2}}{A_{\gamma_r, \gamma_2}} \cdot \frac{P_{\gamma_r}}{P_{\gamma_1}} \quad . \quad (2.3)$$

Na calibração de eficiência foi utilizado o espectro das coincidências acidentais com a transição gama de 778 keV e a transição de referência foi também a de 778 keV. A transição de 778 keV foi escolhida por ter uma alta estatística e conseqüentemente, ter mais coincidências, além de estar em uma região do espectro com poucos picos.

Na Figura 2.15 é mostrada a curva de eficiência relativa obtida para as energias superiores a 200 keV. Para as energias entre 121 e 200 keV a eficiência foi estimada por uma interpolação linear entre a eficiência obtida para a transição de 121 keV e a eficiência interpolada de 200 keV.

O comportamento da eficiência segue um padrão bem definido, como na calibração de largura, mas as suas flutuações são superiores às suas incertezas, indicando que alguma fonte de erro não foi levada em consideração. Em conseqüência, a incerteza foi estimada em 5 % para a região entre 200 e 1400 keV e 10% para a região entre 120 e 200 keV.

Para o ajuste da curva de eficiência relativa em função da energia foi utilizada a expressão (2.4).

$$\varepsilon(x) = e^{\sum_{i=0}^2 a_i \cdot x^i} \quad (2.4)$$

Figura 2.15: Curva de eficiência relativa média dos detetores do sistema de coincidência γ - γ calculada usando as coincidências acidentais com os gamas da transição de 778 keV.

onde $x(E_\gamma)$ é dado por:

$$x(E_\gamma) = \frac{E_\gamma - E_R}{E_R}$$

sendo E_R a energia de referência, igual a 778 keV neste caso.

2.7 Resultados

Foram observados, e tiveram suas áreas calculadas, aproximadamente 1500 picos na matriz de coincidências totais e 1200 na matriz de acidentais. Sendo que, cerca de 950 desses picos estão nas duas matrizes.

Uma coincidência era considerada real quando a área final da coincidência (ou seja, o resultado da subtração da área do pico na matriz de totais da área do mesmo pico na matriz de acidentais) fosse maior que o triplo da sua incerteza.

O principal resultado obtido foi a confirmação do esquema de decaimento para as transições gama de intensidades superiores a 0,05%/decaimento exceto as de 1084 e 896 keV [7]. No entanto, quando são levadas em consideração as transições de baixa

intensidade, as mudanças no esquema de decaimento são significativas, com a inclusão no mesmo de 36 transições e 4 níveis.

A partir dos resultados obtidos foi possível aprimorar o esquema de decaimento do ^{152}Eu . Nas Figuras 2.16 e 2.17 são mostrados os esquemas de níveis do ^{152}Gd e ^{152}Sm , respectivamente.

Figura 2.16: Esquema de níveis do ^{152}Gd observado a partir do decaimento do ^{152}Eu . Em azul são mostradas as novas transições observadas ou posicionadas no esquema de níveis, neste trabalho.

Figura 2.17: Esquema de níveis do ^{152}Sm observado a partir do decaimento do ^{152}Eu . Em azul são mostradas as novas transições observadas ou posicionadas no esquema de níveis, neste trabalho.

2.7.1 Níveis

Foram colocados 4 novos níveis no esquema de decaimento do ^{152}Eu por captura eletrônica, sendo que um deles já foi sugerido em trabalho anterior, dois já haviam sido observados a partir do decaimento β^- do ^{152}Pm e um foi observado pela primeira vez neste trabalho.

Nível de 1083 keV

A colocação do nível de 1083 keV foi baseada na existência deste nível no esquema do ^{152}Sm [47], observado a partir de outros decaimentos, e por meio das coincidências da transição de 210 keV (que decai do nível de 1293 keV) com as transições de 272 e 961 keV, que alimentam os níveis de 810 e 121 keV, respectivamente. Estas transições são bastante fracas e estão próximas a outras bem mais intensas. Na Figura 2.18 é mostrada, em um gráfico de curvas de nível, a região em torno do pico de coincidência dos gamas de 209 com os de 272 keV.

Figura 2.18: Curvas de nível (ajustado à esquerda e experimental à direita) da região em torno do pico de coincidência 209 - 272 keV, onde as regiões mais escuras representam as que têm maior número de contagens. Observa-se, também, o pico da coincidência entre as transições de 212 e 271 keV, bem como as calhas associadas às transições de 271 e 275 keV e de 212 keV. Muito embora a área do pico de coincidência entre as transições gama de 212 e 271 keV pareça, na figura, ser muito maior que a área do pico coincidência entre as transições de 209 e 272 keV, as suas áreas são semelhantes. A impressão é causada pela calha devido às coincidências com a transição de 271 keV.

Nível de 1221 keV

O nível de 1221 keV está sugerido na literatura [47] como um nível do ^{152}Sm , decaindo por meio de duas transições duvidosas, de 514 e 855 keV. Neste trabalho, estas transições foram observadas em coincidência com a transição de 391 keV, como pode ser observado no esquema do ^{152}Sm , Figura 2.17. A transição de 855 keV também foi observada em coincidência com as transições de 150 e 244 keV.

A transição de 391 keV, embora sugerida na literatura [47] decaindo do nível de 1613 keV, também apresenta coincidências, no limite da precisão estatística, com as transições de 1112 e 867 keV que decaem do nível de 1233 keV, sugerindo a existência de um dublete na energia de 391 keV.

Nível de 1776 keV

O nível de 1776 keV, da mesma maneira que o nível de 1083 keV, foi observado no esquema do ^{152}Sm [47] a partir de outros decaimentos. Foram observadas duas transições, 735 e 813 keV, que decaem deste nível, ver Figura 2.17.

A transição de 735 keV, já atribuída ao decaimento do ^{152}Eu [7], está em coincidência com as transições de 674 e 919 keV, que decaem do nível de 1041 keV, e a transição de 813 keV, que decai para o nível de 963 keV e está em coincidência com as transições de 963 e 841 keV.

Nível de 1779 keV

A existência do nível de 1779 keV foi deduzida a partir das transições de 756 e 969 keV, já atribuídas ao decaimento do ^{152}Eu [7], a primeira em coincidência com as transições de 901 e 656 keV e a segunda, com as transições de 688 e 810 keV. Levando em consideração as propriedades de decaimento, pode-se atribuir spin 2^+ , 3^+ ou 4^+ para este nível.

2.7.2 Transições Gama

Foram colocadas no esquema de níveis, do ^{152}Sm e do ^{152}Gd , 36 transições que seguem o decaimento do ^{152}Eu , sendo que 23 foram observadas pela primeira vez neste trabalho e outras 13, embora observadas ou sugeridas em outros trabalhos [7, 8, 10, 12, 20, 26, 29, 47], ainda não haviam sido posicionadas no esquema. Essas transições e algumas outras, que tiveram as suas intensidades recalculadas, são apresentadas na Tabela 2.3.

E_γ (keV)	Intensidade 10^{-5} dec.	Z	Níveis		Comentários (I_γ em 10^{-5} fótons/dec)
			E_i (keV)	E_f (keV)	
150,09(10)	0,83(6)	Sm	1371,6	1221,5	Nova
174,80(22)	1,38(18)	Gd	930,5	755,3	Observado por Kawaldeep [8], com $I_\gamma = 21(1)$, posição não confirmada.
195,22(15)	2,04(18)	Gd	1318,5	1123,1	Observado por Stewart [10], com $I_\gamma = 6(1)$, posição não confirmada.
209,41(13)	1,2(4)	Gd	1643,3	1434,0	Anterior $I_\gamma = 5,5(5)$ [7].
209,976(26)	4,3(7)	Sm	1292,7	1082,8	Desdobra a transição de 209,41(13) keV de $I_\gamma = 5,5(5)$.
212,559(12)	20,0(28)	Sm	1022,9	810,44	Não posicionada.
237,106(26)	6,24(22)	Sm	1529,8	1292,7	Não posicionada.
270,35(28)	1,0(2)	Gd	1318,5	1047,5	Desdobra a transição de 271 keV.
272,39(10)	0,88(11)	Sm	1082,8	810,44	Nova.
286,53(11)	1,28(12)	Sm	1579,3	1292,7	Desdobra a transição de 285,98(3) keV de $I_\gamma = 10,0(6)$.
287,10(12)	0,81(7)	Gd	1605,2	1318,5	Desdobra a transição de 285,98(3) keV de $I_\gamma = 10,0(6)$.
315,10(3)	39,4(13)	Gd	930,5	615,56	Anterior $I_\gamma = 49,6(17)$ [7].
316,2(2)	10,2(4)	Sm	1022,9	706,91	Anterior $I_\gamma = 3,1(10)$ [7].
320,08(5)	2,18(10)	Sm	1612,9	1292,7	Não posicionada.
324,914(26)	4,97(24)	Gd	1643,3	1318,5	Desdobra a transição de 324,83(3) keV de $I_\gamma = 73,8(15)$.
328,764(26)	3,47(20)	Gd	1643,3	1314,7	Desdobra a transição de 329,425(21) keV de $I_\gamma = 129(6)$.
345,538(10)	10,1(6)	Sm	1579,3	1233,8	Desdobra a transição de 344,2785(12) keV de $I_\gamma = 2658(12) \cdot 10$.
348,751(15)	1,78(10)	Sm	1371,6	1022,9	Nova.

Tabela 2.3: Resultados da medição de espectroscopia γ - γ . As duas primeiras colunas indicam, respectivamente, a energia e a intensidade das transições. As colunas 3, 4 e 5 indicam a colocação da transição no esquema de decaimento proposto neste trabalho. Finalmente, na coluna 6 é comentado o conhecimento prévio acerca da transição [7] e a eventual influência na intensidade de outra transições do esquema de decaimento.

E_γ (keV)	Intensidade 10^{-5} dec.	Z	Níveis		Comentários (I_γ em 10^{-5} fótons/dec.)
			E_i (keV)	E_f (keV)	
354,16(15)	0,97(9)	Gd	1109,0	755,39	Nova.
358,45(7)	1,50(9)	Sm	1730,2	1371,6	Desdobra a transição de 357,26(5) keV de $I_\gamma = 4,0(5)$.
391,17(8)	1,49(8)	Sm	1612,9	1221,5	Não posicionada.
401,25(11)	0,59(6)	Sm	1085,8	684,7	Observada por Varnell [26], posição não confirmada.
476,43(10)	1,54(10)	Sm	1769,3	1292,7	Nova.
514,77(6)	0,38(3)	Sm	1221,5	706,9	Nova.
535,33(14)	1,85(23)	Sm	1769,3	1233,8	Não posicionada.
589,74(9)	1,32(9)	Sm	1612,9	1022,9	Nova.
683,70(9)	4,9(3)	Sm	1769,3	1085,8	Não posicionada.
707,15(7)	1,33(8)	Sm	1730,2	1022,9	Nova.
734,12(12)	0,83(7)	Sm	1757,1	1022,9	Desdobra a transição de 735,43(4) keV de $I_\gamma = 5,8(10)$.
735,43(4)	4,32(19)	Sm	1776,5	1041,1	Não posicionada.
756,17(3)	4,22(19)	Sm	1779,1	1022,9	Não posicionada.
813,20(6)	3,91(20)	Sm	1776,5	963,3	Nova.
850,10(13)	0,77(7)	Gd	1605,2	755,3	Nova.
855,19(7)	1,94(14)	Sm	1221,5	366,4	Nova.
919,73(4)	6,12(28)	Sm	1730,2	810,4	Desdobra a transição de 919,337(4) keV de $I_\gamma = 429(5)$. Sugerida por Baker [20].
961,08(4)	10,9(9)	Sm	1082,8	121,7	Nova.
968,64(4)	7,8(3)	Sm	1779,1	810,4	Observado por Kawaldeep [8], com $I_\gamma = 3,7(24)$, posição não confirmada.
970,22(9)	1,2(3)	Gd	1314,7	344,2	Nova.
1084,41(5)	10,3(7)	Sm	1769,1	684,7	Observado por Meyer [12], $I_\gamma = 224(8)$.
1318,38(17)	1,58(14)	Gd	1318,5	0	Nova.

Tabela 2.3: (Continuação) Resultados da medição de espectroscopia γ - γ . As duas primeiras colunas indicam, respectivamente, a energia e a intensidade das transições. As colunas 3, 4 e 5 indicam a colocação da transição no esquema de decaimento proposto neste trabalho. Finalmente, na coluna 6 é comentado o conhecimento prévio acerca da transição [7] e a eventual influência na intensidade de outras transições do esquema de decaimento.

As novas transições observadas e/ou confirmadas são fracas e não afetam significativamente o balanço de intensidade do esquema de decaimento, sendo as únicas exceções as linhas de 896 e 1084 keV. No entanto, é importante ressaltar alguns resultados obtidos.

Cascatas 271-703 keV

Verificou-se a existência de duas transições de 271 e 703 keV que estão em duas cascatas, ver Figura 2.16. Na primeira cascata, a mais intensa, uma transição gama de 703 keV do nível de 1318 keV para o nível de 615 keV é seguido pela transição de 271 keV para o nível de 344 keV. Na outra cascata, o gama de 271 keV do nível de 1318 keV para o nível de 1047 keV é seguido pela transição gama de 703 keV deste nível para o de 344 keV.

Transições de 315 e 316 keV

Na análise das coincidências envolvendo as transições de 315 e 316 keV, percebeu-se uma diferença significativa entre as intensidades apresentadas na literatura [7] e as obtidas nas coincidências. Como consequência, as intensidades para estas linhas foram recalculadas.

Transição de 320 keV

A transição de 320 keV, que é apresentada na literatura pertencendo ao esquema de decaimento do ^{152}Eu sem posição determinada, está em coincidência com as transições de 329, 926 e 1293 keV. A dificuldade em posicioná-la anteriormente pode ter sido devida à observação de coincidências com as transições de 1005 e 867 keV. Estas coincidências, porém, correspondem a um efeito secundário de detecção, o empilhamento dos gamas de 244 keV com um raio X proveniente da fluorescência do Pb da blindagem, induzida pelo gama de 121 keV.

Transição de 919 keV

Verificou-se que existem duas transições de 919 keV no esquema do ^{152}Sm . Uma já bem estabelecida no esquema de decaimento. A segunda, conforme sugerido por Baker [20], foi observada em coincidências com gamas de 444, 688 e 810 keV que decaem do nível de 810 keV do ^{152}Sm .

Transição de 896 keV

A linha de 896 keV foi atribuída ao escape simples da transição gama de 1408 keV. Este pico é observado em coincidência com a transição de 121 keV. Na Figura 2.19, pode-se observar que a linha de 896 keV é claramente mais larga que a devido à transição de 901 keV. Além da indicação da largura, a intensidade da linha é compatível com a intensidade do escape simples da transição de 1408 keV.

Figura 2.19: Região do espectro mostrando as linhas de 896, 901 e 906 keV. Observa-se que a linha de 896 keV possui uma largura superior à da transição gama de 901 keV.

A colocação anterior desta linha no esquema decaimento do ^{152}Eu deve-se provavelmente à significativa diferença entre a energia atribuída anteriormente a esta transição, 896,58(9) keV, em relação à energia do escape simples da transição de 1408 keV, que sofre uma forte influência da borda Compton da transição de 1112 keV.

Transição de 1084 keV

As características da transição gama de 1084 keV, observada neste experimento, contrastam fortemente com as apresentadas na literatura [12], $I_\gamma=0,224(8)$ fótons por decaimento. A má determinação desta intensidade pode ser atribuída à dificuldade de ajuste dos fotopicos nesta região, dominada pela transição de 1085 keV, de grande intensidade, com interferência do “ombro” devido ao empilhamento das transições de 121 e 964 keV.

A existência de um nível de 1084 keV decaindo diretamente para o estado fundamental foi descartada, pois este nível deveria possuir spin 1 ou 2 e, caso tivesse a sua forte intensidade apresentada na literatura [7], as suas coincidências deveriam ser facilmente observadas.

Outras Transições

As poucas linhas citadas na literatura [7] e que não foram observadas neste trabalho, ver Tabela 2.4, possuem intensidades muito baixas, sendo que a soma das intensidades atribuídas a todas as linhas não ultrapassa a $2 \cdot 10^{-4}$ desintegrações por decaimento. É difícil avaliar se essas linhas correspondem a transições que seguem o decaimento do ^{152}Eu ou definir que efeitos secundários de detecção provocaram as estruturas observadas. Apenas para a transição de 406,74(15) keV foi possível determinar uma origem: empilhamento da soma das transições de 121 e 244 keV com o raio X do Sm.

$E_\gamma(\text{keV})$ [7]	I_γ (10^{-5} fótons/dec) [7]
379,37(6)	0,83(21)
595,61(1)	3,1(17)
696,87(19)	2,9(10)
1001,1(3)	4,6(10)
1139(1)	1,3(3)
1674,30(6)	6,0(8)

Tabela 2.4: *Energias e intensidades das linhas não observadas neste trabalho.*

2.7.3 Energias

As energias dos níveis foram determinadas a partir das energias das transições pelo MMQ. O chi-quadrado reduzido obtido foi 1,05 com uma probabilidade de ser excedido de aproximadamente 50 %. As energias dos novos níveis são: 1082,817(22), 1221,68(5), 1776,56(5) e 1779,09(4) keV. Finalmente, as energias para as transições que não haviam sido determinadas anteriormente, ver Secção 2.6.2, foram obtidas por diferença de energia dos níveis. Os resultados obtidos neste trabalho são apresentados na Tabela 2.3.

2.7.4 Intensidades

A partir das eficiências, pode-se determinar a intensidade gama de uma das transições envolvidas na coincidência.

A área de uma coincidência real é dada pela expressão:

$$A_{\gamma_1, \gamma_2} = \Omega \cdot \Delta t \cdot P_{\gamma_1} \cdot \phi_{\gamma_2|\gamma_1} \cdot \varepsilon_{\gamma_1} \cdot \varepsilon_{\gamma_2} \cdot \omega_{\gamma_1, \gamma_2} \quad (2.5)$$

onde:

$\phi_{\gamma_2|\gamma_1}$ é a probabilidade de ocorrência de γ_2 dado que ocorre γ_1 e
 $\omega_{\gamma_1, \gamma_2}$ é correlação angular entre γ_1 e γ_2 levando em consideração o arranjo experimental e o número de detetores.

Substituindo na expressão (2.5) o produto da atividade da fonte pelo tempo de medida e levando em consideração a calibração de eficiência relativa, obtemos:

$$A_{\gamma_1, \gamma_2} = cte \cdot P_{\gamma_1} \cdot \phi_{\gamma_2|\gamma_1} \cdot \varepsilon_{r\gamma_1} \cdot \varepsilon_{r\gamma_2} \cdot \omega_{\gamma_1, \gamma_2} \quad (2.6)$$

onde cte é uma constante de normalização.

Dependendo da posição da transição na cascata gama, ver Figura 2.20, a probabilidade de emissão do γ_1 pode ser determinada pela expressão:

$$P_{\gamma_1} = \frac{A_{\gamma_1, \gamma_2}}{cte \cdot \phi_{\gamma_2|\gamma_1} \cdot \varepsilon_{r\gamma_1} \cdot \varepsilon_{r\gamma_2} \cdot \omega_{\gamma_1, \gamma_2}} \quad (2.7)$$

Para determinar a probabilidade de emissão do γ_2 deve-se, inicialmente, obter a probabilidade de ocorrência de γ_2 dado γ_1 , por:

$$\phi_{\gamma_2|\gamma_1} = \frac{A_{\gamma_1, \gamma_2}}{cte \cdot P_{\gamma_1} \cdot \varepsilon_{r\gamma_1} \cdot \varepsilon_{r\gamma_2} \cdot \omega_{\gamma_1, \gamma_2}} \quad (2.8)$$

Figura 2.20: Esquema de decaimento simplificado, mostrando uma cascata gama.

Como $\phi_{\gamma_2|\gamma_1}$ depende das intensidades das transições que decaem do nível j , temos que:

$$\phi_{\gamma_2|\gamma_1} = \frac{I_{\gamma_2}}{I_{\gamma_2} + \sum_{I_{\gamma} \neq I_{\gamma_2}} I_{\gamma}} \quad (2.9)$$

onde I_{γ} é a intensidade total da transição, ou seja, leva em consideração a probabilidade de decaimento gama e de conversão interna.

A probabilidade de emissão gama pode ser escrita como:

$$P_{\gamma_2} = \frac{I_{\gamma_2}}{1 + \alpha_{\gamma_2}} \quad (2.10)$$

onde α_{γ} é o coeficiente de conversão interna.

A partir das expressões (2.7) e (2.10) foram determinadas as intensidades das novas transições. A constante de normalização utilizada foi determinada pela média das constantes obtidas de várias cascatas gamas, de transições conhecidas, e o valor obtido foi $1,074(17) \cdot 10^6$ contagens. Os resultados obtidos para as probabilidades de decaimento das transições são mostrados na Tabela 2.3.

A partir dos resultados para a intensidade das transições obteve-se a alimentação dos níveis. Como as novas transições têm uma intensidade muito baixa, os balanços das alimentações dos níveis só foram alterados com a inclusão da alimentação para os níveis de 1776 e 1779 keV do ^{152}Sm .

Capítulo 3

Efeitos de Detecção

As características da detecção de fótons decorrem de propriedades da radiação eletromagnética e da fonte de radiação. Fótons com energia na faixa dos raios X e gamas, ao interagirem com o material que circunda a fonte e o detetor, são espalhados com perda significativa de energia, mas ainda têm boa probabilidade de serem detetados.

A emissão de fótons não é uniforme ao longo do tempo. Por um lado, as fontes radioativas podem emitir vários fótons em cascata, num intervalo de tempo menor que o tempo de discriminação do detetor. Por outro lado, podem ocorrer duas ou mais desintegrações quase simultaneamente nas fontes.

Assim, nos experimentos reais, em que a manutenção do tempo de contagem dentro de limites práticos exige a utilização de fontes com atividades relativamente elevadas, próximas ao detetor e dentro de uma blindagem, diversos efeitos secundários precisam ser levados em conta.

Estes efeitos secundários de detecção podem afetar significativamente a área de um pico. Por isso, foi necessário modelar e parametrizar estes efeitos, para elaborar uma experiência em que eles fossem pouco significativos ou que a eventual correção fosse mínima, ou até mesmo desprezível.

Neste capítulo, são estudados os principais efeitos secundários e a sua influência na área de um pico. Verificou-se experimentalmente, tanto quanto possível, as características dos equipamentos e arranjos utilizados, visto que existem referências [48, 49] que apontam que as características fornecidas pelos fabricantes nem sempre são confiáveis e nem se mantêm constantes ao longo do tempo.

3.1 Modelando a Área de um Pico

Para estudar os efeitos de detecção é necessário conhecer a área de um pico devido a uma transição gama. Quando não existem efeitos secundários de detecção, a área pode ser definida [50, 51], em primeira aproximação, pela expressão:

$$\acute{Area}_\gamma = \Omega \cdot \Delta t \cdot P_\gamma \cdot \varepsilon(E_\gamma) \quad (3.1)$$

onde:

- Ω é a atividade da fonte;
- Δt é o tempo de contagem;
- P_γ é a probabilidade de emissão do gama e
- $\varepsilon(E_\gamma)$ é a eficiência de detecção do gama de energia E_γ .

Considerando o decaimento de um nuclídeo que alimenta vários níveis, conforme é mostrado na Figura 3.1, pode-se definir:

- $\gamma_{i,k}$ como a transição gama entre do nível i para o nível k ;
- $E_{i,k}$ a energia da transição do nível i para o nível k e
- f_i a fração de alimentação do nível i pela transição β .

Figura 3.1: Esquema de decaimento genérico.

Levando em consideração os parâmetros de decaimento da fonte, podemos escrever o número de gamas da transição entre os níveis i e k emitidos, $N_{\gamma_{i,k}}$ como:

$$N_{\gamma_{i,k}} = \Omega \cdot \Delta t \cdot P_{\gamma_{i,k}} = \frac{1}{1 + \alpha_{i,k}} \cdot p_i \cdot \kappa_{i,k} , \quad (3.2)$$

onde:

- $\alpha_{i,k}$ é o coeficiente de conversão interna da transição $\gamma_{i,k}$;
- p_i é a população do nível i e
- $\kappa_{i,k}$ é a razão de ramificação da transição do nível i para o nível k .

A população do nível i tem uma contribuição da alimentação β do nível:

$$\Omega \cdot \Delta t \cdot f_i , \quad (3.3)$$

e outra da alimentação das transições eletromagnéticas de níveis mais excitados.

Das características do decaimento β de um nuclídeo, podemos perceber que o somatório das alimentações diretas dos níveis que seguem o decaimento do nuclídeo é igual a 1, o mesmo acontecendo com o somatório das razões de ramificação de um mesmo nível. Estas relações são importantes para a determinação dos parâmetros de decaimento, porque estabelecem vínculos entre as alimentações dos níveis e, também, entre as razões de alimentação das transições que decaem de um mesmo nível.

Com isto, podemos escrever a área dos picos a partir dos parâmetros do esquema de decaimento, das eficiências de detecção, dos coeficientes de conversão interna e da atividade da fonte (por meio da população do nível, p_i). Substituindo estes parâmetros de decaimento na expressão (3.1), a área da transição gama entre os níveis i e k do esquema de decaimento pode ser descrita por:

$$A(\gamma_{i,k}) = \frac{1}{1 + \alpha_{\gamma_{i,k}}} \cdot p_i \cdot \kappa_{i,k} \cdot \varepsilon(E_{i,k}) . \quad (3.4)$$

Esta expressão relaciona a área de um pico com os parâmetros de decaimento e a eficiência de detecção mas não inclui os efeitos secundários de detecção. Para completá-la é preciso modelar estes efeitos.

As contribuições às áreas dos picos pelos efeitos secundários de detecção podem ser calculados basicamente com os mesmos parâmetros usados nesta expressão. Nas seções seguintes, estão os termos necessários ao desenvolvimento do modelo.

3.2 Soma

O efeito de soma ocorre quando um gama é detetado simultaneamente com outro gama, ou com qualquer efeito produzido por qualquer outra radiação, proveniente de uma mesma sequência de eventos de um decaimento nuclear. Assim, quando os níveis intermediários têm uma meia-vida muito pequena, o sistema de detecção não é capaz de observar as radiações separadamente.

Nos itens seguintes, estão desenvolvidos em detalhes os modelos usados para estimar a soma de um raio γ com outro e a de um γ com uma radiação β ou seu bremsstrahlung. A soma entre gama e raio X de fluorescência atômica, devido tanto à conversão interna quanto à captura eletrônica, pode ser tratada de forma análoga à soma de dois gamas.

A literatura [52–61] descreve muitos métodos para a correção de soma, alguns deles mais analíticos, outros mais empíricos e até mesmo baseados em simulação de Monte Carlo. Neste trabalho optou-se pela abordagem analítica, mas descrevendo literalmente as expressões de soma e deixando para um trabalho posterior a utilização de fórmulas matriciais que descrevam todas as somas simultaneamente [55].

3.2.1 Soma Gama-Gama

A área de um pico, correspondente a uma transição gama, pode tanto ser aumentada quanto diminuída pelo efeito de soma, o que está relacionado ao esquema de decaimento do núcleo.

Levando em consideração o decaimento com a emissão de dois gamas em cascata, ver Figura 3.1, por exemplo $\gamma_{i,j}$ e $\gamma_{j,k}$, que sejam detetados simultaneamente (ou seja, com uma diferença de tempo menor que a resolução temporal do sistema), temos que o pico devido à transição $\gamma_{i,k}$ tem um acréscimo de área correspondente a:

$$N(E_{i,j} + E_{j,k}) = p_i \cdot \kappa_{i,j} \cdot \kappa_{j,k} \cdot \frac{\varepsilon(E_{i,j})}{1 + \alpha_{i,j}} \cdot \frac{\varepsilon(E_{j,k})}{1 + \alpha_{j,k}} \cdot \omega(\gamma_{i,j}, \gamma_{j,k}) \quad (3.5)$$

onde $\omega(\gamma_{i,j}, \gamma_{j,k})$ é a função de correlação angular entre $\gamma_{i,j}$ e $\gamma_{j,k}$. Neste caso, o ângulo entre as direções de emissão dos gamas envolvidos na soma é de aproximadamente 0° .

Se as transições $\gamma_{i,j}$ e $\gamma_{j,k}$ são detetadas simultaneamente, as áreas dos picos correspondentes a estas transições no espectro sofrem um decréscimo. Neste caso, um evento que deveria ser atribuído a um gama de energia $E_{\gamma_{i,j}}$ está sendo somado com qualquer efeito produzido por $\gamma_{j,k}$, tanto com à detecção completa quanto parcial (Compton) da energia do fóton $\gamma_{j,k}$. Assim, no cálculo da perda da área, devemos considerar a eficiência total de detecção e não apenas a eficiência de detecção (de pico).

A eficiência total de detecção é, geralmente, obtida pelo produto da eficiência de pico pela razão total para pico. A razão total para pico é definida como a razão entre o número total de eventos detetados devido ao gama de energia E e a área do pico na energia E .

O decréscimo de área para o pico correspondente a uma transição $\gamma_{i,j}$, que está em cascata com uma transição genérica $\gamma_{l,m}$, é dado por:

$$\bar{N}(\gamma_{i,j} \langle \gamma_{l,m} \rangle) = \begin{cases} p_i \cdot \phi_{(i,j)(l,m)} \cdot \frac{\varepsilon(E_{i,j})}{1+\alpha_{\gamma_{i,j}}} \cdot \frac{r(E_{l,m}) \cdot \varepsilon(E_{l,m})}{1+\alpha_{l,m}} \cdot \omega(\gamma_{i,j}, \gamma_{l,m}) & , \quad j > l \\ p_l \cdot \phi_{(l,m)(i,j)} \cdot \frac{\varepsilon(E_{i,j})}{1+\alpha_{\gamma_{i,j}}} \cdot \frac{r(E_{l,m}) \cdot \varepsilon(E_{l,m})}{1+\alpha_{l,m}} \cdot \omega(\gamma_{l,m}, \gamma_{i,j}) & , \quad m > i \end{cases} \quad (3.6)$$

onde:

$r(E)$ é a razão total para pico na energia E ;
 $\phi_{(i,j)(l,m)}$ é a probabilidade condicional da ocorrência de $\gamma_{l,m}$ dado que ocorra $\gamma_{i,j}$.

Para cada gama $\gamma_{l,m}$ em coincidência com $\gamma_{i,j}$, o decréscimo na área total é:

$$\bar{N} = \sum_{l,m} \bar{N}(\gamma_{i,j} \langle \gamma_{l,m} \rangle) \quad (3.7)$$

Levando em consideração os efeitos de soma para a área da transição $\gamma_{i,k}$, tem-se:

$$\begin{aligned} A(\gamma_{i,k}) = & \frac{\varepsilon(E_{i,k})}{1+\alpha_{\gamma_{i,k}}} \cdot \left(p_i \cdot \kappa_{i,k} - p_i \cdot \kappa_{i,k} \cdot \kappa_{k,l} \cdot \frac{r(E_{k,l}) \cdot \varepsilon(E_{k,l})}{1+\alpha_{k,l}} - \omega(\gamma_{i,k}, \gamma_{k,l}) \dots \right) \\ & + p_i \cdot \kappa_{i,j} \cdot \kappa_{j,k} \cdot \frac{\varepsilon(E_{i,j})}{1+\alpha_{\gamma_{i,j}}} \cdot \frac{\varepsilon(E_{j,k})}{1+\alpha_{\gamma_{j,k}}} \cdot \omega(\gamma_{i,k}, \gamma_{k,l}) \quad . \end{aligned} \quad (3.8)$$

Escrevendo a equação (3.8) em termos das alimentações dos níveis e da atividade da fonte temos:

$$A(\gamma_{i,k}) = \frac{\varepsilon(E_{i,k})}{1 + \alpha_{\gamma_{i,k}}} \cdot \Omega \cdot \Delta t \cdot f_i \cdot \kappa_{i,k} \cdot \left(1 - \kappa_{k,l} \cdot \frac{r(E_{k,l}) \cdot \varepsilon(E_{k,l})}{1 + \alpha_{k,l}} - \omega(\gamma_{i,k}, \gamma_{k,l}) \dots \right) + \Omega \cdot \Delta t \cdot f_i \cdot \kappa_{i,j} \cdot \kappa_{j,k} \cdot \frac{\varepsilon(E_{i,j})}{1 + \alpha_{\gamma_{i,j}}} \cdot \frac{\varepsilon(E_{j,k})}{1 + \alpha_{\gamma_{j,k}}} \cdot \omega(\gamma_{i,k}, \gamma_{k,l}) \quad (3.9)$$

A expressão para a área do pico da transição $\gamma_{i,k}$ é um exemplo típico das equações obtidas para as áreas das transições que pertençam a esquemas de decaimento com muitas linhas. Para esquemas de decaimento complexos como o do ^{152}Eu , pode ser bastante complicado escrever as expressões para as áreas dos picos. Entretanto, dependendo da precisão desejada na determinação das áreas, pode-se simplificar as expressões selecionando as transições gamas de maior intensidade.

3.2.2 Soma de Gamas e Betas

Outro efeito secundário de detecção é a soma do beta, ou seu bremsstrahlung, com os gamas que seguem o decaimento. Esta soma ocorre quando um beta atravessa os vários materiais e entra na região ativa do detetor, produzindo um evento ou acrescentando carga a outro evento causado, por exemplo, pela detecção de um fóton. Também pode ocorrer de um beta passar por algum material externo à região ativa, produzir fótons de bremsstrahlung que são detetados e eventualmente somados com outros gamas.

Assim a área de uma transição gama, onde ocorre este efeito de soma, pode ser descrita de maneira geral por:

$$\acute{Area}_{\gamma} = \frac{\Omega \cdot \Delta t \cdot \varepsilon(E_{\gamma}) \cdot P_{\gamma}}{1 + \alpha_{\gamma}} \cdot (1 - f_{\beta} \cdot \varepsilon_{\beta}) \quad (3.10)$$

onde:

- f_{β} é a probabilidade de emissão do beta e
- ε_{β} é a eficiência de detecção do beta.

Na eficiência de detecção do beta, ε_β , deve-se considerar a eficiência geométrica ($\varepsilon_{geo\beta}$) combinada com a soma das probabilidades de um beta (P_{Beta}) ou de um fóton de bremsstrahlung (P_{Brems}) atingirem a região ativa do detector, ou seja:

$$\varepsilon_\beta = \varepsilon_{geo\beta} \cdot (P_\beta + P_{Brems}) \quad (3.11)$$

A eficiência geométrica pode ser estimada através das dimensões do arranjo experimental e das características do detector. Levando em consideração os dados da Secção 3.5.5, a eficiência geométrica foi estimada em aproximadamente 0,54 %.

A probabilidade do beta atingir a região ativa pode ser determinada pela probabilidade de transmissão dos betas através da região inativa do detector (encapsulamento de Al e camada morta de Ge).

A probabilidade do fóton de bremsstrahlung penetrar a camada ativa pode ser considerada como a taxa de produção de fóton para um beta que atinge a camada morta do detector, descontada a absorção no restante da camada morta.

Soma com os Betas

Para que este efeito ocorra, a energia do beta deve ser suficiente para alcançar a região ativa do detector. Para avaliar a soma de betas com gamas é necessário confrontar as propriedades das fontes utilizadas com as características do arranjo experimental, determinando a energia necessária para que o beta penetre na região ativa do detector.

Energia limiar para a detecção do beta

A energia limiar para a detecção do beta depende do arranjo experimental utilizado e envolve o conhecimento dos materiais e dimensões da manufatura da fonte e da geometria fonte-detector, além de detalhes da construção do detector.

A perda da energia do beta depende da distância percorrida no material. A energia residual do beta pode ser determinada pela diferença entre a energia inicial do beta e a perda da energia causada pela sua passagem nos diversos materiais. Assim:

$$E_\beta = E_{\beta_{\max}} - \mu(E_\beta, x) \quad (3.12)$$

onde:

- E_β é a energia do beta;
 $E_{\beta max}$ é a energia máxima do beta e
 $\mu(E_\beta, x)$ é a perda da energia do beta ao percorrer a distância x .

Para determinar a energia do beta ao chegar ao detetor é necessário conhecer a perda de energia do beta no invólucro plástico da fonte, no ar, no invólucro de alumínio do detetor e na camada morta de Ge do detetor. Na Figura 3.2 é mostrada a taxa de perda de energia de um beta em função da sua energia para cada um desses materiais [62].

Figura 3.2: Taxa de perda de energia de um beta em função da sua energia para vários materiais [62].

Com as características dos materiais e suas respectivas espessuras, representadas de maneira esquemática na Figura 3.3, pode-se estimar a energia limiar do beta, a partir da interpolação dos dados de atenuação da energia de elétrons em cada material.

Levando em consideração que as fontes utilizadas neste trabalho, produzidas pelo IPEN [63] e pela Amersham [64], ver Apêndice 1, possuem invólucros de materiais e espessuras diferentes, a energia final de um mesmo beta será um pouco diferente em cada caso.

Muito embora a taxa de perda de energia do beta no ar seja pequena em relação a outros materiais, a espessura de ar a ser percorrida é significativa, 20 cm. Assim,

Figura 3.3: Representação esquemática do arranjo experimental.

pode-se estimar que a perda da energia de um beta de 1,5 MeV em 20 cm de ar é aproximadamente 40 keV.

Elétrons perdem mais energia no Alumínio e no Germânio que nos outros materiais existentes entre a fonte e o detetor, pois além deles serem mais densos, a energia do beta já foi razoavelmente reduzida ao alcançar esses materiais. Deste modo, é importante calcular a perda da energia considerando-os compostos por pequenas camadas ao invés de considerar um único bloco com uma taxa de perda de energia média. As características do detetor [65], invólucro e cristal, são mostrados na Tabela 3.1.

Fornecedor	Ortec
Volume	162 cm ³
Eficiência Relativa NaI(Tl) de 3"x3"	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

Tabela 3.1: Características do invólucro e do cristal do detetor [65].

Na Figura 3.4 pode ser observada a dependência obtida entre a energia do beta ao penetrar na região ativa do detetor em função da energia inicial para fontes produzidas pela Amersham e pelo IPEN.

Considerando o arranjo utilizado, ver Seção 3.5.1, os limiares de energia para penetração de betas na região ativa do detetor foram estimados em aproximadamente 1,28 e 1,26 MeV, para as fontes fornecidas pela Amersham e pelo IPEN, respectivamente. É claro que estes valores são obtidos a partir dos dados fornecidos pelos fabricantes das fontes e do detetor, já que a determinação das características com precisão é bastante difícil, principalmente no que diz respeito às dimensões internas do detetor.

Figura 3.4: Relação entre a energia do beta ao alcançar a região ativa do detetor e a energia inicial para fontes produzidas pela Amersham e pelo IPEN.

Dcaimento β das fontes de interesse

A partir da estimativa da energia limiar para a detecção do beta, pode-se verificar pelas características do decaimento dos núclídeos utilizados como fontes de calibração, ver Apêndice A, se a soma de betas com gamas é significativa.

Observa-se, na Tabela A.2 do Apêndice A, que uma boa parte das fontes não decai por β^- nem emitindo β^+ e que as energias dos betas são, na maior parte das vezes, inferiores a energia limiar de detecção. Além disso, para o ^{137}Cs , a meia vida do nível intermediário é muito maior que o tempo de resolução do sistema, de modo que esses betas não provocam a perda por soma de eventos de detecção do gama.

O único caso em que as energias máximas dos betas são superiores à energia limiar é o ^{60}Co , que possui um beta com energia máxima de 1492 keV. No entanto, a intensidade deste beta é muito pequena, 0,06 %.

Uma análise semelhante foi aplicada ao ^{152}Eu , que alimenta 13 níveis do Gd por β^- e 2 níveis do Sm por β^+ . Na Tabela 3.2 são apresentadas as principais características dessas alimentações beta. Para as duas alimentações β^+ , as energias dos betas são inferiores à energia limiar de detecção. No caso das alimentações β^- , podemos perceber

que somente o beta para o nível de 344 keV possui uma energia máxima superior à energia limiar.

Forma de decaimento	Q (keV)	Níveis			E_β (keV)
		Energia (keV)	Prob.(%)	Meia-vida	
β^-		1692,4	0,20		126,4
		1643,4	1,83		175,4
		1605,3	0,10		213,5
		1550,2	0,054		268,6
		1434,0	2,44		384,8
		1318,5	0,027		500,3
	1818,8	1314,7	0,0048		504,1
		1282,3	0,037		536,5
		1123,2	13,8		695,6
		1109,1	0,25	7,3 ps	709,7
		930,6	0,30	7,3 ps	888,2
		755,4	0,90	37 ps	1063,4
		344,3	8,2	32,4 ps	1474,5
β^+	1874,3	366,5	0,0024	60 ps	485,8
		121,8	0,025	1,4 ns	730,5

Tabela 3.2: Características do decaimento β da fonte de ^{152}Eu [7].

Com esta análise conclui-se que, para o arranjo utilizado, existe a possibilidade de ocorrência da soma do beta com o gama que segue o seu decaimento em somente dois casos já citados: a alimentação β^- do primeiro nível excitado do ^{60}Ni que segue o decaimento do ^{60}Co ($\beta_{0,1\text{Co}}^-$) e a alimentação β^- do primeiro nível excitado do ^{152}Gd que segue o decaimento do ^{152}Eu ($\beta_{0,1\text{Eu}}^-$).

Estimativa da taxa de transmissão dos betas

Uma estimativa da taxa de transmissão dos betas pode ser obtida através da integração do espectro de energias beta para energias acima do limiar.

Os espectros de energia beta podem ser estimados a partir da descrição de Konopinsk [66] para transições permitidas, muito embora as transições que alimentam os níveis de 344 keV do ^{152}Gd e de 1332 keV do ^{60}Ni sejam 1^a e 2^a proibidas, respectivamente. No entanto, esta forma simples aproxima suficientemente bem o espectro para uma estimativa de ordem de grandeza, permitindo avaliar se a correção de soma é desprezível.

Na Figura 3.5 são mostrados os espectros de energia calculados dos betas que alimentam os níveis de 344 keV do ^{152}Gd e de 1332 keV do ^{60}Ni .

Figura 3.5: Espectros de energias de betas que alimentam o nível de 344 keV do ^{152}Gd e de 1332 keV do ^{60}Ni , calculados de acordo com o texto.

A fração dos betas que penetra no detetor pode ser obtida integrando os espectros beta para as energias maiores que a energia limiar e levando em consideração a reflexão dos betas nos materiais [50, 67, 68]. Por exemplo, para as fontes produzidas pelo IPEN, que possuem a menor energia limiar (~ 1256 keV), as frações de betas que conseguem chegar à camada ativa do detetor são 0,7 % e 1,0 % para as fontes de Eu e Co, respectivamente.

Soma com Fótons de Bremsstrahlung

O beta, ao passar pelos materiais, produz bremsstrahlung que, se for detetado, pode somar com o gama que decai do nível alimentado pelo beta. Como as fontes utilizadas neste trabalho têm betas com energia máxima relativamente pequena, a produção de fótons é pequena e concentrada em fótons de energia baixa.

O feixe de fótons de energia baixa é bastante atenuado no invólucro e na camada morta do detetor. No entanto, se o bremsstrahlung ocorre na camada morta do detetor, a probabilidade dos fótons serem detetados é significativa.

Para estimar a soma de gamas com bremsstrahlung, temos que levar em consideração todos os betas com energia suficiente para chegar à camada morta de Ge do detetor e energia inferior a energia limiar, pois os betas com energia superior a E_{lim} penetram na camada ativa do detetor e sua detecção já foi considerada no termo P_β , cujo cálculo foi descrito na secção anterior.

Com isto, temos que considerar a taxa de produção de fótons de bremsstrahlung ao longo da camada morta do detetor por um beta. A distribuição em energia dos fótons produzidos por um beta com energia E_β [69] é mostrada na Figura 3.6.

Figura 3.6: Distribuição em energia dos fótons produzidos por um beta com energia $E_\beta = 1$ MeV. A curva tracejada leva em consideração a absorção dos fótons na camada morta do detetor.

Sabendo que um fóton produzido em um determinado ponto da camada morta do detetor também pode ser absorvido nesta região, deve-se levar em consideração a auto-absorção dos fótons na própria camada morta.

Assim, pode-se estimar que chegam à região ativa do detetor aproximadamente $9 \cdot 10^{-3}$ fótons por decaimento β que alimenta o nível estudado, tanto para o Co quanto para o Eu.

Correção para o Efeito da Soma

Por meio das estimativas de ε_{geo} , P_β e P_{Brems} , realizada nas secções anteriores, e dos valores de f_β , obtidos nas Tabelas A.2 e 3.2, verifica-se que a correção na área dos picos de 344 keV do ^{152}Eu e de 1332 keV do ^{60}Co é de aproximadamente $7 \cdot 10^{-6}$ e $1,2 \cdot 10^{-7}$ da área do pico, respectivamente ¹. Portanto, não são necessárias correções devido ao efeito de soma de gamas com betas e bremsstrahlung para as fontes utilizadas neste trabalho, tanto na calibração do sistema quanto para as demais fontes.

3.3 Empilhamento

O empilhamento ocorre quando dois ou mais gamas são detetados quase ao mesmo tempo. Diferentemente da soma, os gamas empilhados são provenientes de decaimentos distintos e possuem uma dependência com a taxa de contagens. Assim, o sinal produzido no detector pelos gamas é a sobreposição dos produzidos por cada um dos gamas. Portanto, em um espectro, as áreas dos picos correspondentes às transições gama envolvidas no empilhamento não são devidamente contadas. Além disto, um evento com uma energia incorreta pode ser contabilizado, possibilitando ainda que esta energia coincida com a de outra transição gama.

A literatura sobre empilhamento e correção de tempo morto é bastante vasta [50, 51, 70]. No entanto, estes trabalhos propõem correções canal a canal no espectro, o que acaba gerando correlações em todo o espectro. Neste trabalho procurou-se avaliar o empilhamento e a correção de tempo morto de forma a dar subsídios para a elaboração de um procedimento experimental onde estes efeitos fossem desprezíveis. Mesmo assim foi elaborado um modelo para a área de um empilhamento.

3.3.1 Rejeição de Empilhamento

O empilhamento está ligado à taxa de contagens e também ao tempo necessário para que o sinal seja tratado pelo sistema, estando relacionado ao *shapping time* do amplificador.

¹Considerando que a correção destas somas seja necessária quando a área a ser corrigida for aproximadamente 10% da incerteza da área do pico, e admitindo que a incerteza da área do pico seja igual a raiz quadrada da área, a área do pico deve ser de aproximadamente $2 \cdot 10^8$ e $2 \cdot 10^{11}$ contagens para o pico de 344 keV do ^{152}Eu e de 1332 keV do ^{60}Co , respectivamente.

Para evitar que este efeito seja muito significativo, é utilizado no sistema de aquisição de dados a rejeição de empilhamento (*pile-up rejection* - PUR) [50, 51].

Resumidamente, pode-se dizer que a rejeição do empilhamento inicia-se internamente nos amplificadores com a verificação da existência de um pulso no sinal do pré-amplificador através de amplificadores e discriminadores rápidos. Assim, quando um pulso é detetado, dispara-se um sinal lógico com a duração necessária para a formação correta do sinal de saída do amplificador. Portanto, se um novo pulso é detetado dentro deste tempo, é gerado pelo amplificador um sinal lógico de rejeição do empilhamento. Este sinal é utilizado pelo ADC para impedir a conversão do sinal de energia, gerando um tempo morto de conversão. Dependendo do ADC utilizado, o tempo morto gerado pelo empilhamento no sistema é compensado duplamente [51].

Mesmo com a utilização do PUR a rejeição de empilhamento é limitada, pois o sistema é incapaz de separar eventos que ocorram com intervalos de tempo muito pequenos, da ordem do tempo de subida do sinal do pré-amplificador. Além disto, dependendo da taxa de contagens, o número de rejeições pode ser muito elevado fazendo com que a compensação efetuada pelo ADC seja muito grande e forneça uma estimativa incorreta do tempo morto.

Sendo assim, para que o empilhamento seja pouco significativo é aconselhável usar taxas de contagens muito baixas. No entanto, para obter a intensidade de uma transição gama fraca é necessário tomar dados por longos períodos, o que nem sempre é possível, além de aumentar a importância da radiação de fundo no experimento. Deste modo, é importante modelar e estimar o empilhamento para que se possa planejar o experimento de forma a equilibrar as taxas de contagens com o tempo de medida.

3.3.2 Correção Devido a Taxa de Contagens

Para estudar empiricamente a correção devido a taxa de contagens, foi utilizado o procedimento sugerido por Gilmore [51], que consiste basicamente no método do gerador de pulso [50, 51] só que utilizando como referência uma fonte radioativa. Neste procedimento, realiza-se a medição de duas fontes radioativas simultaneamente, acompanhando a área de um pico de uma transição gama de uma das fontes, que permanece fixa em relação ao detetor, para várias taxas de contagens. A variação na taxa de contagem é obtida aproximando do detetor a outra fonte.

Deste modo, a área de um pico, levando em consideração a correção do tempo de medição, é dada pela expressão:

$$A = A_{obs} \cdot e^{2R\tau} \quad (3.13)$$

onde:

- A_{obs} é a área observada;
- A é a área do pico;
- R é a taxa de contagem e
- τ é a resolução em tempo do sistema, que é proporcional ao tempo de subida do sinal do pré-amplificador.

Calculando o logaritmo neperiano da expressão (3.13), temos:

$$\ln A_{obs} = \ln A - 2\tau R \quad (3.14)$$

Com o ajuste de $\ln A_{obs}$ por R obtemos o valor de τ .

Avaliação da Resolução Temporal

Neste estudo foi utilizada como referência uma fonte de ^{137}Cs , monocromática, que permanecia fixa em relação ao detetor. A taxa de contagem foi variada usando uma fonte de ^{152}Eu , que não emite gama nem produz efeitos secundários de detecção proeminentes na região do 661 keV, colocada em várias posições no eixo de simetria do detetor.

Foram realizados experimentos em duas condições distintas, uma com diferenças nas taxas de contagem e outra nos *shapping time* utilizados. Os sistemas de detecção e aquisição de dados utilizados nestas medições estão descritos nas Secções 4.1 e 4.2.

As atividades das fontes de ^{137}Cs e de ^{152}Eu eram aproximadamente 30 e 120 kBq, respectivamente. A taxa de contagem era determinada somando todas as contagens de um espectro e dividindo pelo tempo (vivo) de aquisição.

Na condição experimental onde foi utilizado um *shapping time* de 3 μs , a fonte de ^{137}Cs foi posicionada lateralmente ao detetor a aproximadamente 20 cm de distância. A fonte de ^{152}Eu foi, inicialmente, colocada a aproximadamente 60 cm do detetor. Para que a taxa de contagem fosse aumentada, a fonte de ^{152}Eu era colocada em uma posição mais próxima do detetor a cada medição. Na Tabela 3.3 são mostradas as áreas dos picos obtidos nas diversas taxas de contagens. Na Figura 3.7 é mostrado o gráfico do número de contagens do pico em função da taxa de contagens.

<i>Shapping time</i> (μ s)	Distância (cm)	Taxa (10^3 cps)	Área (10^3 contagens)	Tempo de contagem (s)
2	-	0,2154(4)	73,28(5)	1808
	50	0,3821(5)	73,25(5)	1815
	20	2,3811(8)	73,72(5)	1895
	8	9,0599(15)	74,24(7)	2183
	3	19,5435(33)	75,47(8)	2710
	1	45,740(5)	78,77(10)	4515
3	-	0,08886(3)	58,31(4)	3612
	60	0,25405(5)	58,27(4)	3630
	25	1,57844(14)	58,39(5)	3778
	12	6,0630(4)	58,89(6)	4322
	1	47,710(4)	63,31(17)	13261

Tabela 3.3: Resultados obtidos para área do pico de 661 keV do ^{137}Cs para várias taxas de contagens. A área é obtida pela média das áreas do pico em vários espectros, cada um com o tempo de contagem dado na última coluna, medido pelo relógio do microcomputador. Assim as medições realizadas apresentaram incertezas relativas menores que 0,3 % no pior caso e menores que 0,1 % na maioria dos casos. O tempo vivo selecionado foi de 1800 e 3600 s para as medições com 2 e 3 μ s, respectivamente.

Figura 3.7: Gráfico da área do pico em função da taxa de contagens para as duas condições experimentais. O eixo das ordenadas é apresentado em escala logarítmica. As incertezas nas áreas dos picos são compatíveis com o tamanho do ponto. As retas foram ajustadas aos pontos experimentais, de acordo com a expressão (3.14).

Na outra condição experimental, com *shapping time* de 2 μs , a fonte de ^{137}Cs foi posicionada a 15 cm do detetor. Os resultados obtidos são mostrados na Tabela 3.3, que também podem ser observados na Figura 3.7.

Com os resultados obtidos verificamos que a rejeição de empilhamento do sistema supercorrige o tempo morto do sistema, aumentando significativamente o tempo de contagem.

Os valores ajustados de τ para o comportamento da área observada do pico de 661 keV do ^{137}Cs em função da taxa de contagem são apresentados na Tabela 3.4. Os valores ajustados são dependentes dos *shapping time*. Porém, devido ao relógio Gedcke-Hale usado, eles não correspondem à resolução em tempo e o sinal negativo indica que o tempo de contagem está sendo estendido mais que o necessário.

shapping time	τ (μs)	χ^2_{red}
2 μs	- 0,792(14)	1,3
3 μs	- 0,870(28)	0,44

Tabela 3.4: Resultados obtidos para o parâmetro τ no ajuste da área observada do pico de 661 keV do ^{137}Cs em função da taxa de contagem.

Com os resultados obtidos, deve-se a multiplicar área dos picos, ou até mesmo o número de contagens em cada canal do espectro, por uma constante, $e^{2R\tau}$, proveniente da equação (3.14) para que seja fornecida a sua área correta. No entanto, não é necessário levar em consideração este fator para obter uma eficiência relativa.

3.3.3 Determinação da Área do Pico de Empilhamento

A área produzida pelo empilhamento de duas transições gama pode ser descrita por meio de:

$$Emp = (2 - \delta_{\gamma_a\gamma_b}) \cdot \Omega \cdot \Delta t \cdot P_{\gamma_a} \cdot \varepsilon_{\gamma_a} \cdot \tau \cdot \Omega \cdot P_{\gamma_b} \cdot \varepsilon_{\gamma_b} \quad (3.15)$$

onde:

- τ é a resolução temporal do sistema e
- $\delta_{\gamma_a\gamma_b}$ é o delta de Kronecker, valendo 1 quando $\gamma_a = \gamma_b$ e 0 para $\gamma_a \neq \gamma_b$.

Multiplicando e dividindo a expressão (3.15) por Δt e usando a área de um pico como $\text{Área} = \Omega \cdot \Delta t \cdot P_\gamma \cdot \varepsilon_\gamma$, obtêm-se:

$$Emp = (2 - \delta_{\gamma_a \gamma_b}) \cdot \frac{\text{Área}_{\gamma_a} \cdot \text{Área}_{\gamma_b}}{\Delta t} \cdot \tau \quad (3.16)$$

Após determinar a constante τ por meio de um pico de empilhamento conhecido, pode-se estimar a área do empilhamento de dois gamas pela fórmula acima.

3.3.4 Empilhamento no ^{152}Eu

Como o decaimento do ^{152}Eu é seguido por muitas transições gama, cujas áreas observadas podem ter uma contribuição significativa de empilhamentos, é muito importante avaliar os eventuais empilhamentos.

O empilhamento mais pronunciado no ^{152}Eu ocorre com os gamas de 122 e 344 keV que, além de serem os mais intensos, estão na região do espectro onde a eficiência de detecção é maior. O pico de empilhamento deve ser observado na região de 466 keV, onde, por acaso, não existe nenhum pico correspondente a uma transição gama e nem uma outra soma. Deste modo, a existência do pico de empilhamento de 466 keV é uma importante informação para avaliar a necessidade de corrigir a contribuição nas áreas dos picos devidos ao empilhamento. Na Figura 3.8 é mostrada a região do pico de empilhamento produzido em medições com diferentes taxas de contagem da fonte de ^{152}Eu . É importante notar que o pico de empilhamento é deformado em relação a um pico produzido por uma transição gama [70], possuindo uma cauda acentuada a esquerda, ver Figura 4.12.B. Esta deformação tende a crescer com o aumento da energia.

Além do pico de empilhamento em 466 keV, existem outros que podem ser estudados. Na Tabela 3.5 são mostrados os picos de empilhamento observados neste trabalho, em uma medição de 100 h de uma fonte de ^{152}Eu com uma taxa de 6,1 kcps, ver Secção 4.6.4. Foram selecionados os empilhamentos que ocorrem em regiões do espectro onde não existem picos devidos a transições gama e nem somas. No entanto, em alguns casos podem ocorrer múltiplos empilhamentos na mesma região. Para avaliar os empilhamentos observados foram levados em consideração somente os casos onde estavam envolvidas as transições mais intensas e, mesmo assim, em dois casos a região possui alguns empilhamentos.

Figura 3.8: Região do espectro de ^{152}Eu onde espera-se encontrar o pico de empilhamento das gamas de 122 e 344 keV. As taxas de contagens nos espectros A, B, C e D são, respectivamente: 382; 2381; 9059 e 19543 cps.

Energia (keV)	Transições gama envolvidas (keV)	Área (10^3 contagens)	τ (μs)
466	121 + 344	97(4)	0,474
1556	444 + 1112	376(29)	0,463
1557	344 + 1212		
1557	778 + 778		
1742	778 + 964	1935(24)	0,530
1743	444 + 1299		
1752	344 + 1408		
2372	964 + 1408	483(12)	0,679
Média			0,54(5)

Tabela 3.5: Valores experimentais do parâmetro de tempo de empilhamento, τ , avaliados neste trabalho. As áreas dos empilhamentos foram obtidas a partir de um espectro 100 h de uma fonte de ^{152}Eu com uma taxa de 6,1 kcps.

O resultado obtido para o tempo de resolução do sistema, $0,54(5) \mu s$, é comparável ao tempo de subida do sinal do pré-amplificador, $\sim 0,2 \mu s$, o que é esperado. A incerteza foi obtida através do desvio padrão da média externo, pois as incertezas nas áreas do pico de empilhamento não refletem a incerteza na determinação dos limites nos picos, que é o fator determinante da flutuação observada.

3.4 Correlação Angular

A correlação angular é um fator que pode ser significativo na determinação da intensidade de uma transição gama, tanto em espectroscopia gama simples quanto em coincidência γ - γ .

Em coincidência γ - γ a correlação angular pode influenciar significativamente na área de uma coincidência dependendo da disposição dos detetores no arranjo experimental. Uma escolha adequada desta disposição pode dispensar as correções devidas ao efeito de correlação angular.

Em espectroscopia simples, a correlação angular atua no sentido de aumentar (ou diminuir) os efeitos de soma dos gamas em determinadas cascatas. Neste caso, a correlação mais importante é a entre dois gamas emitidos no mesmo sentido para serem detetados simultaneamente.

3.4.1 Desenvolvendo o Formalismo

A literatura sobre a correlação angular é relativamente extensa. No entanto, a escolha do formalismo para o desenvolvimento de um modelo para a correlação angular é dificultada pelo fato das várias referências não utilizarem a mesma notação. Optou-se por utilizar o formalismo apresentado por Fraunfelder [71], que pode ser obtido mais diretamente em [72].

Considerando o esquema de decaimento de uma cascata gama, mostrado na Figura 3.9, composto por 3 níveis, 1, 2 e 3 com spins I_1 , I_2 e I_3 , respectivamente, e duas transições gamas: γ_1 , com multipolaridades L_1 e L_1^* e γ_2 com multipolaridades L_2 e L_2^* . Além disso, os gamas são emitidos nas direções $\vec{p}_1$ e $\vec{p}_2$, formando um ângulo θ , conforme mostrado na Figura 3.9.

Figura 3.9: *Esquema de decaimento de uma cascata gama. A notação para a ordem dos níveis foi utilizada para seguir a da literatura.*

A correlação angular pode ser descrita pela função:

$$W(\theta) = \sum_{kpar} A_{kk} P_k(\cos \theta) \quad (3.17)$$

onde:

- $W(\theta)$ é a correlação angular;
- A_{kk} representam os coeficientes de correlação angular e
- $P_k(\cos \theta)$ são os polinômios de Legendre.

Se as transições têm uma única multipolaridade, o valor máximo do índice k é obtido por meio de:

$$k_{\max} = \min(2I_2, 2L_1, 2L_2) \quad . \quad (3.18)$$

Se há uma mistura multipolar, tem-se:

$$k_{\max} = \min(2I_2, 2L_{1>}, 2L_{2>}) \quad (3.19)$$

onde: $L_{1>}$ é o maior entre L_1 e L_1^* e $L_{2>}$ é o maior entre L_2 e L_2^*

Os valores de A_{kk} são obtidos por meio de:

$$A_{kk} = A_k^1 \cdot Q_k^1 \cdot A_k^2 \cdot Q_k^2 \quad (3.20)$$

onde os valores de A_k são constantes definidas, para os gamas 1 e 2 respectivamente, por meio de:

$$A_k^1 = \frac{F_k(I_2 I_1 L_1 L_1) + (-1)^{L_1+L_1^*} \cdot 2 \cdot \delta_1 \cdot F_k(I_2 I_1 L_1 L_1^*) + (\delta_1)^2 \cdot F_k(I_2 I_1 L_1^* L_1^*)}{1 + (\delta_1)^2} \quad (3.21)$$

e

$$A_k^2 = \frac{F_k(I_2 I_3 L_2 L_2) + 2 \cdot \delta_2 \cdot F_k(I_2 I_3 L_2 L_2^*) + (\delta_2)^2 \cdot F_k(I_2 I_3 L_2^* L_2^*)}{1 + (\delta_2)^2} . \quad (3.22)$$

Os valores dos coeficientes F estão tabulados nas referências [73, 74]. δ^2 corresponde à razão entre as intensidades das componentes das duas multipolaridades da transição. Além disso, δ segue a convenção de fase de Krane [75, 76]. Os fatores Q levam em conta o tamanho finito do detetor e estão discutidos na secção seguinte.

3.4.2 Fator de Atenuação Geométrico da Correlação pelo Detetor

Os fatores de correção geométrico [77], devido ao ângulo sólido subetendido pelos detetores, para uma fonte colocada no eixo de simetria axial do detetor, conforme mostra a Figura 3.10, podem ser calculados por:

$$Q_k = \frac{\int_0^{\alpha_{max}} \varepsilon(\alpha) P_k(\cos \alpha) \sin(\alpha) d(\alpha)}{\int_0^{\alpha_{max}} \varepsilon(\alpha) \sin(\alpha) d(\alpha)} \quad (3.23)$$

onde:

- α é o ângulo entre a direção de propagação do fóton com o eixo de simetria do detetor;
- α_{max} é o ângulo máximo de incidência;
- $\varepsilon(\alpha)$ é a eficiência do detetor para fótons incidindo na direção α e
- $P_k(\cos\alpha)$ é o polinômio de Legendre.

Figura 3.10: Definição das grandezas envolvidas utilizadas no cálculo do fator de atenuação geométrica da correlação.

O ângulo α_{max} é obtido através das características do arranjo experimental, ver Figura 3.10, levando-se em consideração a distância entre a fonte e a posição média de interação do raio γ no detetor ($r + \delta(E_\gamma)$), conforme definido na Secção 3.5.2, e o diâmetro do detetor, ϕ . Assim:

$$\alpha_{max} = \arctan \left(\frac{\phi}{2} \cdot \frac{1}{r + \delta(E_\gamma)} \right) \quad (3.24)$$

A dependência angular da eficiência do detetor foi estimada de acordo com o gráfico da Figura 3.11, elaborada a partir das informações apresentadas na literatura [77] e fazendo uma pequena extrapolação para detetores volumosos.

Assim, a expressão final para a correlação γ - γ é:

$$W(\theta) = 1 + \sum_{k=2,4,\dots} A_k^1 Q_k^1 \cdot A_k^2 Q_k^2 \cdot P_k(\cos\theta) \quad (3.25)$$

Figura 3.11: Modelo para a dependência da eficiência com o ângulo α de incidência do fóton, utilizado para o cálculo do fator de atenuação geométrico da correlação.

3.4.3 Correlação Angular no ^{152}Eu

Para a medição de espectroscopia simples a correlação angular foi calculada para $\alpha = 0$, já que as somas ocorrem em um detector.

Para a medição de coincidência γ - γ foi calculado um valor médio para a correlação angular, levando em consideração os ângulos entre os vários detectores.

Espectroscopia Gama Simples

Na espectroscopia simples, o mesmo detector observa os fótons de uma cascata gama. Para que isto ocorra, os gamas devem ser emitidos aproximadamente na mesma direção e no mesmo sentido, ou seja, com $\theta \sim 0^\circ$. Assim, o fator de atenuação geométrico do detector é o mesmo para os dois gamas. De acordo com a equação (3.23), temos:

$$Q_k = Q_k^1 = Q_k^2 \quad .$$

Levando em consideração que o sistema é constituído por um detector, cujo cristal possui diâmetro de 6,0 cm, ver Secção 3.5.5, e que a fonte colocada a aproximadamente 20 cm do invólucro do detector, foi obtido um α_{max} de aproximadamente $7,7^\circ$, utilizando-se $\delta(E_\gamma)$ estimado na Secção 3.5.2. Os valores determinados para os fatores de atenuação geométrico do detector são mostrados na Tabela 3.6.

As incertezas nos valores de Q_k foram estimadas em aproximadamente 2% a partir de pequenas diferenças de geometria e levando em consideração distribuições de $\varepsilon(\alpha)$ ligeiramente diferentes.

Fator de atenuação geométrico			
Coincidência γ - γ		Espectroscopia simples	
Q2	Q4	Q2	Q4
0,94	0,81	0,99	0,96

Tabela 3.6: Fator de atenuação geométrico devido ao ângulo sólido subtendido pelos detetores. As incertezas foram estimadas a partir das características experimentais e da incerteza na dependência angular da eficiência, sendo da ordem de 2% e 5% para as medições de espectroscopia simples e de coincidência γ - γ , respectivamente.

Espectroscopia γ - γ

A correlação angular em espectroscopia γ - γ foi obtida de maneira semelhante. No entanto, para facilitar os cálculos, o fator de atenuação geométrico foi considerado como sendo um valor médio que representaria todos os detetores envolvidos na medição e as características médias do arranjo experimental utilizado, ver Secção 2.2. Assim, da mesma maneira que na espectroscopia simples, foi utilizado:

$$Q_k = Q_k^1 = Q_k^2 \quad .$$

No entanto, o valor de Q_k foi calculado para um detetor, com um cristal de 6,0 cm de diâmetro, e uma fonte colocada a 6,0 cm do cristal além de um $\delta(E_\gamma)$ de 3 cm. Nesta configuração o valor de α_{max} é de aproximadamente 18° .

Os valores obtidos para Q_k são apresentados na Tabela 3.6. As incertezas estimadas, aproximadamente 5%, são maiores que as obtidas para espectroscopia gama simples, pois é considerado um fator de atenuação médio de 4 detetores, com características e em geometria ligeiramente diferentes. Neste caso, devido à proximidade da fonte com o detetor, as diferenças entre as dependências angulares da eficiência são mais significativas.

Multipolaridades

Para determinar o fator de correlação angular foi necessário conhecer as multipolaridades das transições. Assim, nos casos em que a multipolaridade das transições gama já era conhecida, foram utilizados os dados fornecidos pela literatura [7, 29] e, no demais, foi atribuída apenas uma multipolaridade a cada uma destas transições.

As multipolaridades para as transições observadas (ou posicionadas no esquema) pela primeira vez neste trabalho foram determinadas por meio da comparação com transições em regiões do esquema de níveis semelhantes, mas com multipolaridades conhecidas. Quando a comparação não foi possível, a multipolaridade foi deduzida pelo esquema de níveis, seguindo as recomendações sugeridas na literatura [78, 79].

Pelo esquema de decaimento conhecido [7, 29] do ^{152}Eu e dos resultados obtidos neste trabalho, ver Capítulo 2, verificou-se que existem aproximadamente 350 possíveis cascatas/coincidências duplas observáveis usando nosso arranjo experimental. Com isto, certas configurações de spins e multipolaridades são observadas em muitos casos.

Resultados

Nas Tabelas 3.7 e 3.8 são apresentados os fatores de correlação das transições puras e das transições com misturas multipolares, respectivamente. Analisando os resultados obtidos, podemos verificar que a correlação angular para a espectroscopia simples, $W(0^\circ)$, é significativa. Já a correlação angular média nas medições de coincidência γ - γ efetuadas, $\langle W(\theta) \rangle$, não é uma correção importante, com exceção de uns poucos casos. Portanto, pode-se perceber que o arranjo experimental utilizado (detetores a 90°) facilita a determinação das intensidades de transições gama.

Na Figura 3.12.A são mostradas as curvas de $W(\theta)$ para as cascatas mais freqüentes do ^{152}Eu . Na Figura 3.12.B são mostradas as curvas de $W(\theta)$ para as cascatas cujas correlações angulares são mais pronunciadas.

Para exemplificar o efeito de uma mistura multipolar em uma cascata são mostradas, na Figura 3.12.C, as curvas de $W(\theta)$ para uma mesma cascata cuja transição γ_1 tem a razão de mistura multipolar, δ , variando entre -7 e 7.

Spins			Multip.		Nº de ocor.	Espec. Simples	Coincidência γ - γ	
I_1	I_2	I_3	L_1	L_2		$W(0^\circ)$	Razão W	$\langle W(\theta) \rangle$
0	2	0	2	2	5	2,394	1,774	1,364
0	2	2	2	2	1	1,224	1,014	1,104
0	2	4	2	2	1	1,108	1,137	1,003
1	2	0	1	2	2	0,756	0,715	
2	0	2	2	2	11	1,000	1,000	
2	1	0	1	1	5	1,049	1,064	
2	1	2	1	1	5	1,005	1,006	
2	2	0	1	2	34	1,244	1,351	
2	2	0	2	2	6	1,224	1,014	1,104
2	2	1	1	1	3	0,830	0,795	
2	2	2	1	1	10	1,170	1,238	
2	2	2	1	2	11	0,948	0,934	
2	2	3	1	1	5	0,951	0,938	
2	2	4	1	2	17	1,070	1,093	
2	2	4	2	2	1	0,981	0,974	
2	3	2	1	1	17	1,117	1,159	
2	3	2	1	2	5	0,958	0,947	
2	3	4	1	1	7	1,049	1,064	
2	4	2	2	2	8	1,280	1,304	1,030
2	4	6	2	2	1	1,108	1,137	1,003
3	1	0	2	1	1	0,930	0,913	
3	1	2	2	1	1	0,993	0,991	
3	2	0	1	2	21	0,930	0,913	
3	2	0	2	2	5	0,726	0,734	0,974
3	2	1	1	1	1	1,049	1,064	
3	2	2	1	1	4	0,951	0,938	
3	2	2	1	2	8	1,015	1,019	
3	2	3	1	1	1	1,014	1,018	
3	2	4	1	2	11	0,980	0,975	
3	2	4	2	2	1	0,943	0,928	

Tabela 3.7: Resultados obtidos para $W(\theta)$ para as várias cascatas gama, de transições sem misturas multipolares, nas medições de espectroscopia simples e de coincidência γ - γ , incluindo a atenuação pelo ângulo sólido coberto pelos detetores. São apresentados os spins e a multipolaridade de cada cascata, bem como o número de ocorrências da cascata no esquema de decaimento do ^{152}Eu . Também são apresentados: $W(0^\circ)$ para as medições de espectroscopia gama simples; a razão $(W(180)/W(90))$ e $\langle W(\theta) \rangle$ para as medições de espectroscopia γ - γ . Os valores não preenchidos na última coluna da tabela são iguais a 1,00.

Spins			Multip.		Nº de ocor.	Espec. Simples	Coincidência γ - γ	
I_1	I_2	I_3	L_1	L_2		$W(0^\circ)$	Razão W	$\langle W(\theta) \rangle$
3	3	2	1	1	5	0,854	0,822	
3	3	2	1	2	2	1,052	1,069	
3	3	4	1	1	1	0,939	0,923	
3	4	2	1	2	23	0,863	0,833	
3	4	3	1	1	3	1,096	1,129	
3	4	4	1	1	6	0,866	0,836	
3	4	5	1	1	3	1,049	1,064	
3	4	6	1	2	7	0,930	0,913	
4	2	0	2	2	15	1,108	1,137	1,003
4	2	1	2	1	1	0,930	0,913	
4	2	2	2	1	2	1,070	1,093	
4	2	2	2	2	4	0,981	0,974	
4	2	3	2	1	1	0,980	0,975	
4	2	4	2	2	7	1,028	1,037	
4	3	2	1	1	2	1,049	1,064	
4	3	4	1	1	2	1,020	1,026	
4	4	2	1	2	6	1,191	1,269	
4	4	6	1	2	2	1,097	1,131	
4	5	4	1	1	2	1,084	1,113	
4	5	6	1	1	1	1,049	1,064	
4	6	4	2	2	3	1,198	1,233	1,014
5	4	2	1	2	1	0,930	0,913	
6	4	2	2	2	1	1,108	1,137	1,003

Tabela 3.7: (Continuação) Resultados obtidos para $W(\theta)$ para as várias cascatas gama, de transições sem misturas multipolares, nas medições de espectroscopia simples e de coincidência γ - γ , incluindo a atenuação pelo ângulo sólido coberto pelos detetores. São apresentados os spins e a multipolaridade de cada cascata, bem como o número de ocorrências da cascata no esquema de decaimento do ^{152}Eu . Também são apresentados: $W(0^\circ)$ para as medições de espectroscopia gama simples; a razão $(W(180)/W(90))$ e $\langle W(\theta) \rangle$ para as medições de espectroscopia γ - γ . Os valores não preenchidos na última coluna da tabela são iguais a 1,00.

Spins			Multip.		Espec. simp.	Coincidência γ - γ	
I_1	I_2	I_3	L_1	L_2	$W(0^\circ)$	Razão W	$\langle W(\theta) \rangle$
3	4	2	E2+6%M1	2	0,662	0,722	0,944
2	1	0	M1+35%E2	1	1,430	1,682	
2	1	2	M1+35%E2	1	1,043	1,057	
2	2	0	E2+17%M1	2	0,959	0,762	1,086
2	2	0	E2+4%M1	2	1,365	1,201	1,100
2	2	0	E2+6,5%M1	2	1,050	0,834	1,097
2	2	2	1	E2+4%M1	0,859	0,828	
2	2	2	1	E2+6,5%M1	1,085	1,114	
2	2	2	2	E2+6,5%M1	1,054	0,996	1,028
2	2	2	E2+17%M1	E2+4%M1	1,235	1,256	1,024
2	2	4	E2+17%M1	2	0,920	0,898	
2	3	4	1	E2+2%M1	1,030	1,039	
2	3	4	1	E2+6%M1	1,213	1,304	
2	4	4	2	E2+18%M1	1,168	1,113	1,039
3	2	0	M1+2%E2	2	1,031	1,042	
3	2	2	1	E2+4%M1	1,040	1,053	
3	2	2	1	E2+6,5%M1	0,976	0,969	
3	2	2	2	E2+4%M1	1,095	1,149	0,993
3	2	2	M1+2%E2	1	1,023	1,030	
3	2	2	M1+2%E2	2	0,993	0,991	
3	2	4	M1+2%E2	2	1,009	1,012	
3	3	4	1	E2+2%M1	0,963	0,953	
3	4	2	E2+2%M1	2	0,973	1,131	0,942
3	4	4	1	E2+18%M1	0,962	0,951	
4	2	2	2	E2+4%M1	0,945	0,928	
4	2	2	2	E2+6,5%M1	1,037	1,046	
4	4	2	E2+18%M1	2	0,941	0,836	1,039
4	4	2	M1+13%E2	2	1,269	1,368	1,007
4	4	4	1	E2+18%M1	1,054	1,071	

Tabela 3.8: Resultados obtidos para $W(\theta)$ para as várias cascatas gama de transições com misturas multipolares nas medições de espectroscopia simples e de coincidência γ - γ , incluindo a atenuação pelo ângulo sólido coberto pelos detetores. São apresentados os spins e a multipolaridade de cada cascata, bem como o número de ocorrências da cascata no esquema de decaimento do ^{152}Eu . Também são apresentados: $W(0^\circ)$ para as medições de espectroscopia gama simples; a razão $W(180)/W(90)$ e $\langle W(\theta) \rangle$ para as medições de espectroscopia γ - γ . Os valores não preenchidos na última coluna da tabela são iguais a 1,00.

Figura 3.12: $W(\theta)$ para algumas cascatas do ^{152}Eu : A) Cascatas freqüentes; B) Cascatas com correlação angular mais pronunciadas; C) Cascata gama, 342- Δ 2, para diferentes valores da razão de mistura multipolar da transição γ_1 . Os valores apresentados na legenda correspondem as cinco primeiras colunas das Tabelas 3.7 e 3.8. O símbolo Δ indica que a transição possui componente multipolar.

3.5 Geometria de Detecção

A eficiência de detecção depende da geometria do arranjo experimental e das características do detetor. Como existe um compromisso entre eficiência, tempo de medida, efeitos secundários de detecção, blindagem e a precisão da medição, a disposição geométrica da fonte em relação ao detetor e a blindagem têm um papel muito importante em um experimento.

Um dos fatores mais importantes na determinação da eficiência e que pode ser escolhido dentro de uma grande faixa é a distância entre a fonte e o detetor, já que as características do detetor não podem ser alteradas significativamente. Deste modo, é necessário determinar a relação entre a distância e os efeitos de secundários de detecção. Além disso, a reprodutibilidade do posicionamento da fonte deve ser verificado cuidadosamente, estabelecendo as condições necessárias para que se obtenha um arranjo confiável.

Além da distância entre a fonte e o detetor deve-se verificar a simetria axial do sistema, ou seja, a simetria entre o centro da fonte e o eixo de simetria do detetor, pois uma eventual descentralização do sistema (fonte, suporte e detetor) pode causar uma mudança significativa na eficiência.

3.5.1 Definição da Geometria

Como foram utilizadas fontes de dimensões reduzidas, colocadas no eixo de simetria do detetor, o único parâmetro de geometria com liberdade de variação é a distância fonte-detetor, que foi escolhido levando-se, principalmente, em consideração os efeitos secundários de detecção. Assim, verificou-se que: quanto maior a distância menor seriam as correções de soma e empilhamento. Para se obter uma taxa de contagem de aproximadamente 100 contagens por segundo (cps), com uma fonte típica de 50 kBq em um detetor HPGe de 162 cm³ [65], a distância necessária é aproximadamente igual a 20 cm. Nesta configuração, uma estatística de contagens razoável só é obtida com tempo de aquisição relativamente longo. Portanto, o suporte deve ser rígido e estável.

Deste modo, foi elaborado e construído o suporte de PVC, mostrado na Figura 3.13, para sustentar uma fonte radioativa em um detetor montado verticalmente [65]. Para dar estabilidade ao suporte foi utilizada uma abraçadeira que o prendia firmemente ao invólucro detetor. A fonte ficava sustentada por uma tampa de acrílico, também mostrada na Figura 3.13, com um orifício. Foram construídas tampas com alturas

Figura 3.13: *Desenho da secção axial do suporte da fonte com a sua tampa. As dimensões estão em mm.*

e orifícios de excentricidade diferentes, permitindo que a geometria do sistema fosse ligeiramente alterada sem grandes perturbações no arranjo experimental.

3.5.2 Distância Fonte-Detetor

Para estimar o comportamento da área de um pico em relação a pequenas variações da distância fonte-detetor, foi elaborado um modelo simples para a eficiência de detecção. Este modelo serviu para determinar as precisões necessárias para a construção do suporte e estabelecer um critério para a reprodutibilidade das medições.

A eficiência de detecção para uma fonte posicionada no eixo de simetria do detetor, ver Figura 3.13, pode ser separada em dois termos: um que depende das características intrínsecas do detetor, $\varepsilon_{int}(E_\gamma)$, e outro que depende da geometria, ε_{geo} . Assim, temos:

$$\varepsilon(E_\gamma) = \varepsilon_{int}(E_\gamma) \cdot \varepsilon_{geo} \quad . \quad (3.26)$$

A eficiência geométrica é definida por:

$$\varepsilon_{geo} = \frac{S}{4\pi \cdot r_{efetivo}^2} \quad (3.27)$$

onde:

S é a área frontal do detetor e
 $r_{efetivo}$ é a distância entre a fonte e a posição média da interação do raio gama no detetor.

O $r_{efetivo}$ pode ser descrito por uma distância r (distância entre a fonte e o invólucro do detetor) mais uma distância δ (distância entre o invólucro do detetor e a posição média no cristal onde efetivamente ocorre a detecção), que também depende da energia da transição gama. Deste modo, podemos escrever que:

$$r_{efetivo} = r + \delta(E_\gamma) \quad . \quad (3.28)$$

Substituindo (3.26) e (3.27) na expressão (3.28), obtém-se:

$$\varepsilon_{tot}(E_\gamma) = \varepsilon(E_\gamma) \cdot \frac{S}{4\pi} \cdot \frac{1}{[r + \delta(E_\gamma)]^2} \quad . \quad (3.29)$$

Calculando a variação relativa da eficiência com a posição temos:

$$\frac{1}{\varepsilon_{tot}(E_\gamma)} \cdot \frac{\partial \varepsilon_{tot}(E_\gamma)}{\partial r} = \frac{-2}{[r + \delta(E_\gamma)]} \quad . \quad (3.30)$$

Então, para obter a variação relativa da eficiência com a posição é necessário determinar $\delta(E_\gamma)$, pela relação entre a área de um pico e a posição da fonte, para várias energias.

Com o modelo para a área de um pico, podemos reescrever a expressão (3.1) em termos das eficiências, geométrica e de detecção, por:

$$Área = \Omega \cdot \Delta t \cdot P_\gamma \cdot \varepsilon(E_\gamma) \cdot \frac{S}{4\pi} \cdot \frac{1}{[r + \delta(E_\gamma)]^2} \quad . \quad (3.31)$$

Linearizando a expressão através de $y = \frac{1}{\sqrt{\acute{Area}}}$ e reagrupando os termos, temos:

$$y(E_\gamma) = \frac{1}{\sqrt{\acute{Area}(E_\gamma)}} = \frac{1}{\sqrt{\Omega \cdot \Delta t \cdot \frac{S}{4\pi}}} \cdot \frac{1}{\sqrt{P_\gamma \cdot \varepsilon(E_\gamma)}} \cdot [r + \delta(E_\gamma)] \quad . \quad (3.32)$$

Assim, podemos reescrever a equação (3.32) como:

$$y = a \cdot r + b \quad . \quad (3.33)$$

Deste modo, $\delta(E_\gamma)$ é obtido através da razão entre os coeficientes linear e angular da expressão (3.33), ou seja:

$$\delta(E_\gamma) = \frac{b}{a} \quad (3.34)$$

Para determinar $\delta(E_\gamma)$, foram realizadas medições de uma mesma fonte de ^{152}Eu em várias posições no eixo de simetria do detetor. Para que a distância entre a fonte e o invólucro do detetor (r) variasse, foram construídas tampas do suporte (onde as fontes eram sustentadas) com diversas alturas. Foram construídas 5 tampas, com alturas entre 8,0 e 14,0 mm, permitindo que a distância variasse entre 191 e 197 mm. Nestas medições as fontes eram posicionadas sempre com a mesma orientação em relação ao detetor.

Para acompanhar a dependência de δ com a energia, foram levadas em consideração as áreas dos picos de 11 transições gamas com energias de 121, 244, 344, 444, 778, 867, 964, 1085, 1112, 1299 e 1408 keV. Na Figura 3.14 é mostrado o gráfico das áreas linearizadas em relação à distância fonte-detetor, para 3 destas energias.

Para cada energia gama, foi ajustada uma reta de y em função de r . O ajuste, realizado para todas as transições ao mesmo tempo, forneceu um χ^2_{red} de 1,7 para 33 graus de liberdade. Assim, a partir dos coeficientes angulares e lineares ajustados,

Figura 3.14: Áreas linearizadas em relação a distância fonte-detetor.

foram obtidos os valores de $\delta(E_\gamma)$. Por meio dos resultados obtidos, ver Figura 3.15, verificou-se que não existe um comportamento claro, devido a baixa estatística, para $\delta(E_\gamma)$ em função da energia.

Figura 3.15: Valores dos parâmetros da posição média de detecção, $\delta(E_\gamma)$, para diversas energias gamas.

A variação da eficiência relativa pela distância fonte-detetor pode ser determinada pela expressão (3.30). Assim, para o valor médio de $\delta(E_\gamma)$ de 3,4(5) cm, a distância efetiva de detecção é de aproximadamente 22,8(5) cm. Portanto, a variação relativa da eficiência com a distância pode ser estimada em aproximadamente 0,87(2)%/mm.

Com isto, o arranjo e a sua montagem deve ter uma precisão de décimos de milímetro para que a incerteza na eficiência seja de décimos de por cento.

3.5.3 Simetria Axial

Outro fator estudado foi a simetria axial do arranjo fonte-detetor. Embora algumas fontes sejam finas e planas, elas têm um contorno irregular, ver Apêndice A, e, portanto, não têm um centro bem determinado. Deste modo existe uma dificuldade em fazer o alinhamento entre o centro da fonte com o eixo de simetria do detetor. Além disso, uma eventual rotação da fonte pode causar uma variação na estimativa da intensidade.

Para determinar o comportamento do número de contagens com a variação da posição em relação ao eixo de simetria do sistema foram realizadas medições com uma mesma fonte, com a mesma distância fonte-detetor, mas em diferentes posições em relação ao eixo de simetria do detetor. As diferentes posições foram obtidas por meio das tampas do suporte com orifícios excêntricos ao eixo de simetria do suporte, com distâncias de 0,0 ; 2,0 ; 4,0 e 8,0 mm do eixo de simetria. Foram observadas as áreas de 7 transições gama do ^{152}Eu .

Nas medições realizadas a fonte era colocada sobre a tampa do suporte, sempre com a mesma orientação em relação ao detetor, para as várias distâncias em relação ao eixo do suporte. Na Figura 3.16 é mostrado o gráfico das áreas normalizadas em relação às distâncias axiais para os gamas de energias 121, 778 e 1408 keV.

Foi realizado o ajuste de uma parábola para todas as transições gamas. Os parâmetros ajustados foram: uma constante para cada transição, um termo linear e um parabólico para todo o conjunto. O ajuste apresentou um χ^2_{red} de 1,23, para 47 graus de liberdade.

Com o resultado obtido verifica-se: desde que o centro da fonte esteja no eixo de simetria a eficiência de detecção não é alterada significativamente por pequenas irregularidades na forma da fonte. Com os parâmetros ajustados determinou-se também que, para a fonte radioativa utilizada, a distância do seu centro efetivo em relação ao eixo do suporte preso ao invólucro do detetor era de 0,3(5) mm.

Figura 3.16: Áreas normalizadas em função das distâncias axiais onde foi somado 0,0075 e 0,015 aos valores das razões calculadas para as transições gama de 778 e 121 keV, respectivamente, para efeito de visualização.

3.5.4 Reprodutibilidade da Geometria

Como foi verificado anteriormente, a reprodutibilidade da geometria do sistema (nas diversas montagens) deve ter uma precisão de décimos de milímetro em relação à distância fonte detector, devendo ser reprodutível dentro desta precisão. Assim foram elaboradas medições para verificar a reprodutibilidade e a estabilidade do arranjo experimental e ainda, o tempo de acomodação do sistema.

Tempo de Acomodação

Para exemplificar a eventual influência no sistema do tempo de acomodação ², foi realizada uma experiência onde o suporte que sustenta a fonte foi construído com fita adesiva e barbante. Acompanhando a área de um pico, ver Figura 3.17, percebe-se claramente a sua variação com o tempo.

²Todo sistema, mecânico ou eletrônico, necessita de um tempo para a acomodação, seja para entrar em equilíbrio térmico, mecânico, elétrico, etc.

Figura 3.17: Área de um pico correspondente a uma transição gama do ^{152}Eu em vários espectros de 0,5 h de uma fonte sustentada por um suporte construído com fita adesiva e barbante.

O tempo de acomodação mecânico do sistema foi estudado pelas áreas dos picos em vários espectros de uma série de medições. O arranjo era montado e as aquisições de dados iniciadas em seguida. Foram realizadas 3 séries de medições de 12 h, onde os tempos de aquisição de cada espectro foram de 1h, 30 e 10 min.

Com as medições realizadas não se observou, dentro das precisões estatísticas, nenhuma variação nas áreas dos picos. Sendo assim, podemos considerar que o arranjo utilizado tem um tempo de acomodação muito rápido em relação a duração da contagem e que não é perceptível e, portanto, não deve alterar as características do arranjo e conseqüentemente a eficiência.

O tempo de acomodação do sistema eletrônico não foi extensivamente estudado, pois de maneira geral o sistema permanece constantemente ligado e, quando era desligado, as medições só se iniciavam após 24 horas da alta tensão do detetor ser religada.

Reprodutibilidade e Estabilidade

A reprodutibilidade da geometria foi estudada por meio de uma série de medições de uma mesma fonte, colocada na mesma posição, onde o arranjo experimental era montado e desmontado a cada medição. Foram utilizadas as áreas dos picos de 121 e 778 keV do ^{152}Eu . Nas medições realizadas verificou-se que não houve alteração

significativa nas áreas dos picos em cada medição (pelo menos na estatística obtida), mostrando que a montagem é bastante reprodutível.

A estabilidade do sistema foi verificada através das medições de longa duração da fonte de ^{152}Eu efetuadas para a determinação das intensidades de das transições gama, ver Secção 4.2.2.

3.5.5 Definição do Arranjo

Com estes testes verificou-se que o arranjo experimental construído não necessitava de ajustes. Além disso, a configuração do arranjo escolhido permitia desprezar na incerteza da eficiência a incerteza dos parâmetros geométricos. Concluiu-se também que a precisão, adequada ao nosso experimento, poderia ser obtida aumentando o tempo de contagem. No entanto, seria necessário prestar atenção na estabilidade do sistema, acompanhando os vários parâmetros ajustados (posição, área e largura) nos espectros.

3.6 Contaminante

Muito embora a contaminação de uma amostra não seja um efeito secundário de detecção, a existência de um pico devido a um contaminante em uma determinada região do espectro pode distorcer ou interferir na área de um pico de interesse.

Para determinar a contaminação da fonte é necessário verificar nos espectros a existência de linhas que possam pertencer a outros núclídeos e através do esquema de decaimento dos eventuais contaminantes determinar a sua proporção na amostra.

Nas fontes de ^{152}Eu utilizadas, a única contaminação observada foi a de ^{154}Eu , apesar do uso de alvo enriquecido na preparação da fonte. Depois de estudado o decaimento do ^{154}Eu , foram selecionados os picos devido às transições do ^{152}Eu e ^{154}Eu , que podem ser utilizadas para determinar a concentração do contaminante.

3.6.1 Esquema de Decaimento do ^{154}Eu

O esquema de decaimento β^- do ^{154}Eu para o ^{154}Gd é tão complexo quanto o do decaimento do ^{152}Eu , envolvendo mais de trinta níveis e cerca de 160 transições [80,81]. Na Tabela 3.9 é mostrado o número aproximado de transições levando em consideração a intensidade das linhas.

Probabilidade de emissão	Número de Transições
$P > 1\%$	11
$1\% > P > 0,1\%$	20
$0,1\% > P > 0,01\%$	81
$0,01\% > P$	48
Total	160

Tabela 3.9: Número de transições gama que seguem o decaimento do ^{154}Eu .

Com isto, algumas linhas do ^{152}Eu podem ser bastante afetadas por transições do ^{154}Eu . Por isso é importante conhecer a atividade de ^{154}Eu na amostra, para poder descontar esta contaminação dos picos de interesse.

3.6.2 Determinação da Contaminação do ^{154}Eu

A contaminação pode ser determinada através da relação de áreas entre picos do ^{154}Eu e do ^{152}Eu , utilizando-se a expressão (3.1) para a área de um pico. Escolhendo dois picos, um do ^{154}Eu e outro do ^{152}Eu , próximos em energia e em um mesmo espectro, de modo a desprezar as diferenças entre as intensidades, podemos determinar a atividade relativa do ^{154}Eu através de:

$$\frac{\Omega_{154}}{\Omega_{152}} = \frac{P_{\gamma-152}}{P_{\gamma-154}} \cdot \frac{\text{Área}_{\gamma-152}}{\text{Área}_{\gamma-154}} \quad (3.35)$$

Por meio do estudo das intensidades e energias das transições do ^{154}Eu e ^{152}Eu foi elaborada uma lista com os picos mais indicados para realizar a determinação da contaminação de ^{154}Eu . A lista das transições é apresentada na Tabela 3.10.

Transições - $E\gamma$ (keV)	
^{154}Eu	^{152}Eu
723	719
873	867
1274	1293
1597	1606

Tabela 3.10: *Transições mais indicadas para determinar a atividade relativa de ^{154}Eu em uma fonte de ^{152}Eu .*

Capítulo 4

Espectroscopia Simples do ^{152}Eu

Um dos objetivos das medições de espectroscopia gama simples foi obter as áreas dos picos correspondentes às transições gama mais intensas do ^{152}Eu , em uma situação onde os efeitos secundários fossem pequenos, tornando as correções destes efeitos pouco importantes ou até mesmo desprezíveis.

Para que fosse verificada a eventual existência de novas transições, que não tivessem sido observadas na medição de coincidência γ - γ , foi realizada uma medição com uma alta estatística de contagens.

As medições para cumprir estes dois objetivos utilizaram basicamente o mesmo arranjo experimental, com pequenas mudanças no ajuste da eletrônica associada ao detector e nas fontes radioativas utilizadas.

4.1 Arranjo Experimental

O arranjo experimental utilizado é o disponível no Laboratório do Acelerador Linear [82], típico de espectroscopia gama, e consta de um detector de HPGe com uma blindagem de chumbo ¹ e a eletrônica associada. A geometria foi escolhida de maneira que os efeitos secundários de detecção fossem pouco significativos.

¹A blindagem possuía 10 cm de espessura e dimensões internas de $40 \times 40 \times 40 \text{ cm}^3$.

4.1.1 Detetor e Eletrônica

Nas medições foi utilizado um detetor de germânio hiperpuro (HPGe) da ORTEC [65] com volume de 162 cm^3 , cujas características são apresentadas na Tabela 3.1.

A eletrônica associada ao detetor é composta por um amplificador ORTEC 572 [32] com rejeição de empilhamento e um conversor analógico digital (ADC) ORTEC, modelo AD114 [83] de aproximações sucessivas de 16k canais, acoplado a um módulo histogramador ORTEC modelo HM413 [84]. Na Figura 4.1 é mostrado o diagrama esquemático do sistema de aquisição de dados.

Figura 4.1: Diagrama esquemático do sistema de aquisição de dados [82].

Do amplificador são utilizadas as saídas digitais de ocupado (*busy*) e de rejeição de empilhamento (*inhibit*) e a saída analógica unipolar de energia (Uni.), todas conectadas ao ADC. As duas primeiras saídas servem para verificar a existência de um ou mais sinais de energia no amplificador e indicar a ocorrência de um eventual empilhamento. Estas saídas são usadas pelo ADC para compensar o tempo morto do sistema.

No amplificador podiam ser variados o ganho e a constante de tempo de formação de pulso (*shapping time*). Também podem ser ajustados o nível de voltagem da restauração da linha de base (BLR), o cancelamento de polo zero, e o nível DC.

O *shapping time* utilizado dependia da taxa de contagens. Quando a medição era de baixa taxa de contagem, era utilizado um *shapping time* de 3 μ s, para que houvesse uma melhor resolução em energia. Quando a taxa de contagem era elevada, foi utilizado um *shapping time* de 2 μ s para reduzir o tempo morto do sistema.

O ADC AD114 estava acoplado a um módulo histogramador por meio de uma conexão FERA-BUS. Os ajustes dos discriminadores inferior (*lower level*) e superior (*upper level*), bem como do “*DC-OFFSET*”, são programáveis através do CAMAC pelo programa de aquisição. O ADC possui ainda um relógio de tempo morto Gedcke-Hale [50, 51, 83], que estende o tempo de contagem devido ao empilhamento de dois ou mais sinais.

A montagem do espectro é realizada no módulo histogramador, que transfere o espectro a um microcomputador IBMPC por meio de um sistema CAMAC, conectado a um CONTROLADOR [85].

A resolução em energia obtida com este arranjo, para um *shapping time* de 2 μ s, foi 1,0 e 2,7 keV para as transições de 121 e 1408 keV do ^{152}Eu , respectivamente. Para um *shapping time* de 3 μ s a resolução foi 1,0 e 2,3 keV para as transições de 121 e 1408 keV do ^{152}Eu , respectivamente.

4.1.2 Geometria

O suporte de fontes utilizado nas medições de espectroscopia gama simples foi o mesmo utilizado nos testes de geometria da aquisição, pois este se mostrou bastante adequado, ver Secção 3.5, apresentando uma boa reprodutibilidade da geometria.

Para as medições, tanto a de alta quanto a de baixa taxa de contagens, a geometria utilizada foi basicamente a mesma, havendo apenas uma adaptação do suporte para a utilização da fonte de alta atividade de ^{152}Eu (também utilizada na medida de coincidência). Neste caso, a distância fonte-detector foi pouco maior que 20 cm (para tentar minimizar alguns efeitos secundários de detecção), mesmo com a intenção de obter uma medida com alta estatística de contagem.

4.2 Aquisição e Redução de Dados

A aquisição e redução de dados foram realizadas com as facilidades disponíveis no Laboratório do Acelerador Linear. As medições são séries de contagens de curta duração (uma ou duas horas), permitindo acompanhar a variação do ganho a fim de garantir a qualidade das medições, além de permitir que os espectros sejam agrupados de maneira adequada.

4.2.1 Aquisição de Dados

A aquisição é controlada pelo programa AD114 [82]. No software são selecionados os ajustes dos níveis dos discriminadores (*lower level*, *upper level*) e da tensão correspondente ao canal zero (*DC-OFFSET*). Também pode ser selecionado o modo de controle de tempo de contagem da aquisição (vivo ou de relógio), bem como o tempo de contagem, através do número de espectros a serem adquiridos e do tempo de aquisição de cada espectro. Terminada a contagem, os dados armazenados no módulo histogramador são transferidos para um arquivo em modo texto.

4.2.2 Redução dos Dados

Cada espectro obtido nas séries de medidas corresponde a algumas horas de tempo vivo de contagens. Assim, em cada série de medições são obtidos dezenas de espectros que posteriormente são agrupados. Este procedimento foi adotado para facilitar o acompanhamento da estabilidade do sistema.

Os arquivos de dados, de 16k canais, são comprimidos pelo programa CONVERTE [86] em 8k canais e salvos em arquivos binários compatíveis com os programas de ajuste de picos do LAL.

A verificação da estabilidade do sistema de aquisição de dados foi realizada conforme descrito na Seção 3.5.4 e de modo semelhante ao realizado nas medições de espectroscopia γ - γ , ver Seção 2.3.2. Foram acompanhados por toda série de medidas a posição, largura e a área de 3 picos em cada espectro. No entanto, neste caso, os espectros não eram relocados, mas simplesmente agrupados conforme os requisitos estabelecidos a seguir.

As eventuais variações de ganho (que provocam passeios nas posições dos picos) eram determinadas nos vários espectros por meio do acompanhamento das posições dos picos do espectro. Eles eram somados em um único espectro se a variação na posição média do mesmo pico, nos vários espectros, fosse no máximo $1/4$ ou $1/5$ da largura a meia altura (FWHM) do pico. Com isto, a FWHM do espectro soma é, no máximo, 1,1 FWHM de um espectro individual, evitando-se uma eventual perda de resolução em energia do espectro. Na Figura 4.2 pode ser observado o gráfico do acompanhamento da posição, largura e área de um pico nos vários espectros de uma série de medições.

Figura 4.2: Acompanhamento da posição, largura e área do pico correspondente à transição gama de 1408 keV, na medição de baixa taxa de contagens. Os espectro foram obtidos em medições de 1 h. Nesta série, somente um espectro foi desprezado.

Além da posição do pico, também eram acompanhadas a área e a largura em cada um dos espectros individuais, sendo acumulados apenas os espectros cujos picos

tivessem áreas e larguras dentro da precisão estatística. O controle para as áreas dos picos pode ser aplicado porque o tempo de contagem da série inteira era muito menor que as meias-vidas envolvidas. No entanto, nos casos observados neste trabalho, as variações na área de um pico nos vários espectros estavam associadas a variações de largura ou posição dos picos.

Depois de aplicados os critérios de estabilidade das medições, os espectros eram agrupados pelo programa SOMADOR [87].

4.3 Determinação das Áreas dos Picos

Para ajustar os picos nos vários espectros, foi utilizado o programa IDEFIX [88] por meio de uma interface WINDOWS, IDEFIX from WINDOWS [89], que permite visualizar o espectro e a região de ajuste, bem como selecionar os parâmetros de ajuste.

A função utilizada no ajuste dos picos é composta por uma gaussiana com cauda exponencial a esquerda e mais uma função degrau, e a região de fundo em torno e sob o pico é ajustada por polinômio [90]. A forma da função de ajuste é mostrada na Figura 4.3 e um exemplo de um ajuste pode ser observado na Figura 4.4.

Figura 4.3: Função utilizada no IDEFIX para ajustar um pico. Ela é adequada para ajustar picos de alta estatística de contagem, em que o degrau é proeminente.

O programa IDEFIX permite que sejam ajustados vários picos dentro de uma região. Ele também permite que seja utilizada uma calibração de largura a meia altura do pico, que é útil na identificação de eventuais dubletos.

Figura 4.4: Exemplo do ajuste de um pico utilizando o programa IDEFIX [88]. Os pontos experimentais estão apresentados pelos quadrados e a função ajustada, pela linha contínua. O fundo de escala foi escolhido para evidenciar o degrau sob o pico. No detalhe, o fundo de escala permite visualizar todos os dados experimentais. Também são apresentados os valores dos parâmetros obtidos no ajuste.

Outras funções analíticas e programas usados para descrever a forma dos picos e ajustá-los, principalmente os de alta estatística, descritos na literatura [91–93], não apresentaram resultados melhores que aqueles obtidos com os programas já utilizados no LAL.

4.4 Medições do ^{152}Eu

Nas medições de espectroscopia gama simples foram utilizadas duas fontes de ^{152}Eu produzidas pelo IPEN. A fonte utilizada nas medições de baixa taxa de contagem foi construída com as mesmas características das fontes de calibração, ver Apêndice A. A fonte utilizada nas medições de alta estatística foi a mesma utilizada nas medições de espectroscopia γ - γ , que possuía uma alta atividade e um invólucro especial.

4.4.1 Baixa Taxa de Contagens

Para determinar as intensidades das transições do ^{152}Eu foi realizada uma medição na qual os efeitos secundários de detecção fossem minimizados. Para isto, foi escolhida uma distância fonte-detector grande e uma taxa de contagem pequena, além de um tempo longo de medição da fonte de ^{152}Eu para que fosse obtida uma estatística de contagens razoável.

A fonte utilizada possuía uma atividade de aproximadamente 60 kBq, com uma contaminação de ^{154}Eu de 0,166(27)%. A taxa de contagens obtida nesta medição foi de aproximadamente 118 contagens por segundo, o tempo morto foi de aproximadamente 0,4%.

Foram realizadas três séries de aquisições, com 59, 38 e 24 espectros de 7200 segundos de tempo vivo (cada). Um único espectro foi rejeitado devido aos testes de estabilidade do sistema, ver Figura 4.2. Portanto, foram utilizados 120 espectros, totalizando 240 h de aquisição. O espectro obtido pode ser observado na Figura 4.5 e em detalhes nas Figuras 4.6 e 4.7.

Figura 4.5: Espectros das medições de alta estatística de contagens e baixa taxa de contagens das fontes de ^{152}Eu e da radiação de fundo. Nos três espectros a dispersão em energia foi de aproximadamente 0,35 keV/canal.

Figura 4.6: Espectros da medição de baixa taxa de contagens da fonte de ^{152}Eu . A dispersão em energia é 0,35 keV/canal.

Figura 4.7: Espectros da medição de baixa taxa de contagens da fonte de ^{152}Eu . A dispersão em energia é 0,35 keV/canal.

4.4.2 Alta Estatística

Na medição de alta estatística de contagens foi realizada uma série de contagens com a mesma fonte de ^{152}Eu usada nas medidas de espectroscopia γ - γ . A atividade da fonte era de aproximadamente 1,0 MBq e possuía uma contaminação de ^{154}Eu de 0,218(6)%. Nesta série foram obtidos 82 espectros de 7200 s de tempo vivo, cada. Após a verificação dos critérios de estabilidade das medições, foi obtido um espectro correspondente a 100 h de tempo vivo, que também pode ser observado na Figura 4.5. A taxa de contagens obtida foi de aproximadamente 6,1 kcps, com o tempo morto em torno de 14 %.

Como não foram observadas novas transições, a medição foi basicamente utilizada como apoio para a determinação dos picos na medição de baixa atividade.

4.4.3 Radiação de Fundo

Também foi realizada uma série de medições do fundo radioativo do interior da blindagem, sendo obtidos 80 espectros de 3600 s. Aplicados os critérios de estabilidade do sistema, foi possível utilizar todos os espectros obtidos na série de medições. Na Figura 4.5 pode-se observar o espectro obtido.

Devido a blindagem utilizada, a taxa de contagem resultante foi muito pequena, aproximadamente 3,5 cps, sendo o tempo morto praticamente zero, 0,06 %.

4.5 Calibrações

Para facilitar a identificação dos picos, bem como auxiliar na determinação de suas áreas, foram realizadas calibrações de energia e largura a meia altura dos picos, para todas as medições das fontes de ^{152}Eu . Também foram realizadas calibrações de eficiência e da razão entre a área total e a área de pico, para a medição de baixa taxa de contagens.

Na medição de alta estatística de contagens não foi possível calibrar a eficiência com precisão, pois o arranjo experimental, em particular o invólucro da fonte de ^{152}Eu , foi produzido com características especiais (para a sua utilização em medidas de espectroscopia γ - γ), não sendo possível reproduzir o arranjo para fontes primárias de calibração.

Todas estas calibrações foram realizadas usando o Método dos Mínimos Quadrados [42], sendo que a calibração da razão total para pico exigiu a aplicação do método matricial, que envolve a definição de uma matriz de planejamento, conforme será detalhado na secção 4.5.4.

4.5.1 Largura

Numa primeira etapa, a maioria dos picos do espectro foi ajustada com a largura como parâmetro livre. A partir destes resultados foi realizada a calibração da largura dos picos. A função relacionando a largura a meia altura do pico (FWHM) com sua posição no espectro, x , em canais, usada no programa de análise [88] é:

$$largura = \sqrt{a + b \cdot x + c \cdot x^2} \quad . \quad (4.1)$$

Os parâmetros a , b e c estão relacionados ao ruído eletrônico, ao fator de Fano [50,51] e à não linearidade do sistema, respectivamente. Em medições de longa duração estes parâmetros também refletem a variação do zero e ganho do sistema.

No ajuste da largura em função da posição foi utilizada a maior parte dos picos do espectro. No caso de multipletos foi usado apenas um dos picos do multiplete, preferencialmente o de maior área.

A curva da calibração de largura do espectro de baixa taxa de contagens é mostrada na Figura 4.8. Neste ajuste, realizado pelo Método dos Mínimos Quadrados, foram utilizadas as larguras de 51 picos e o chi-quadrado reduzido obtido foi 1,42.

Também foi realizada uma calibração da largura a meia altura do espectro de alta estatística de contagens. Para a medição de fundo foi utilizada a mesma calibração da medição de baixa taxa de contagens, pois as medições foram realizadas com um intervalo de tempo muito pequeno e possuíam o mesmo ganho em energia.

Figura 4.8: Calibração da largura a meia altura em função da posição do pico para o espectro de baixa taxa de contagem. A dispersão em energia é de aproximadamente 0,35 keV/canal.

4.5.2 Energia

Como a maior parte das transições que seguem o decaimento do ^{152}Eu já é conhecida, a calibração de energia teve como única função auxiliar na identificação dos picos de baixa intensidade, que muitas vezes formam multipletos.

A calibração de energia, por um polinômio de quarto grau, utilizou os picos do ^{152}Eu encontrados no espectro e que não fossem parte de multipletos não resolvidos.

4.5.3 Eficiência

A calibração de eficiência de pico, ou seja, a eficiência com que um fóton é detetado com deposição de toda a energia do gama, deve ser realizada com fontes primárias de calibração, de preferência monocromáticas.

No entanto, o conjunto de fontes monocromáticas disponíveis para calibração era insuficiente. Para contornar esta dificuldade, foi utilizada uma fonte de ^{152}Eu

e outra de ^{133}Ba , que possuem muitas transições gamas. É claro que este procedimento não é o mais adequado para se determinar a intensidade de transições gama do ^{152}Eu . Mesmo assim, a calibração obtida foi suficiente para o desenvolvimento do método e a obtenção de resultados preliminares com uma incerteza relativamente alta.

Para a calibração de eficiência foram utilizadas as fontes mostradas na Tabela 4.1. Estas fontes cobrem uma faixa de energia de 53 a 1800 keV.

Fonte	Fornecedor	Atividade (kBq)	Transições utilizadas - E (keV)
^{133}Ba	Amersham	126(3)	53, 80, 160, 223, 276, 302, 356 e 383
^{152}Eu	Amersham	167(5)	121, 244, 344, 411, 444, 778, 867, 964, 1085, 1089, 1112, 1213, 1299 e 1408
^{137}Cs	Amersham	26,8(5)	661
^{54}Mn	IPEN	9,42(4)	834
^{88}Y	IPEN	5,136(20)	1836
^{60}Co	IPEN	3,701(4)	1173 e 1332

Tabela 4.1: Fontes utilizadas na calibração de eficiência. A linha de 896 keV do ^{88}Y não foi utilizada no ajuste por apresentar um resíduo muito alto. Outras características das fontes são descritas no Apêndice A.

As fontes fornecidas pelo IPEN e calibradas em um sistema $4\pi\beta\text{-}\gamma$ [94]. As atividades destas fontes têm uma incerteza muito pequena, pois, além da medida inicial muito precisa, elas foram calibradas recentemente, de modo que a influência da incerteza da meia vida é desprezível.

As fontes produzidas pela Amersham foram adquiridas há bastante tempo pelo LAL e têm uma incerteza relativamente alta na atividade. No entanto, elas cobrem uma faixa de energia não contemplada pelas fontes produzidas pelo IPEN.

A eficiência para cada gama foi obtida (independentemente de outras transições) levando-se em consideração as informações sobre a atividade da fonte e sua data de calibração (referência), a probabilidade de emissão do gama, o tempo de contagem e a área obtida. Para as fontes com mais de uma transição gama (inclusive para o ^{152}Eu) foi levado em consideração o efeito de soma. Em nenhum dos casos foi necessário considerar o empilhamento, pois as taxas de contagem foram suficientemente baixas.

A dependência da eficiência em função da energia do gama é mostrada na Figura 4.9. Na literatura [1,95–100] existem algumas funções para a calibração de eficiência, sendo

utilizada neste trabalho a expressão:

$$\varepsilon(E) = \sum_{i=0}^4 a_i \ln \left(\frac{E}{E_b} \right)^i \quad (4.2)$$

onde:

- ε é a eficiência da detecção do raio gama de energia E ;
- E é a energia da transição gama;
- E_b é uma energia de referência e
- a_i são os parâmetros a serem ajustados.

Figura 4.9: Curva de calibração de eficiência. As eficiências experimentais dos gamas provenientes das fontes de ^{152}Eu e ^{133}Ba apresentam uma incerteza maior em relação às das demais fontes.

O ajuste foi realizado pelo programa ASIRAM [101], que ajusta os parâmetros da curva aos dados experimentais pelo Método dos Mínimos Quadrados. O programa fornece os parâmetros ajustados e também a matriz de variância. No ajuste realizado, obteve-se um χ^2_{red} de 1,0 para 22 graus de liberdade.

4.5.4 Eficiência Total - Razão Total para Pico

A eficiência total de detecção [102, 103] foi obtida a partir do produto da eficiência de pico pela razão total para pico, ou seja, a razão da área total do espectro (devido à transição gama) pela área do pico. Portanto, para obter a eficiência total é necessário calibrar a razão total para pico em função da energia da transição gama e multiplicá-la pela eficiência de pico.

A área do pico foi determinada através do programa de análise de dados IDEFIX, ver Secção 4.3. Já a determinação da área total do espectro devido ao raio gama exige um procedimento um pouco mais elaborado, principalmente, para levar em conta a parte não observada do início do espectro.

A partir do espectro obtido na medição da fonte, representado na Figura 4.10, verifica-se que ele só é observado a partir de 20 keV, pois o discriminador inferior do ADC é ajustado para que o ruído eletrônico não interfira significativamente nas medições. Assim é necessário realizar uma extrapolação para obter o número de contagens na região entre 0 e 40 keV. Nesta faixa está incluída a região onde não existem contagens (0-20 keV) e uma região do espectro suscetível a ruídos (20-40 keV).

Figura 4.10: Espectro de uma fonte de ^{137}Cs . No detalhe pode ser observada a região de baixa energia do espectro. A dispersão em energia é de 0,35 keV/canal.

Para calcular a área total do espectro, a área obtida entre os limites inferior (próximo da discriminação do ADC) e superior do espectro (até o término do pico) é somada com a área extrapolada. Do valor obtido é descontada a área devido à radiação de fundo.

As razões obtidas a partir de fontes monocromáticas apresentam um comportamento parabólico com a energia, conforme pode ser observado na Figura 4.11. Deste modo, para ajustar a razão em função da energia foi utilizada, empiricamente, a equação:

$$R = \frac{\text{Área Total}}{P} = a_0 + a_1 \cdot E + a_2 \cdot E^2 \quad (4.3)$$

onde:

R é a razão total para pico;

P é a área do pico;

a_i são os parâmetros a serem ajustados e

E é a energia do raio gama.

Figura 4.11: Gráfico da razão total para pico em função da energia. Os pontos experimentais obtidos a partir de fontes com dois gamas são apenas ilustrativos.

Quando a razão é obtida a partir de uma fonte com duas transições gama, com energias E_1 e E_2 , temos:

$$R = \frac{\text{Área Total}}{P_1 + P_2} = \frac{A_1 + A_2}{P_1 + P_2} \quad (4.4)$$

onde:

A_i é a área do espectro correspondente a transição gama i e
 P_i é a área do pico correspondente a transição i .

Reescrevendo A_1 e A_2 em termos da equação (4.3), obtemos:

$$R = \frac{\text{Área total}}{P_1 + P_2} = \frac{P_1 \cdot (a_0 + a_1 \cdot E_1 + a_2 \cdot E_1^2) + P_2 \cdot (a_0 + a_1 \cdot E_2 + a_2 \cdot E_2^2)}{P_1 + P_2} \quad (4.5)$$

Isolando os termos da equação em função dos parâmetros a_1 e a_2 :

$$R = \frac{\text{Área total}}{P_1 + P_2} = a_0 + \frac{P_1 \cdot E_1 + P_2 \cdot E_2}{P_1 + P_2} \cdot a_1 + \frac{P_1 \cdot E_1^2 + P_2 \cdot E_2^2}{P_1 + P_2} \cdot a_2 \quad (4.6)$$

Neste caso, de fontes bicromáticas, os elementos da matriz de planejamento são a energia média ponderada e a energia quadrática média ponderada. Assim, havendo fontes monocromáticas e bicromáticas, a matriz de planejamento é dada por:

$$\mathbf{X} = \begin{bmatrix} 1 & E & E^2 \\ \vdots & \vdots & \vdots \\ 1 & \frac{P_1 \cdot E_1 + P_2 \cdot E_2}{P_1 + P_2} & \frac{P_1 \cdot E_1^2 + P_2 \cdot E_2^2}{P_1 + P_2} \\ \vdots & \vdots & \vdots \end{bmatrix} \quad \left. \begin{array}{l} \\ \\ \\ \end{array} \right\} \begin{array}{l} \text{fontes monocromáticas} \\ \\ \text{fontes bicromáticas} \end{array} \quad (4.7)$$

A Tabela 4.2 mostra as fontes utilizadas neste trabalho na calibração da razão total para pico. A dependência obtida para a razão total para pico em função da energia da transição é mostrada na Figura 4.11.

Nuclídeo	Fornecedor	Transições utilizadas (keV)
^{57}Co	IPEN	122 e 136
^{51}Cr	IPEN	320
^{198}Au	IPEN	411
^{137}Cs	Amersham	661
^{54}Mn	IPEN	834
^{88}Y	IPEN	898 e 1836
^{60}Co	IPEN	1173 e 1332

Tabela 4.2: Fontes utilizadas neste trabalho na calibração da razão total para pico. Algumas das fontes foram utilizadas somente na calibração de eficiência total e, portanto, suas atividades não foram calibradas.

O ajuste obtido é mostrado na Figura 4.11. Neste caso as incertezas nas razões foram estimadas para que o chi-quadrado reduzido fosse 1, visto que a incerteza obtida por propagação não reflete a flutuação observada pelos pontos experimentais.

4.6 Seleção de Transições

Para obter os parâmetros do decaimento do ^{152}Eu , ver Secção 5.2, foi elaborado um esquema de decaimento simplificado utilizando transições gama observadas nas medições de espectroscopia gama simples. Para isto, foram selecionadas as transições com intensidade maior que 0,1% fótons por decaimento mais as que fossem necessárias para formar um esquema de decaimento consistente.

A partir dos dados fornecidos na literatura [7], além dos obtidos neste trabalho, foi escolhido um conjunto de transições, apresentado na Tabela 4.3. Para facilitar o tratamento dos dados, estas transições foram divididas em dois conjuntos, pertencentes aos esquemas de níveis do Sm e do Gd.

Como os picos correspondentes às transições selecionadas podem estar sujeitos a efeitos secundários de detecção ou contaminação (por ^{154}Eu ou fundo), que podem ser significativos, é importante conhecer estes eventuais efeitos para que sejam efetuadas as devidas correções nas áreas dos picos das transições selecionadas.

Nuclídeo	Nível	Transições
	Energia (keV)	Energia (keV)
Sm	1649	416, 563 e 1528
	1579	1212 e 1457
	1529	295, 444 e 488
	1371	1005 e 1249
	1292	329, 926 e 1292
	1233	867 e 1112
	1085	719, 964 e 1085
	1041	674 e 919
	1022	656
	963	841 e 963
	810	444, 688 e 810
	366	244
	121	121
Gd	1643	712 e 1300
	1443	503, 678 e 1089
	1123	367 e 779
	1109	764 e 1109
	930	586
	755	411
	344	344

Tabela 4.3: Transições gama que seguem o decaimento do ^{152}Eu e que formam um esquema de decaimento consistente.

4.6.1 Contaminação de ^{154}Eu

Pela análise de algumas transições gama entre níveis nucleares do ^{154}Gd , ver Secção 3.6, verificou-se que a contaminação de ^{154}Eu nas fontes utilizadas nas medições de baixa taxa de contagens e de alta estatística foram de 0,166(27)% e 0,218(6)%, respectivamente.

Portanto, das transições apresentadas na Tabela 4.3 apenas as transições de 121, 444 e 1005 keV possuem uma contribuição significativa de ^{154}Eu . Na Tabela 4.4 são apresentados os fatores de correção para as áreas destas transições, obtidos de acordo com o descrito na Secção 3.6.2.

Nos picos de 1292 e 1408 keV, a contaminação por gamas do decaimento do ^{154}Eu é muito pequena, pois as linhas com energias próximas têm intensidades muito pequenas.

Transição do ^{152}Eu Energia (keV)	Contaminação de ^{154}Eu Energia (keV)	Correção
121,7	123,1	0,99764(39)
444,0	444,4	0,99970(5)
1005,3	1004,8	0,957(7)

Tabela 4.4: *Fatores de correção nas áreas dos picos devido a contaminação de ^{154}Eu .*

4.6.2 Fundo

A partir da análise da medição de fundo verificou-se que apenas a transição de 295 keV possui uma contribuição significativa da radiação de fundo. A linha de fundo de 295,2 keV pertence ao decaimento do ^{214}Pb da série do ^{238}U [104] e o pico correspondente apresenta uma área de 2163(65) contagens em 80 horas de medição. A correção da área do pico foi realizada diretamente levando-se em consideração o tempo de aquisição de dados das medições.

4.6.3 Multipletos no ^{152}Eu

Em muitos casos as transições do ^{152}Eu tem energias muito próximas e acabam formando no espectro picos onde não é possível ajustar um multipletto (com certa confiança). Deste modo, algumas vezes, a área de um pico tem a contribuição de várias transições gama.

Assim, para que somente as contribuições das transições selecionadas sejam levadas em consideração, é necessário corrigir a contribuição destas transições para a área do pico. A correção na área do pico é obtida pela proporção da intensidade gama da transição selecionada em relação à intensidade total do pico. Na Tabela 4.5 são mostradas as transições com suas respectivas “contaminações” e com o fator de proporcionalidade.

4.6.4 Efeitos Secundários de Detecção

Dos efeitos secundários de detecção, o único a ser levado em consideração é a soma de dois gamas, visto que o empilhamento, as somas com β e bremsstrahlung são desprezíveis.

Pico Energia (keV)	Composição			Proporção
	Nuclídeo	Transição Energia (keV)	Nível Energia(keV)	
329	Gd	328	1643	0,0251(19)
	Sm	329	1292	0,043(13)
		330	1371	0,93(8)
344	Gd	344,2	344	1,000(9)
	Sm	345,5	1579	0,00037(2)
444	Sm	443,9	1529	0,897(13)
		443,9	810	0,103(7)
564	Sm	562,9	684	0,08(3)
		563,9	1649	0,92(6)
674	Sm	674,6	1041	0,91(4)
	Gd	674,6	1605	0,091(11)
719	Sm	719,3	1085	0,82(7)
		719,3	1529	0,18(3)
919	Sm	919,3	1041	0,986(18)
		919,7	1730	0,0142(7)
964	Sm	963,3	963	0,00917(14)
		964,0	1085	0,991(9)
1085	Sm	1084,4	1769	0,00101(7)
		1085,8	1085	0,999(12)

Tabela 4.5: *Multipletos no espectro do ^{152}Eu que possuem transições selecionadas para o ajuste. São apresentados os multipletos com suas transições componentes e suas respectivas proporções nas áreas. Em negrito estão anotadas as transições selecionadas.*

O empilhamento é praticamente nulo, pois a taxa de contagem é muito pequena. Verificando a região do espectro em torno de 466 keV não se observa o pico de empilhamento do 121 keV com o 344 keV, ver Figura 4.12.

A soma com o raio X é muito pequena devido à baixa eficiência de detecção para energias em torno de 45 keV. Assim, se uma eventual soma com o raio X fosse muito significativa, deveria existir um pico da soma da transição de 244 keV (pois a transição de 121 keV é a de maior intensidade e a que mais converte) com o raio X. Verificando o espectro na região de 288 keV não se observa (claramente) o pico soma.

Deste modo, a soma entre dois gamas é o efeito mais significativo e é tratada no Capítulo 5. Deve-se prestar atenção, também, quanto a existência de somas cujo resultado acabam gerando uma contribuição inesperada à área do pico de uma transição que não se relaciona a nenhuma das componentes. Como exemplo, no Sm, a soma

Figura 4.12: Região do espectro de ^{152}Eu próxima do pico de empilhamento do 121 e 344 keV. Na Figura A observa-se a região do empilhamento em uma medição de 240 h com uma taxa de contagem de 120 cps. Na Figura B verifica-se o empilhamento em uma medição de 100 h, com uma taxa de contagem 6,1 kcps. A dispersão em energia é de aproximadamente 0,35 keV/canal nas Figuras A e B.

das transições da cascata de 1408 e 121 keV, cujo *crossover* é de 1529,8 keV, acaba influenciando no pico devido à transição de 1528 keV que decai do nível de 1649 keV. Na Tabela 4.6 são apresentadas as transições selecionadas afetadas pelas somas.

Pico soma E_γ (keV)	Nuclídeo	γ_1		γ_2	
		E_γ (keV)	E_N (keV)	E_γ (keV)	E_N (keV)
367	Sm	244	366	121	121
566	Sm	444	1529	121	121
712	Gd	367	1123	344	344
841	Sm	719	1085	121	121
1528	Sm	1408	1529	121	121
		444	1529	1085	1085

Tabela 4.6: Transições selecionadas que são afetadas pelas somas. Para as transições gama que compõem a cascata, indicadas por γ_1 e γ_2 , são mostradas as suas respectivas energias e as energias do nível do qual decaem.

Capítulo 5

Modelando a Observação do Decaimento do ^{152}Eu

As intensidades das transições gama são, geralmente, determinadas relativamente a uma transição gama de alta intensidade [105]. A intensidade absoluta é calculada a partir do fator de normalização, que é obtido pela soma das intensidades das transições que decaem para o nível fundamental. No entanto, neste procedimento, as correções devido aos efeitos secundários de detecção são bastante complicadas. Além disso, as correlações entre os fatores de normalização e as intensidades relativas são negligenciados.

Portanto, ao invés de determinar diretamente a intensidade a partir das áreas experimentais, é mais interessante escrever as áreas dos picos em função dos parâmetros de decaimento [105, 106] e, em seguida, determinar as intensidades a partir destes parâmetros (razões de ramificação e alimentações beta). Estes parâmetros formam um conjunto consistente de informações de um esquema de níveis e podem ser obtidos, ao menos alguns deles, em decaimentos de isômeros e isóbaros do nuclídeo. Além disso, eles também são necessários para determinar efeitos secundários de detecção.

Por isso, as fórmulas das áreas dos picos das transições mais intensas que seguem o decaimento do ^{152}Eu foram escritas levando-se em consideração os parâmetros de decaimento e as relações de soma. Estas expressões foram ajustadas às áreas experimentais pelo Método dos Mínimos Quadrados, determinando-se os parâmetros de decaimento. A partir destes parâmetros foram obtidas as intensidades das transições.

5.1 Método Geral

Pode-se escrever as áreas dos picos devidas às transições gama a partir da atividade da fonte, de parâmetros do decaimento: alimentações betas; razões de ramificação; coeficientes de conversão e correlações angulares, e características do sistema detetor: calibrações de eficiência de pico e total. É claro que, podem ser incluídos novos parâmetros na descrição da área ao passo que outros efeitos de detecção sejam considerados, tais como o empilhamento, caracterizado por um parâmetro de resolução em tempo.

Assim, a área de um pico pode ser escrita genericamente por:

$$\text{Área}_i = \text{Área}(E_i, \Omega, f_\beta's, \kappa's, \alpha's, \omega's, \varepsilon, \varepsilon_t, \text{etc....}) \quad (5.1)$$

onde:

- E_i é a energia da transição gama;
- Ω é a atividade da fonte;
- $f_\beta's$ são as alimentações beta;
- $\kappa's$ são as razões de ramificação;
- $\alpha's$ são os coeficientes de conversão interna;
- $\omega's$ são as correlações angulares;
- ε é a eficiência de pico e
- ε_t é a eficiência total, que pode ser escrita em termos do produto da razão pico para total pela eficiência de pico.

Com as expressões para as áreas dos vários picos, levando em consideração os efeitos citados nos Capítulos 3 e 4, pode-se realizar o ajuste dos parâmetros de decaimento aos dados experimentais pelo Método dos Mínimos Quadrados [42]. Com isto, os parâmetros ajustados são obtidos por:

$$\hat{\vec{p}} = (\mathbf{X}^T \mathbf{V}^{-1} \mathbf{X})^{-1} (\mathbf{X}^T \mathbf{V}^{-1} \vec{Y}) \quad (5.2)$$

onde:

- $\mathbf{X}$ é a matriz de planejamento;
- $\mathbf{V}$ é a matriz de variância;
- $\vec{Y}$ é o vetor de dados e
- $\hat{\vec{p}}$ é o vetor de parâmetros.

Como o ajuste não é linear nos parâmetros, é utilizado o Método de Gauss Marquardt [42], que consiste em ajustar iterativamente a diferença entre os valores estimados para os parâmetros $\hat{\vec{p}}$ para a diferença entre as áreas experimentais e as áreas obtidas com os parâmetros estimados. Para realizar este ajuste é necessário fornecer uma estimativa inicial dos parâmetros a serem ajustados. A cada iteração, é obtida uma estimativa melhor para os parâmetros. O ajuste se encerra quando as eventuais mudanças nos parâmetros são bem menores que as incertezas nestes parâmetros.

Os elementos da matriz de planejamento são obtidos por:

$$\mathbf{X}_{i\nu} = \left. \frac{\partial}{\partial p_\nu} \text{Área}(E_i, \Omega, f_\beta's, \kappa's, \alpha's, \omega's, \varepsilon, \varepsilon_t, \text{etc....}) \right|_{\vec{p}} \quad (5.3)$$

onde:

$\vec{p}$ é o vetor das estimativas dos parâmetros.

Neste caso, os parâmetros a serem ajustados são as alimentações betas, as razões de ramificação e o número de decaimentos da fonte.

A matriz de variância total, $\mathbf{V}$, é obtida propagando-se as incertezas nas áreas dos picos, levando em consideração as incertezas dos parâmetros utilizados no ajuste. Assim, a matriz de variância pode ser calculada por:

$$\mathbf{V} = \mathbf{V}_A + \mathbf{V}_{\varepsilon_p} + \mathbf{V}_{\varepsilon_t} + \mathbf{V}_\alpha + \dots \quad (5.4)$$

onde $\mathbf{V}_A$ é a matriz de variância das áreas dos picos e $\mathbf{V}_\varepsilon$, $\mathbf{V}_{\varepsilon_t}$ e $\mathbf{V}_\alpha$, são as matrizes de variância devido às incertezas na eficiência de pico, na eficiência total e nos coeficientes de conversão, respectivamente. Por exemplo, sendo a eficiência de pico expressa por meio de parâmetros $c_0, \dots, c_n$, com sua respectiva matriz de covariâncias, a matriz de variância na área do pico devido a calibração da eficiência de pico pode ser obtida por:

$$\mathbf{V}_\varepsilon = \mathbf{D}\mathbf{V}_{p\varepsilon}\mathbf{D}^T \quad (5.5)$$

onde $V_{p\varepsilon}$ é a matriz de variância dos parâmetros da curva de eficiência e

$$D_{j\nu} = \left. \frac{\partial \text{Área}(E_j, \dots)}{\partial c_\nu} \right|_{\vec{p}}. \quad (5.6)$$

Para que seja utilizado um conjunto mínimo de parâmetros é importante levar em consideração os vínculos existentes entre cada um destes parâmetros. O primeiro vínculo a ser aplicado é a razão de ramificação de transições de um mesmo nível, cujo somatório é igual a 1. Outro vínculo é a soma das alimentações ($\beta + CE$) dos níveis, cujo somatório também é 1.

5.2 Aplicando o Método

Para determinar os parâmetros de decaimento e, conseqüentemente, as intensidades das transições gama do ^{152}Eu com suas respectivas correlações, foi utilizada a medição de baixa taxa de contagens, pois os efeitos secundários de detecção são pequenos, ver Capítulo 4, sendo o efeito de soma o único que precisou ser levado em conta. Apesar disso, as expressões para as áreas dos picos são bastante complexas.

O programa para realizar o ajuste dos parâmetros de decaimento foi desenvolvido na plataforma (*software*) MATHCAD, que apresentou restrições de memória para execução de um único ajuste envolvendo todas as transições do ^{152}Eu . Para contornar este problema foram realizados dois ajustes para os parâmetros de decaimento, um para as transições que seguem o decaimento β^+ do ^{152}Eu e outro para o decaimento β^- . Nos dois casos, foram levadas em consideração apenas as transições mais intensas dos decaimentos que formavam um esquema consistente.

5.2.1 Esquema de Níveis Simplificado

As transições selecionadas para compor os esquemas de decaimento são aquelas com intensidade superior a 0,1%/decaimento, ver Secção 4.6, formando um esquema de decaimento simplificado. Para estas transições foram verificados os efeitos secundários de detecção que eventualmente possam influenciar as áreas dos picos.

Por meio do esquema de alimentação e decaimento de um nível, mostrado na Figura 5.1, pode-se observar que há transições não utilizadas, tanto alimentando um determinado nível quanto decaindo desse nível. Assim, para que o balanço de intensidade no esquema de decaimento seja consistente, deve-se levar em consideração as intensidades das transições não utilizadas no ajuste.

Deste modo, define-se a alimentação f_i^* como a soma das intensidades de todas as transições não utilizadas. Na situação onde as transições alimentam um mesmo nível, é adicionada à alimentação beta do nível. Na outra situação, onde as transições decaem de determinado nível, as razões de ramificação das transições são obtidas levando em consideração as intensidades de todas as transições. As intensidades são obtidas da literatura [7] quando possível e, para as transições observadas apenas neste trabalho, são usados os valores apresentados na Secção 2.7.

Figura 5.1: Esquema de alimentação e decaimento de um nível. As transições representadas por linhas tracejadas não são utilizadas na elaboração do esquema de decaimento simplificado.

5.2.2 ^{152}Gd

Para o esquema do ^{152}Gd foram selecionadas todas as transições com probabilidades de emissão superiores a 0,1%, com exceção da transição de 1109 keV, que desexcita o

nível de 1109 keV e forma um dubleto com a transição de 1112 keV, que é muito intensa e pertence ao esquema do ^{152}Sm . O esquema de níveis simplificado do ^{152}Gd pode ser observado na Figura 5.2. Com isto, foram utilizadas para o ajuste as áreas dos picos devido as 11 transições gamas selecionadas, ver Tabela 5.1.

Nível E (keV)	Transição E (keV)	Observação
1643,3	1299,1 712,8	É afetada pela soma das transições de 367,8 e 344,3 keV
1434,0	1089,7 678,6 503,5	
1123,2	778,9 367,8	
1109,1	764,9	
930,6	586,3	
755,4	411,1	
344,3	344,3	Contribuição da área do pico de 345 keV

Tabela 5.1: Transições utilizadas no ajuste do esquema de níveis do ^{152}Gd .

No ajuste foram utilizadas 11 equações, correspondentes as áreas de 11 transições gama, para ajustar 10 parâmetros. Estes parâmetros correspondem: as frações da alimentação beta dos níveis de 344, 755, 1123, 1434, 1643; as razões de ramificações das transições de 678, 778, 1089, 1299; e a atividade da fonte.

As razões de ramificações das transições de 712, 503 e 367 keV e a alimentação beta do nível de 755 keV foram determinadas a partir dos demais parâmetros utilizando as relações de vínculo. Como neste caso só foi ajustado o esquema de níveis do Gd, a fração da alimentação total beta do ^{152}Gd no decaimento do ^{152}Eu foi fixada em 0,2792 desintegrações por decaimento [7].

Para exemplificar a complexidade das expressões para as áreas dos picos, são mostradas as equações (5.7) e (5.8) que descrevem as áreas dos picos de 1089 e 678 keV, respectivamente, que decaem do nível de 1434 keV.

$$\begin{aligned}
 A_{1089} = & \frac{\varepsilon_p(E_{1089}) \cdot \Omega \cdot \Delta t}{1 + \alpha_{1089}} \left[(f_{1434} + f_{1434}^*) \cdot \kappa_{1089} \left(1 - \frac{\varepsilon_t(E_{344}) \cdot \omega_{1089-344}}{1 + \alpha_{344}} \right) \right] + \\
 & \frac{\varepsilon_p(E_{678}) \cdot \Omega \cdot \Delta t}{1 + \alpha_{678}} \cdot (f_{1434} + f_{1434}^*) \cdot \kappa_{678} \cdot \frac{\varepsilon_p(E_{411}) \cdot \omega_{678-411}}{1 + \alpha_{411}} + \\
 & \frac{\varepsilon_p(E_{503}) \cdot \Omega \cdot \Delta t}{1 + \alpha_{503}} \cdot (f_{1434} + f_{1434}^*) \cdot (1 - \kappa_{1089} - \kappa_{678} - \kappa_{1434}^*) \cdot \frac{\varepsilon_p(E_{586}) \cdot \omega_{503-586}}{1 + \alpha_{586}}
 \end{aligned} \quad (5.7)$$

Figura 5.2: Parte do esquema de decaimento β^- do ^{152}Eu , mostrando as transições gama utilizadas no ajuste.

$$A_{678} = \frac{\varepsilon_p(E_{678}) \cdot \Omega \cdot \Delta t}{1 + \alpha_{678}} (f_{1434} + f_{1434}^*) \cdot \kappa_{678} \left(1 - \frac{\varepsilon_t(E_{411}) \cdot \omega_{678-411}}{1 + \alpha_{411}} - \frac{\varepsilon_t(E_{344})}{1 + \alpha_{344}} \right) \quad (5.8)$$

As áreas experimentais das transições foram obtidas a partir da medição de baixa taxa de contagem e foram corrigidas levando em consideração os efeitos secundários de detecção, veja as observações na Tabela 5.1.

No ajuste foram realizadas 5 iterações e o chi-quadrado obtido foi de 0,15, com uma probabilidade de ser excedido aproximadamente igual a 95%. Os parâmetros ajustados e sua matriz de correlação são mostrados na Tabela 5.2.

Os resultados obtidos para as alimentações beta são compatíveis com os valores apresentados na literatura e as correlações são, em geral, pequenas, exceto entre as alimentações mais intensas. As correlações entre as razões de ramificação são bem pequenas, sendo a única exceção a correlação entre as razões de ramificação das transições de 1089 e 678 keV, que decaem do mesmo nível.

Par.	Valor	Matriz de correlação									
		f_{344}	f_{755}	f_{1123}	f_{1434}	f_{1643}	κ_{1299}	κ_{1089}	κ_{678}	κ_{778}	$\Omega \cdot \Delta t$
f_{344}	0,0796(10)	1	-0,11	-0,96	-0,59	-0,51	0,18	-0,09	0,09	-0,36	0,74
f_{755}	0,00899(13)	-0,11	1	-0,01	-0,06	0,05	-0,04	0,16	-0,24	0,70	-0,10
f_{1123}	0,1386(8)	-0,96	-0,01	1	0,40	0,37	-0,21	-0,07	0,05	0,27	-0,68
f_{1434}	0,02424(22)	-0,59	-0,06	0,40	1	0,33	-0,03	0,48	-0,41	0,14	-0,45
f_{1643}	0,01814(14)	-0,51	0,05	0,37	0,33	1	-0,01	0,13	-0,10	0,11	-0,54
κ_{1299}	0,8942(13)	0,18	-0,04	-0,21	-0,03	-0,01	1	0,05	-0,11	-0,08	0,12
κ_{1089}	0,714(3)	-0,09	0,16	-0,07	0,48	0,13	0,05	1	-0,93	-0,02	-0,02
κ_{678}	0,1937(23)	0,09	-0,24	0,05	-0,41	-0,10	-0,11	-0,93	1	0,02	0,02
κ_{778}	0,9380(7)	-0,36	0,70	0,27	0,14	0,11	-0,08	-0,02	0,02	1	-0,20
$\Omega \cdot \Delta t$	$1,279(5) \cdot 10^{10}$	0,74	-0,10	-0,68	-0,45	-0,54	0,12	-0,02	0,02	-0,20	1

Tabela 5.2: Parâmetros ajustados e a matriz de correlação obtida no decaimento β^- do ^{152}Eu .

5.2.3 ^{152}Sm

Para o esquema do ^{152}Sm foram selecionadas apenas as transições com probabilidades de emissão superiores a 0,3%, devido a dificuldade em realizar um ajuste com muitas transições na plataforma MATHCAD. Com isto, foram utilizadas no ajuste as áreas de 20 transições gamas, apresentadas na Tabela 5.3.

Nível E (keV)	Transição E (keV)	Observação
1649,9	1528,1 563,9	É afetada pela soma das cascatas: 1408-121 keV e 444-1085 keV Tem contribuição da transição de 562,9 keV do ^{152}Sm
1579,3	1457,6 1212,9	
1529,8	1408,0 488,6 443,9 295,9	Tem contribuição do outro 443,9 e do 444,4 do ^{154}Eu . É contaminada pela linha de fundo de 295,2 keV
1371,6	1249,9 1005,2	É contaminada pela transição de 1004,8 keV do ^{154}Eu .
1233,8	1112,0 867,3	
1085,8	1085,8 964,0	Tem contribuição da transição de 1084,4 keV do ^{152}Sm Tem contribuição da transição de 963,3 keV do ^{152}Sm
1041,1	919,3	Tem contribuição da outra transição de 919,3 keV do ^{152}Sm
810,4	810,4 688,6 443,9	Tem contribuição do outro 443,9 e do 444,4 do ^{154}Eu .
366,4	244,6	
121,7	121,7	É contaminada pela transição de 123,1 keV do ^{154}Eu .

Tabela 5.3: Transições utilizadas no ajuste do decaimento β^+ do ^{152}Eu .

Novamente, as áreas experimentais das transições foram obtidas a partir da medição de baixa taxa de contagem e as áreas foram corrigidas levando em conta os efeitos secundários de detecção e outras interferências, ver as observações na Tabela 5.3. Além disso, a alimentação total beta foi igualada a 0,7208 desintegrações por decaimento [7].

Os parâmetros (razões de ramificação, alimentações betas e o número de decaimentos da fonte) ajustados foram: f_{121} , f_{366} , f_{810} , f_{1085} , f_{1233} , f_{1529} , f_{1579} , f_{1649} , κ_{564} , κ_{1212} , κ_{1408} , κ_{444} , κ_{295} , κ_{1005} , κ_{1112} , κ_{964} , κ_{810} , κ_{688} e $\Omega \cdot \Delta t$. Na Tabela 5.4 são mostrados os resultados obtidos para as alimentações betas.

Os resultados obtidos são compatíveis com os valores apresentados na literatura [7]. No entanto, neste caso, as correlações entre os parâmetros são bastante elevadas, principalmente com os valores obtidos para as correlações com a alimentação do nível de 121 keV e o número de desintegrações da fonte ($\Omega \cdot \Delta t$).

Par.	Valor	Matriz de Correlação								
		f_{121}	f_{366}	f_{810}	f_{1085}	f_{1233}	f_{1529}	f_{1579}	f_{1649}	$\Omega \cdot \Delta t$
f_{121}	0,016(7)	1	-0,33	-0,78	-0,87	-0,84	-0,87	-0,77	-0,64	0,90
f_{366}	0,0093(7)	-0,33	1	0,20	0,23	0,18	0,22	0,14	0,15	-0,34
f_{810}	0,01234(17)	-0,78	0,20	1	0,74	0,69	0,60	0,64	0,64	-0,86
f_{1085}	0,2145(23)	-0,87	0,23	0,74	1	0,74	0,58	0,69	0,53	-0,83
f_{1233}	0,1718(21)	-0,84	0,18	0,69	0,74	1	0,56	0,64	0,52	-0,78
f_{1529}	0,247(4)	-0,87	0,22	0,60	0,58	0,56	1	0,65	0,57	-0,70
f_{1579}	0,02106(26)	-0,77	0,14	0,64	0,69	0,64	0,65	1	0,58	-0,76
f_{1649}	0,00904(12)	-0,64	0,15	0,64	0,53	0,52	0,57	0,58	1	-0,68
$\Omega \cdot \Delta t$	$1,373(14) \cdot 10^{10}$	0,90	-0,34	-0,86	-0,83	-0,78	-0,70	-0,76	-0,68	1

Tabela 5.4: Alimentações beta e número de desintegrações ajustados para o decaimento decaimento β^+ do ^{152}Eu e a matriz de correlação obtida.

Os resultados para o número de desintegrações da amostra nos ajustes do decaimento β^+ e β^- não são compatíveis, existindo uma diferença entre os valores obtidos de $0,094(15) \cdot 10^{10}$ desintegrações. Uma das hipóteses para justificar esta diferença pode ser a relação existente entre a transição de 121 keV, o seu coeficiente de conversão e a sua eficiência, pois através desta transição são escoados aproximadamente 60% dos decaimentos do ^{152}Eu . Assim, qualquer pequena variação em um destes dois parâmetros é suficiente para alterar o balanço de intensidades do decaimento.

5.3 Intensidade γ

Depois de obtidos os parâmetros de decaimento, as intensidades foram determinadas através das relações de decaimento e as suas covariâncias foram determinadas por propagação de incertezas. Assim, a intensidade, I , de uma transição gama entre os níveis i e j pode ser escrita como:

$$I_{ij}(f_\beta's, \kappa's, \alpha's) = \left[f_i + \sum_{k>i} f_k \left(\kappa_{ki} + \sum_{l>k} f_l \kappa_{lk} \dots \right) \right] \cdot \frac{\kappa_{ij}}{1 + \alpha_{ij}} \quad (5.9)$$

Por exemplo, as intensidades para as transições de 411 e de 778 keV são determinadas por meio das expressões (5.10) e (5.11), a seguir.

$$I_{411} = \frac{[(f_{755} + f_{755}^*) + (f_{1434} + f_{1434}^*) \cdot \kappa_{678} + (f_{1123} + f_{1123}^*)(1 - \kappa_{778})]}{1 + \alpha_{411}} . \quad (5.10)$$

$$I_{778} = \frac{(f_{1123} + f_{1123}^*) \kappa_{778}}{1 + \alpha_{778}} . \quad (5.11)$$

Os resultados para as intensidades das transições mais intensas do ^{152}Gd são mostradas na Tabela 5.5. As intensidades obtidas são comparáveis com os valores obtidos na literatura [7], sendo ligeiramente mais precisos. As correlações são pequenas, apresentando valores entre 0 e 0,5, sendo a única exceção a correlação entre as intensidades das transições de 1089 e 411 keV.

Em algumas situações pode-se interpretar as correlações obtidas. Por exemplo, a correlação entre as intensidades das transições de 411 e 778 keV, cujas expressões estão apresentadas nas fórmulas (5.10) e (5.11), é justificada pelo termo f_7 , que contém a alimentação para o nível 1123 keV, que é o nível mais intensamente alimentado pelo decaimento β^- .

Energia (keV)	Intensidade	Matriz de Correlação				
		344	411	778	1089	1299
344	0,26689(13)	1	0,10	0,32	0,15	-0,07
411	0,02229(3)	0,10	1	0,31	0,72	-0,08
779	0,1303(8)	0,32	0,31	1	0,45	-0,20
1089	0,01712(3)	0,15	0,72	0,45	1	-0,12
1299	0,01612(8)	-0,07	-0,08	-0,20	-0,12	1

Tabela 5.5: Probabilidade de emissão gama para as transições mais intensas do ^{152}Gd . Na primeira coluna é mostrada a energia de referência da transição e, na segunda, a intensidade gama absoluta (por decaimento). O resto da tabela mostra as correlações entre as intensidades.

Para o ^{152}Sm , os resultados para as intensidades das transições mais intensas são apresentados na Tabela 5.6. Novamente, as intensidades obtidas são compatíveis com

os valores obtidos na literatura [7]. As correlações elevadas, com valores entre 0,5 e 0,8, refletem as correlações obtidas entre os parâmetros de decaimento do ^{152}Sm .

Energia (keV)	Intensidade	Matriz de correlação									
		121	244	444	444	867	964	1085	1112	1212	1408
121	0,2875(6)	1	-0,68	-0,70	-0,70	-0,69	-0,75	-1,00	-0,65	-0,62	-0,53
244	0,0773(9)	-0,68	1	0,76	0,76	0,62	0,69	0,68	0,62	0,59	0,52
444 ₅₋₂	0,00316(4)	-0,70	0,76	1	0,59	0,74	0,75	0,69	0,62	0,59	0,59
444 ₁₅₋₉	0,0263(3)	-0,70	0,76	0,59	1	0,73	0,74	0,69	0,62	0,59	0,58
867	0,0422(5)	-0,69	0,62	0,74	0,73	1	0,74	0,68	0,61	0,57	0,49
964	0,1448(16)	-0,75	0,69	0,75	0,74	0,74	1	0,74	0,66	0,62	0,53
1085	0,1004(12)	-1,00	0,68	0,69	0,69	0,68	0,74	1	0,64	0,61	0,53
1112	0,1339(17)	-0,65	0,62	0,62	0,62	0,61	0,66	0,64	1	0,55	0,49
1212	0,01432(20)	-0,62	0,59	0,59	0,59	0,57	0,62	0,61	0,55	1	0,51
1408	0,208(3)	-0,53	0,52	0,59	0,58	0,49	0,53	0,53	0,49	0,51	1

Tabela 5.6: Probabilidade de emissão gama para as transições mais intensas do ^{152}Sm . Na primeira coluna é mostrada a energia de referência da transição e, na segunda, a intensidade gama absoluta (por decaimento). O resto da tabela mostra as correlações entre as intensidades.

Capítulo 6

Discussão

Neste trabalho foram estudadas as duas técnicas de calibração precisa de eficiência de um detetor de HPGe. Em ambas é importante que os efeitos secundários de detecção sejam pequenos e suas eventuais correções não sejam muito significativas.

Para determinar a intensidade gama de uma fonte multigama padrão foi necessário modelar os vários efeitos secundários de detecção, além de estudar a estabilidade e geometria do sistema. Neste estudo foram realizados vários experimentos, os quais serviram para validar os modelos e quantificar os efeitos secundários de detecção. A partir de todos estes estudos foi possível determinar as condições experimentais necessárias para que estes efeitos fossem pouco significativos, não comprometendo o resultado final.

No que se refere ao padrão secundário, o estudo centrou-se no ^{152}Eu de uso freqüente nos laboratórios. Levando em consideração os resultados obtidos pode-se estabelecer algumas diretrizes para o desenvolvimento do método e a obtenção do padrão secundário em trabalhos futuros.

6.1 Método Experimental

Um dos fatores mais importantes para determinação da eficiência de detecção de fótons é a geometria de contagem. Por isso foram verificadas as dependências da eficiência com a distância entre a fonte e o detetor e a distância entre os eixos de simetria da fonte e do detetor. A reprodutibilidade e estabilidade do sistema

também foram verificadas nos testes. No estudo da distância entre os eixos de simetria verificou-se que variações na forma da fonte não devem influenciar no resultado final.

No estudo da distância fonte-detetor foi utilizado um modelo simples, com poucos parâmetros, que descreveu bem a situação experimental. Mesmo com uma precisão estatística baixa de alguns parâmetros, forneceu a precisão na geometria que seria necessária para se obter a incerteza de aproximadamente 0,1% nas eficiências.

O modelo desenvolvido para determinar a distância entre os eixos de simetria permitiu verificar que pequenas variações no diâmetro médio e na forma em que a fonte está distribuída não causa um erro na eficiência, nas condições escolhidas.

A estabilidade eletrônica do sistema foi acompanhada ao longo das séries de medidas. Neste procedimento foram realizadas medições de curta duração e controlada as características (posição, largura e altura) de vários picos no espectro. Com isto foi possível manter a precisão em energia.

O controle de empilhamento usado envolvia um sistema eletrônico de rejeição e correção de tempo de contagem com um ADC com relógio de tempo morto Gedeck-Hale. Utilizando-se um modelo [51] já existente levantou-se experimentalmente o comportamento do sistema em relação à taxa de contagem, verificando-se que o tempo morto do sistema foi super-corrigido. A partir desta verificação foram utilizadas taxas de contagem baixas, para que esta correção fosse desprezível.

Outro fator que induziu a utilização de taxas de contagens baixas foi o fato dos picos que possuem uma contribuição de empilhamento terem uma forma variável. O exemplo mais claro deste efeito é a atribuição de uma intensidade a transição de 1084 keV, muito superior ao observado neste trabalho, que possui uma forte contribuição do empilhamento das transições de 121 e 964 keV. Assim, mesmo dispondo de um modelo para a determinação da área de um pico de empilhamento, que difere dos modelos existentes (pois não faz correções canal a canal no espectro), foram evitadas taxas de contagens elevadas.

Nos experimentos realizados não há indicação que o efeito de soma de gamas com elétrons e seu bremsstrahlung tenha que ser levado em consideração quando se utilizam detectores tipo P com janela de Al. O modelo desenvolvido para determinar a intensidade levou em consideração a distribuição dos betas produzidos no decaimento, o espectro contínuo de bremsstrahlung e as características de todos os materiais entre a fonte e a região ativa do detetor. Os cálculos efetuados nas condições experimentais usadas indicam que este efeito é praticamente inexistente com as fontes descritas neste trabalho, exceto nos casos das fontes de ^{60}Co e de ^{152}Eu . Mesmo assim, nestes casos, a correção é desprezível nas condições experimentais utilizadas.

O mais significativo dos efeitos secundários na detecção de gamas produzidos por uma fonte policromática é a soma de dois gamas. Para descrever o efeito de soma foi utilizado um modelo analítico que envolve os parâmetros de decaimento [52], tem uma dependência com geometria bem definida e é independente de detalhes de construção do detetor. Como o decaimento do ^{152}Eu é bastante complexo, a aplicação do modelo não é automática, tendo sido necessário escrever as equações que efetivamente determinam as áreas observadas para as transições mais intensas. Foi necessário determinar as contribuições às áreas dos picos que não estavam previstos no modelo básico, tais como a soma de dois gamas que não formem a cascata correspondente à transição gama em estudo. Este modelo foi validado experimentalmente por meio das medições de espectroscopia simples e dos resultados obtidos para intensidade. Este modelo também exigiu a utilização da correlação angular e da calibração da eficiência total, para que as áreas previstas tivessem uma precisão semelhante às áreas experimentais.

A correlação angular foi obtida a partir do modelo desenvolvido por Fraunfelder [71], onde foram considerados os spins dos níveis e as multipolaridades das transições envolvidas na cascata. O efeito da correlação angular, para espectroscopia simples, introduz uma correção da mesma ordem de grandeza da incerteza das áreas dos picos. Assim, diferentemente do descrito na literatura, o efeito da correlação passa a ser importante quando a precisão relativa na eficiência de detecção é 0,1%.

O fator de atenuação no modelo de correlação angular tem importância diferente em cada tipo de medida. Nas medições de espectroscopia simples, com uma geometria afastada, o fator tem valor próximo de 1 e pouca influência no modelo. Já nas medições de espectroscopia γ - γ , em uma geometria fonte-detetor mais próxima, o fator é significativo, apresentando um valor próximo de 0,7.

A eficiência total do sistema foi obtida a partir do produto da razão pico para total pela eficiência de pico do sistema. Na calibração da razão total para pico foi calculada a razão da área do espectro pela área do pico. Geralmente esta calibração só envolve a utilização de fontes monocromáticas e, conseqüentemente, a utilização de poucas fontes. Neste trabalho, além de fontes monocromáticas, foram utilizadas fontes com duas transições gama, que foram consideradas na calibração por meio de uma ponderação dos efeitos produzidos pelos dois gamas, conforme o método desenvolvido para esta calibração para o Método dos Mínimos Quadrados.

6.2 Padrão γ

O decaimento do ^{152}Eu é muito complexo e, apesar dos muitos trabalhos na literatura, havia dúvidas sobre o esquema de decaimento, pois a soma das intensidades das transições duvidosas, que poderiam alimentar os estados fundamentais do Gd e Sm, era de 0,3% da intensidade total. Assim, o decaimento do ^{152}Eu foi extensivamente estudado por meio de medidas de espectroscopia γ - γ , sendo colocado 4 níveis novos no esquema do ^{152}Sm e atribuídas 36 transições ao decaimento do ^{152}Eu . Apesar da maior parte destas transições possuir uma intensidade pequena, elas são importantes no balanço de intensidade do esquema de decaimento. Basicamente o limite em intensidade das transições observadas foi reduzido para 10^{-5} fótons/decaimento. No global, devido as incertezas das intensidades das transições mais intensas, espera-se determinar a alimentação gama dos estados fundamentais do Sm e Gd com precisão melhor que 0,1%.

Na utilização de uma fonte com muitas transições a principal desvantagem está no fato das intensidades das transições estarem estatisticamente correlacionadas. Além disso, os efeitos de soma estão presentes, devido a eficiência total do sistema, mesmo quando a fonte possui uma atividade baixa.

As correlações estatísticas obtidas, diferentemente das correlações obtidas das intensidades apresentadas no TECDOC-619 [4], são devidos ao uso de uma calibração de eficiência a todos os gamas e aos fatores comuns envolvidos na normalização do esquema de decaimento, por meio das relações de soma entre as transições e dos vínculos das alimentações beta e razões de ramificação. As correlações nem sempre podem ser direta e facilmente explicadas por meio destes fatores.

As correlações estatísticas obtidas entre as intensidades não foram analisadas detalhadamente, pois, além da calibração de eficiência, houve uma limitação devido ao software escolhido para o desenvolvimento dos ajustes, que obrigou a separação, não necessária do ponto de vista do modelo, do ajuste em dois esquemas de níveis. O método, porém, é bastante robusto e, desde que o programa seja desenvolvido numa plataforma mais adequada, permite acrescentar outros efeitos de detecção não estudados neste trabalho, mas que podem ser importantes em outras situações, como soma com raio X em detectores para raios γ de baixa energia.

Na calibração de eficiência de pico tentou-se utilizar um conjunto de fontes monocromáticas cujos raios γ tivessem energias distribuídas por toda a região de interesse. As dificuldades relacionadas a uma geometria estável foram resolvidas com suportes adequados.

A maior dificuldade neste procedimento residiu, como ficou evidente neste trabalho,

na obtenção de um conjunto prático de fontes, com energias adequadas, atividades calibradas precisamente e com meias vidas longas. Para que fosse possível aplicar o modelo desenvolvido foi necessário realizar a calibração de eficiência usando algumas fontes com esquema de decaimento simples e duas fontes com esquema de decaimento complexo.

6.3 Perspectivas

Um dos fatores a ser aprimorado é o software de ajuste, que neste trabalho, foi desenvolvido em uma plataforma Mathcad, cujas limitações obrigaram quebrar o esquema de decaimento em duas partes, uma para o Sm e outra para o Gd. Atualmente, está sendo desenvolvido [107] um software em linguagem C++ que deve permitir o ajuste de todo o esquema simultaneamente. Nesta versão em desenvolvimento estão sendo incluídas rotinas onde as relações de soma sejam calculadas por meio de matrizes, deixando o trabalho de escrever estas relações literalmente em uns poucos casos. Também devem ser incluídas as relações de soma com os raio X. No futuro, pretende-se generalizar o software para utilização com outros núclídeos e disponibiliza-lo na internet.

Outro aspecto a ser investigado, cuidadosamente, relaciona-se aos coeficientes de conversão interna. Em alguns casos, a conversão interna é significativa, escoando uma grande fração dos decaimentos. Deste modo, é importante conhecer alguns coeficientes com razoável precisão. No entanto, a precisão para estes coeficientes é, na melhor das situações, aproximadamente 3% [78, 108–110] para o ^{152}Eu , independente de ter sido obtido experimentalmente ou calculado teoricamente. Em particular, para melhorar a qualidade dos dados de intensidade absoluta no ^{152}Eu , é importante determinar experimentalmente os coeficientes de conversão das transições de 121 e 344 keV, de preferência com uma precisão relativa melhor que 0,3%.

Para a calibração de eficiência e eficiência total já vem sendo utilizado um método misto, onde são usadas algumas poucas fontes monocromáticas e simulações de Monte Carlo que levam em consideração as características do arranjo experimental, geometria de aquisição e do detetor. Neste método alguns dos parâmetros do arranjo experimental são ajustados aos dados obtidos para as fontes monocromáticas. Em seguida é realizada uma extrapolação da curva de eficiência para toda a região de interesse. Os resultados já obtidos são promissores [95], mas ainda exige um estudo ainda mais detalhado para que a precisão obtida seja satisfatória.

Capítulo 7

Conclusão

Por meio de medições de coincidência γ - γ foi possível melhorar significativamente o conhecimento sobre o esquema de decaimento do ^{152}Eu . Muitas das inconsistências e dúvidas existentes na literatura [7] foram resolvidas. Foram colocados quatro níveis no esquema do ^{152}Sm , sendo um novo. Também foram observados 23 novas transições e outras 13 transições foram posicionadas no esquema de decaimento [111]. Destas 36 transições 25 foram atribuídas ao esquema de níveis do ^{152}Sm e 11 ao do ^{152}Gd . Além disto, as intensidades de algumas transições foram reavaliadas.

O resultado mais interessante das medições de espectroscopia γ - γ foi o posicionamento, e determinação da intensidade, da transição gama de 1084 keV no esquema de decaimento do ^{152}Eu . Pois, com o valor de intensidade atribuído a esta linha na literatura [7], muito superior ao observado neste trabalho, inviabilizava a utilização do ^{152}Eu como um padrão absoluto, preciso, para a calibração de eficiência.

Foram desenvolvidos modelos e elaborados experimentos que quantificassem os efeitos secundários de detecção. Dos efeitos estudados: empilhamento, soma gama-gama e soma com elétrons e seu bremsstrahlung, verificou-se que os efeitos secundários de detecção podem ser reduzidos sensivelmente com uma escolha adequada do arranjo experimental. Assim, na configuração utilizada, os efeitos secundários foram desprezíveis, sendo a soma de dois gamas o único efeito secundário a ser levado em consideração.

Também foi modelada a precisão devido ao posicionamento da fonte em relação ao detector. Foi determinado um arranjo que garantiu que a contribuição da incerteza no posicionamento fosse menor que 0,1% da eficiência, quando houvesse uma precisão na posição em torno de um décimo de mm.

As fórmulas analíticas usadas neste trabalho para descrever as áreas dos picos,

levando em consideração a correção do efeito de soma, foram suficientes para corrigir as áreas com precisão melhor que 0,1%. Além disso, elas também permitiram determinar diretamente os parâmetros necessários para correção do efeito de soma em medições com a fonte próxima ao detetor.

No desenvolvimento de um padrão de intensidade gama para a calibração de detectores, é possível determinar as razões de ramificação e as alimentações betas, ao invés das intensidades gama, pois elas formam um conjunto de dados mínimos que especificam completamente um esquema de decaimento [105]. Deste modo, os elementos necessários para a determinação correta das correlações entre intensidades de transições gama em medições de espectroscopia simples são, agora, conhecidos. No entanto a sistemática para obtê-los é bastante trabalhosa e não existe uma solução simples para o problema.

Apêndice A

Fontes padrão

Como mencionado nos Capítulos 1, 3 e 5, para facilitar a padronização de uma fonte de calibração secundária é necessário utilizar uma série de fontes de calibração primárias para determinar a resposta do detetor.

Este apêndice apresenta a lista das fontes primárias mais indicadas para esta tarefa. Muito embora a maioria das fontes relacionadas não tenha sido usada neste trabalho, elas foram estudadas visando trabalhos futuros.

A lista de fontes de calibração de interesse é extensa e de difícil obtenção, mas existe a possibilidade de adquiri-las de vários fornecedores. Como cada fabricante prepara, calibra e encapsula diferentemente as suas fontes, deve-se estudar as características de construção para que se possa determinar a probabilidade de emissão gama com precisão.

A.1 Relação das Fontes Primárias para Calibração de Eficiência

A relação de fontes primárias foi elaborada considerando apenas fontes monocromáticas ou que possuam um esquema de decaimento simples, de maneira a cobrir a faixa de energia entre 60 e 1800 keV. Também foi levado em consideração a facilidade de produção, calibração e manuseio da fonte, em particular a meia vida do isótopo.

Na Tabela A.1 são mostradas as energias e intensidades das principais transições gamas e na Tabela A.2 algumas características das fontes selecionadas, onde se observa que uma boa parte delas decai exclusivamente por captura eletrônica. Na curva de eficiência apresentada na Figura A.1 pode ser observada a faixa de energia coberta pelas fontes de calibração selecionadas.

Os Raios- γ das fontes selecionadas formam um conjunto bem distribuído em energia, com um número maior de transições próximo ao máximo da curva de eficiência.

Nuclídeo	Meia vida	Transição	
		Energia (keV)	Prob. Gama. (%)
⁴⁶ Sc	83,788(20) d	889,271(2)	99,9833(5)
		1120,537(3)	99,86
⁶⁰ Co	5,271(1) a	1173,228(3)	99,85(3)
		1332,492(4)	99,9826(6)
⁹⁴ Nb	20,0(24) · 10 ³ a	702,622(19)	97,9(20)
		871,091(18)	99,9(1)
¹³⁷ Cs	30,018(15) a	661,657(3)	84,99(20)
²⁰³ Hg	46,603(21) d	279,1952(10)	81,48(8)
⁵¹ Cr	27,703(3) d	320,0835(4)	9,87(5)
⁵⁷ Co	271,80(5) d	122,06065(12)	85,51(6)
		136,47356(29)	10,71(15)
⁵⁴ Mn	312,13(3) d	834,845(5)	99,9997(3)
⁶⁵ Zn	244,15(9) d	1115,539(2)	50,60(22)
⁸⁵ Sr	64,849(4) d	909,90(1)	0,00956(6)
¹⁰⁹ Cd	1,263(3) a	88,034(2)	3,65(6)
¹³⁹ Ce	137,641(20) d	165,857(3)	79,90(4)
		569,698(2)	97,76(3)
²⁰⁷ Bi	32,3(8) a	1063,656(3)	74,58(49)
		1770,228(9)	6,87(3)
²² Na	2,6027(10) a	1274,537(7)	99,940(14)
⁸⁸ Y	106,623(26) d	898,036(4)	99,90(23)
		1836,052(13)	99,32(3)
¹¹³ Sn	115,09(3) d	255,134(10)	2,11(8)
		391,698(3)	64,97(17)
⁵⁸ Co	70,83 (10) d	810,759(2)	99,45(1)
⁹⁵ Nb	34,991(6) d	765,803(6)	99,808(7)
¹⁴¹ Ce	32,50(1) d	145,4433(14)	48,29(20)

Tabela A.1: Energia e probabilidade de emissão gama das transições das fontes de decaimento simples selecionadas para a calibração do sistema [7, 29].

Nuclídeo	Forma de decaimento	Q keV	Principais Níveis			E_β keV
			Energia (keV)	$f(\%)$	Meia- vida	
^{46}Sc	β^-	2367	2010	100		357
^{60}Co	β^-	2824	2506	99,9	0,71 ps	318
			1332	0,12		1491
^{94}Nb	β^-	2045	1573	98		472
^{137}Cs	β^-	1175	662	94,4	2,55 min	514
^{203}Hg	β^-	492	279	100	278 ps	213
^{51}Cr	EC	752	320	9,9		
^{57}Co	EC	836	136	99,8		
			706	0,2		
^{54}Mn	EC	1377	835	100		
^{65}Zn	EC	1352	1116	50,6	0,28 ps	
^{85}Sr	EC	1065	514	96	1,0 ms	
^{109}Cd	EC	214	88	100	39,6 s	
^{139}Ce	EC	265	165	100	1,5 ns	
^{207}Bi	EC	2398	2340	7,0	0,8 s	
	EC		1633	84,0		
	EC		569	9,0		
^{22}Na	β^+	2842	1275	89,8	5,2 ps	545
	EC		1275	10,1		
^{88}Y	EC	3623	2734	94,4		765
	EC		1836	5,3		
	β^+		1836	0,2		
^{113}Sn	EC	1036	392	2,2	1,7 h	
	EC		645	97,8		
^{58}Co	EC	2307	1675	1,2		475
	β^+		811	15,0		
	EC		811	83,8		
^{95}Nb	β^-	926	766	100	4,4 ps	160
^{141}Ce	β^-	581	145	69,7	1,9 ns	435

Tabela A.2: Características das fontes de decaimento simples utilizadas na calibração do sistema [7, 29]. Para cada fonte são indicados os principais níveis do esquema de decaimento, com sua energia, sua fração de alimentação (f) e meia-vida. Também é indicada a energia máxima disponível para o beta (E_β).

Figura A.1: Curva de calibração de eficiência típica de um detector HPGe, onde os pontos indicam a posição, em energia, das transições das fontes de calibração selecionadas.

A.2 Construção

As fontes utilizadas neste trabalho provêm de dois fornecedores: o IPEN e a Amersham. As fontes produzidas pelo IPEN foram obtidas dentro de uma colaboração entre o Laboratório do Acelerador Linear do IFUSP e o Laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN, durante a realização deste trabalho. As fontes Amersham foram produzidas em 1981.

As fontes produzidas pelo IPEN são calibradas em um sistema $4\pi\beta\gamma$ [94] e posteriormente montadas em suportes circulares, ver Figura A.2, entre dois discos de polietileno, para dar rigidez mecânica à fonte. As fontes formam uma mancha com cerca de 5 mm de diâmetro sem forma bem definida, podendo não ser homogêneas e nem ter o centro bem determinado. A incerteza na atividade é muito pequena. Além disso, a influência da incerteza da meia vida na incerteza final é muito menor que as obtidas com as fontes Amersham, pois estas foram produzidas e calibradas recentemente para este trabalho.

Como as fontes produzidas pela Amersham possuem uma incerteza relativamente alta na atividade inicial, além de serem adquiridas há bastante tempo pelo LAL, não são indicadas para uma calibração precisa de eficiência. No entanto, elas foram importantes pois cobrem uma faixa de energia não contemplada pelas fontes que foram

efetivamente produzidas pelo IPEN para este trabalho. As fontes da Amersham são eletrodepositadas com 1 mm de diâmetro e são encapsuladas em um invólucro de poliestireno, ver Figura A.3.

Figura A.2: Dimensões de uma fonte produzida pelo IPEN. O diâmetro externo da arandela era de 30,0 mm. Para que fosse garantida a precisão na geometria, foram medidas a base da arandela que suporta a fonte. Assim, foram selecionadas as arandelas que possuíssem uma base com altura em torno de 1,00 mm e formassem um conjunto cuja dispersão fosse de 0,10 mm.

Figura A.3: Dimensões de uma fonte produzida pela Amersham. Para que as fontes Amersham fossem posicionadas na mesma geometria das fontes produzidas pelo Ipen foi construído um suporte metálico, com altura adequada, para ser acoplado as tampas do suporte.

As características, resumidas, dos invólucros das fontes utilizadas são mostradas na Tabela A.3. Com estas informações, é possível estimar a correção na taxa de contagem dos gamas emitidos devido à absorção no invólucro e às dimensões físicas da região onde o radioisótopo está depositado de fato.

Fornecedor	IPEN [63]	Amersham [64]
Invólucro	Polietileno	Poliestireno
Espessura (mm)	0,40	0,50

Tabela A.3: Características das fontes utilizadas.

Bibliografia

- [1] L. A. McNelles e J. L. Campbell, *Absolute Efficiency Calibration of Coaxial Ge(Li) Detectors for the Energy Range 60-1330 keV*, Nucl. Instr. and Meth., **109** (1973) 241
- [2] P. Felice, P. Angelini, A. Fazio e M. Capogni, *A national campaign for coincidence-summing correction in γ -ray spectrometry*, Appl. Radiat. and Isotop. **56** (2002) 117
- [3] S. Raman, C. Yonezawa, H. Matsue, H. Iimura e N. Shinohara *Efficiency calibration of a Ge detector in the 0.111.0 MeV region*, Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res. **A454** (2000) 389-402
- [4] IAEA - International Atomic Energy Agency, X-Ray and Gamma-Ray Standards for Detectors Calibration, Viena (1991) IAEA-TECDOC - 619
- [5] O. Helene, V. R. Vanin e R. M. Castro, *Characteristics of the Bootstrap Estimate of Discrepant Data Sets*, J. of Nuc. Sci. and Tech., **Supplement 2** (2002) 315
- [6] IAEA - International Atomic Energy Agency, X-Ray and Gamma-Ray Standards for Detectors Calibration and Applications, Viena (2004) IAEA-TECDOC, A ser publicado.
- [7] V. R. Vanin, R. M. Castro e E. Browne, *^{152}Eu Decay*, Decay Data Evaluation Project, http://www.bnm.fr/bnm-lnhb/DDEP_WG/Eu-152_tables.pdf e http://www.bnm.fr/bnm-lnhb/DDEP_WG/Eu-152_com.pdf, Último acesso em 23/09/2003
- [8] Kawaldeep, V. Kumar, K. S. Dhillon e K. Singh, *K-Capture Probabilities to the Excited States of ^{152}Sm in the Decay of ^{152}Eu* , J. Phys. Soc. Jpn. **62** (1993) 901
- [9] Y. Yan, H. Sun, D. Hu, J. Huo e Y. Liu, *On the Newly Proposed Levels in ^{152}Gd and ^{152}Sm* , Z. Phys. **A344** (1992) 25
- [10] N. M. Stewart, E. Eid, M. S. S. El-Daghmah e J. K. Jabber, *Levels in ^{152}Gd and ^{152}Sm Populated by the Decay of ^{152}Eu* , Z. Phys., **A335** (1990) 13
- [11] W. H. Trzaska, *Recommended Data on Selected Gamma-Ray and Conversion-Electron Calibration Sources*, Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res. **A297** (1990) 223

- [12] R. A. Meyer, *Multigamma-Ray Calibration Standards*, Fizika(Zagreb) **22** (1990) 153
- [13] D. Mehta, M. L. Garg, J. Singh, N. Singh, T. S. Cheema e P. N. Trehan, *Precision Measurements of X- and Gamma-Ray Intensities in ^{192}Ir , ^{160}Tb , ^{169}Yb and ^{152}Eu Decays*, Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res. **A245** (1986) 447
- [14] Y. Iwata, M. Yasuhara, K. Maeda e Y. Yoshizawa, *Precision Measurements of Gamma-Ray Intensities VI: ^{120}Sb , ^{124}Sb and ^{125}Sb* , Nucl. Instr. Meth., **219** (1984) 123
- [15] K. Debertin e W. Pessara, *Calibration of High-Purity Germanium Detectors in the Energy Range from 25 to 122 keV*, Int. J. Appl. Radiat. and Isotop., **34** (1983) 515
- [16] H. A. Ismail, H. Hanafi, M. Morsy, A. Nada e H. Abou-Leila, *The Radioactive Decay of ^{152}Eu* , Acta Phys. Acad. Sci. Hung., **50** (1981) 391
- [17] A. K. Sharma, R. Kaur, H. R. Verma e P. N. Trehan, *Precision Energy and Intensity Measurements in ^{152}Sm , ^{152}Gd and ^{154}Gd* , J. Phys. Soc. Jpn., **48** (1980) 1407
- [18] R. J. Gehrke, R. G. Helmer e R. C. Greenwood, *Precise Relative γ -Ray Intensities for Calibration of Ge Semiconductor Detectors*, Nucl. Instr. Meth., **147** (1977) 405
- [19] C. C. Lin, *γ -Ray Intensities in the Decay of ^{140}Ba - ^{140}La and ^{152}Eu : Use of 13 γ ^{152}Eu as a Secondary Calibration Standard*, J. Inorg. Nucl. Chem. **38** (1976) 1409
- [20] K. R. Baker, J. H. Hamilton e A. V. Ramayya, *Detailed Ge(Li)-Ge(Li) Coincidence Studies of Levels in ^{152}Sm and ^{152}Gd* , Z. Phys. **256** (1972) 387
- [21] G. Ardisson, F. Armanet e A. A. Foudi, *Niveaux de ^{152}Sm Formes dans la Dcroissance de l'Isomre $J_p=0^-$ de ^{152}Eu* , C. R. Acad. Sci. Ser. B, **274** (1972) 1436
- [22] B. Dasmahapatra, *Low Energy Gamma Rays in the Decay of ^{152}Eu (12.4 y)*, Radiochem. Radioanal. Lett., **12** (1972) 185
- [23] J. Barrette, M. Barrette, A. Boutard, G. Lamoureux, S. Monaro e S. Markiza, *Transitional Nuclei. II. Properties of the Levels in ^{152}Sm and ^{152}Gd from the Decay of the $^{152}\text{Eu}^{m,g}$ Isomeric Pair*, Can. J. Phys., **49** (1971) 2462
- [24] L. L. Riedinger, N. R. Johnson e J. H. Hamilton, *Studies of the Radioactive Decays of ^{152}Eu and ^{154}Eu* , Phys. Rev. C **2** (1970) 2358
- [25] A. Norea e E. Elias, *Low Energy Photons from ^{152g}Eu for Ge(Li) Calibration*, Nucl. Instr. Meth., **86** (1970) 269

- [26] L. Varnell, J. D. Bowman e J. Trischuk, *Beta and Gamma Vibrational bands in ^{152}Sm and ^{154}Gd* , Nucl. Phys., **A127** (1969) 270
- [27] A. Aquili, R. Cesareo e M. Giannini, *Gamma-Ray Transitions and Gamma-Gamma Angular Correlations in ^{152}Sm* , Nuovo Cimento, **62B** (1969) 20
- [28] J. S. Larsen, O. Skilbreid e L. Vistisen, *High-Energy Spectra of 12-y ^{152}Eu* , Nucl. Phys., **A100** (1967) 248
- [29] A. A. Cohen, *Nuclear Data Sheets for $A = 152$* , Nuclear Data Sheets, **79** (1996) 1
- [30] R. M. Castro, V. R. Vanin, O. Helene, P. R. Pascholati, N. L. Maidana e Edgardo Browne, *Decaimento do ^{152}Eu* , Resumos da XXIV Reunião de Trabalho sobre Física Nuclear no Brasil, Águas de Lindóia, SP (2001)
- [31] D. Bärge Filho, R. C. Neves e V. R. Vanin et al., *Controlador do Sistema Multidetector para Espectroscopia Gama por Atividade Residual*, Resumos da XXII Reunião de Trabalho sobre Física Nuclear no Brasil, São Lourenço, MG (1999).
- [32] Ortec, *Model 572 Spectroscopy Amplifier and Pile-Up Rejector Operating and Service Manual*
- [33] Ortec, *Model 673 Spectroscopy Amplifier and Gated Integrator Operating and Service Manual*
- [34] Ortec, *Model AD413A CAMAC Quad 8k ADC Operating and Service Manual*
- [35] Ortec, *Model 454 Timing Filter Amplifier Operating and Service Manual*
- [36] Ortec, *Model 473A Constant-Fraction Discriminator Operating and Service Manual*
- [37] LeCroy, *Model 2228A Octal Time-to-Digital Converter*
- [38] V. R. Vanin e D. Bärge Filho, *Programa Multi*, Comunicação Privada, 2001
- [39] V. R. Vanin, *Programa Corrigeganho*, Comunicação Privada, 2001
- [40] Z. O. Guimarães Filho, *Programa Simetriza*, Comunicação Privada, 2001
- [41] Z. O. Guimarães Filho, *Medidas Precisas de Energias de Transições Gama em Coincidência: Espectroscopia das Séries do ^{232}U e ^{233}U* , Dissertação de Mestrado, IFUSP 1998
- [42] V. R. Vanin e P. Gouffon, *Tópicos Avançados em Tratamento Estatístico de Dados em Física Experimental*, IFUSP-LAL (1996)

- [43] Z. O. Guimarães Filho, *Energias de Transições Gama em Coincidência no Sistema Multidetector*, Comunicação Privada, 2002
- [44] D. Vénos e P. Tlustý, *Efficiency corrections for the γ - γ coincidence counting rates measured by the multi-detector correlation system*, Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res., **A336** (1993) 567
- [45] M. Asai, K. Kawade, H. Yamamoto, A. Osa, M. Koizumi e T. Sekine, *A five-HPGe detector system for γ - γ angular correlation measurements for mass-separated short-lived nuclei*, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res., **A398** (1997) 265
- [46] M. Asai, K. Kawade, M. Shibata, Y. Kojima, A. Osa, M. Koizumi e T. Sekine, *Normalization of γ - γ Angular Correlation Coincidence counts Using Characteristic X-Rays*, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res., **A463** (2000) 205
- [47] R. B. Firestone, V. S. Shirley, C. M. Baglin, S. Y. Frank Chu e J. Zypkin, *Table of Isotopes*, 8th Edition, J. Wiley & Sons, (1996)
- [48] S. Ashrafi, A. Likar e T. Vidmar *Precise modeling of a coaxial HPGe detector*, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res., **A438** (1999) 421
- [49] Karamanis D, Lacoste V, Andriamonje S, et al. *Experimental and simulated efficiency of a HPGe detector with point-like and extended sources*, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res., **A487** (2002) 477
- [50] G. F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement* John Wiley & Sons, 2^a Ed., 1989
- [51] G. Gilmore e J. D. Hemingway, *Practical Gamma-Ray Spectrometry*, John Wiley & Sons, (1995)
- [52] D. S. Andreev, K. I. Erokhina, V. S. Zvonov e I. K. Lemberg, *Consideration of Cascade Transitions in Determining the Absolute Yield of Gamma-rays*, Instr. Expt. Techn. **15** (1972) 1358
- [53] K. Debertin e U. Schotzig, *Coincidence Summing Corrections in Ge(Li)-Spectrometry at Low Source-to- Detector Distances*, Nucl. Instr. Meth., **158** (1979) 471
- [54] F. J. Schima e D. D. Hoppes, *Tables for Cascade-Summing Corrections in Gamma-Ray Spectrometry* Int. J. Appl. Radiat. and Isotop., **34** (1983) 1109
- [55] T. M. Semkow, G. Mehmood, P. Parekh e M. Virgil, *Coincidence Summing in Gamma-Ray Spectroscopy*, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res., **A290** (1990) 437

- [56] B. Quintana e F. Fernandez, *An Empirical Method to Determine Coincidence-Summing Corrections in Gamma Spectrometry*, Appl. Radiat. Isot., **Vol 46** No 9 (1995) 961
- [57] I. R. Lerate, M. Barrera, R. A. Ligerio e M. C. Ruiz, *A New Summing-Correction Method for Gamma-Efficiency Calibration with multi-gamma-ray radionuclides*, Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res., **A395** (1997) 202
- [58] P. Felice, P. Angelini, A. Fazio e R. Biagini, *Fast Procedures for Coincidence-Summing Correction in γ -Ray Spectrometry*, Appl. Radiat. Isot., **52** (2000) 745
- [59] F. Piton, M. C. Lépy, M. M. Bé e J. Plagnard, *Efficiency Transfer and Coincidence Summing Corrections for γ -Ray Spectrometry*, Appl. Radiat. Isot., **52** (2000) 791
- [60] M. Garcia-Talavera, J. P. Laedermann, M. Décombaz, M. J. Daza e B. Quintana, *Coincidence Summing Corrections for the Natural Decay series in γ -Ray Spectrometry*, Appl. Radiat. Isot., **54** (2001) 769
- [61] M. S. Dias, N. Takeda e M. F. Koskinas, *Cascade summing corrections for HPGe spectrometers by the Monte Carlo method*, Appl. Radiat. Isot., **56** (2002) 105
- [62] 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, **4** (1972) 1
- [63] M. F. Koskinas, *Características de fontes - Comunicação Privada*, IPEN, (1997)
- [64] Amersham, *Gamma Reference Source Set, Data Sheet 11188*, (1981)
- [65] Ortec, *Quality assurance data Sheet, detector Model No GEM-30185-P, Serial No 34-TP30930A*
- [66] E. Konopinski, *The Theory of Beta Radioactivity*, Oxford, 1966
- [67] T. Tabata, R. Ito e S. Okabe, *An Empirical Equation for the Backscattering Coefficient of Electrons*, Nucl. Inst. and Meth., **94** (1971) 509
- [68] Y. Zhou, Z. An, Q. Tang e C. Tang, *Reflection of Electrons from Material Surfaces*, Radiation Physics and Chemistry, **57** (2000) 731
- [69] S. M. Seltzer e M. J. Berger, *Bremsstrahlung Spectra From Electrons Interactions with Screened Atomic Nuclei and Orbital electrons*, Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res., **B12** (1985) 95
- [70] P. G. Bizzeti, A. M. Bizzeti-Sona, M. Bini, S. Lunardi, D. Bazzacco, G. de Angelis, E. Farnea, R. Menegazzo, D. R. Napoli, C. M. Petrache et al., *Sum-up and pile-up contribution to cross-over peaks in coincidence γ spectroscopy*, Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res., **A481** (2002) 262

- [71] H. Frauenfelder e R. M. Steffen, *Alpha-,Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy*, K. Siegbahn (editor), North Holland Publishing Co., Amsterdam, **CAP XIX** (1965)
- [72] Miguel Roteta e Eduardo García-Toraño, *An Evaluation of the Influence of γ - γ Angular Correlation on the Coincidence-Summing Corrections in Gamma-Ray Spectrometry*, Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res., **A369** (1996) 665
- [73] H. W. Taylor, B. Singh, F. S. Prato e R. McPherson, *A Tabulation of Gamma-Gamma Directional-Correlation Coefficients*, Nucl. Data Tables, **A9** (1971) 1
- [74] E. Karlsson, *Tables of M. Ferentz and N. Rosenzweig - em Alpha-,Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy*, K. Siegbahn (editor), North Holland Publishing Co., Amsterdam, **Apendix 8**(1965)
- [75] K. S. Krane e R. M. Steffen, *Determination of the E2/M1 Multipole Mixing Ratios of the Gamma Transitions in ^{110}Cd* , Phys. Rev. C2, **C2** (1970) 724
- [76] I V. Anicin, R. B. Vukanovic e A. H. Kukoc, *The New Feature of 1-3 Directional Correlations with Mixed Unobserved Transitions*, Nucl. Instr. Meth., **103** (1972) 395
- [77] J. Barrette, G. Lamoureux e S. Monaro, *Geometrical Correction Factors for Angular Correlation Measurements With Ge(Li) Detectors*, Nucl. Instr. Meth., **93** (1971) 1
- [78] M. J. Martin, *Guidelines for Evaluators*, Oak Ridge National Laboratoy, (1988)
- [79] K. C. Chung, *Introdução à Física Nuclear*, ed. UERJ, 2001
- [80] C. W. Reich e R. G. Helmer, *Nuclear Data Sheets for $A = 154$* , Nuclear Data Sheets, **85** (1998) 171
- [81] V. P. Chechev e N. K. Kusmenko *^{154}Eu Decay*, Decay Data Evaluation Project, http://www.bnm.fr/bnm-lnhb/DDEP-WG/Eu-154_tables.pdf, Último acesso em 23/09/2003
- [82] D. Bärq Filho, *Aquisição de Dados em Espectroscopia Gama Nuclear*, Dissertação de Mestrado, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, (2000)
- [83] Ortec, *Model AD114 CAMAC 16k ADC Operating and Service Manual*
- [84] Ortec, *Model HM413 CAMAC FERAbus Histogramming Memory Operating and Service Manual*
- [85] D. Bärq Filho, R. C. Neves, V. R. Vanin, *ISA-to-CAMAC Interface*, Proceedings of the XX Brazilian Workshop, edited by S. R. Souza et al., World Science Pub. Co, Singapore, (1998) 424.

- [86] C. O. Guimarães, *Programa Converte*, Comunicação Privada, 2001
- [87] Z. O. Guimarães, *Programa Somador*, Comunicação Privada, 1999
- [88] P. Gouffon, *Manual do Programa IDEFIX*, IFUSP-LAL (1983)
- [89] Z. O. Guimarães, *Programa Idefix from Windows*, Comunicação Privada, 1999
- [90] N Sasamoto, K. Koyama e S. I. Tanaka, *Analysis Method of Gamma-Ray Pulse-Height Distributions Obtained with a Ge(Li) Detector*, Nucl. Inst. and Meth., **125** (1975) 507
- [91] M. Blaauw, V. O. Fernandez, P. Espen, G. Bernasconi, R. C. Noy, H. M. Dung e N. I. Molla, *The 1995 IAA Intercoparison of γ -Ray Spectrum Analysis Software* Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res., **A387** (1997) 416
- [92] S. P. Nielsen e S. E. Pálsson, *An Intercomparison of Software for Processing Ge γ -ray Spectra* Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res., **A416** (1998) 415
- [93] R. G. Helmer e M. A. Lee, *Analytical Functions for fitting Peaks From Ge Semiconductor Detectors*, NIM, **178** (1980) 499
- [94] M. F. Koskinas, *Desenvolvimento de um Sistema de Coincidência para a Medida Absoluta de Atividade de Radionuclídeos Empregando Detetores de Barreira de Superfície*, Tese de Doutorado, IPEN, 1988.
- [95] J. C. Hardy, V. E. Iacob, M. Sanchez-Vega, R. T. Effinger, P. Lipnik, V. E. Mayes, D. K. Willis e R. G. Helmer, *Precise efficiency calibration of an HPGe detector: source measurements and Monte Carlo calculations with sub-percent precision*, Applied Radiation and Isotopes, **56** (2002) 65
- [96] R. G. Helmer, J. C. Hardy, V. E. Iacob, M. Sanchez-Vega, R. G. Neilson e J. Nelson, *The use of Monte Carlo calculations in the determination of a Ge detector efficiency curve*, Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res., **A511** (2003) 360
- [97] G. L. Molnár, Zs. Révay e T. Belgya, *Wide Energy Range Efficiency Calibration Method for Ge Detectors*, Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res., **A489** (2002) 140
- [98] K. Debertin, *International Intercomparison of Gamma-Ray Emission-Rate Measurements by Means of Germanium Spectrometers and Eu-152 Sources*, Nucl. Inst. and Meth., **158** (1979) 479
- [99] Z. Kis, B. Fazekas, J. Östör, Zs. Révay, T. Belgya, G. L. Molnár e L. Koltay, *Comparison of Efficiency Functions for Ge Gamma-ray Detectors in a Wide Energy Range*, Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res., **A418** (1998) 374

-
- [100] L. Venturini e V. R. Vanin, *HPGe Detector Efficiency Calibration for Extended Sources in the 50-1400 keV Energy Range*, Appl. Radiat. and Isotop. **44** (1993) 999
- [101] D. Bãrg Filho, *Programa ASIRAM*, Comunicação Privada, 1997
- [102] A. Cesana e M. Terrani, *An empirical method for peak-to-total ratio computation of a gamma-ray detector*, Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res., **A281** (1989) 172
- [103] M. Korun and R. Martincic, *Measurements of the total-to-peak ratio of a semiconductor gamma-ray detector*, Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res., **A385** (1997) 511
- [104] R. Ejnisman e P. R. Pascholati, *Gamma-ray Background Survey*, Rev. Bras. Fís. Aplic. Instr. **9** (1994) 139
- [105] R. M. Castro, V. R. Vanin, O. Helene, P. R. Pascholati, N. L. Maidana, M. S. Dias e M. F. Koskinas, *The interplay between gamma-ray emission probabilities statistical correlations and efficiency calibration*, Appl. Radiat. and Isotop. **2004**, Aceito para publicação.
- [106] R. M. Castro, V. R. Vanin, O. Helene, P. R. Pascholati, N. L. Maidana, M. F. Koskinas e M. S. Dias, *The Correlations Between the Emission Probabilities of the More Intense Gamma Rays in ^{152}Gd and ^{152}Sm following ^{152}Eu Decay* Journal of Nuc. Sci. and Tech., **Supplement 2** (2002) 485
- [107] V. R. Vanin, *Programa Intensidade*, Comunicação Privada, 2003
- [108] J. Deslauriers e S. K. Mark, *Internal Conversion Electron Measurements Following the Decay of ^{152}Eu* , NIM **159** (1979) 243
- [109] G. G. Colvin e K. Schreckenbach, *Precise Conversion Electron Intensities of ^{152}Eu Decay for Detector Calibration Purposes*, NIM Phys. Res. **228** (1985) 365
- [110] J. Goswamy, B. Chand, D. Mehta, N. Singh e P. N. Trehan, *Precision Measurements of Conversion Electrons in ^{125}Sb , ^{152}Eu and ^{160}Tb Decays*, Appl. Radiat. Isto. **42** (1991) 1025
- [111] R. M. Castro, V. R. Vanin, P. R. Pascholati, N. L. Maidana, M. S. Dias e M. F. Koskinas, *Developing ^{152}Eu into a Standard for Detector Efficiency Calibration*, Appl. Radiat. and Isotop. **2004**, Aceito para publicação.