



**AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO**

**DESENVOLVIMENTO DE UM ESPECTRÔMETRO DE CORRELAÇÃO ANGULAR GAMA-GAMA PERTURBADA COM SEIS DETECTORES DE BaF<sub>2</sub> E ESTUDO DE INTERAÇÕES HIPERFINAS EM COMPOSTO INTERMETÁLICO LaMnSi<sub>2</sub>**

**CLÁUDIO DOMIENIKAN**

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

**Orientador:  
Prof. Dr. Rajendra Narain Saxena**

**São Paulo  
2016**

At the bottom of the page, there are three thick, horizontal purple bars that span the width of the page, mirroring the design at the top.

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

**DESENVOLVIMENTO DE UM ESPECTRÔMETRO DE CORRELAÇÃO ANGULAR GAMA-  
GAMA PERTURBADA COM SEIS DETECTORES DE BaF<sub>2</sub> E ESTUDO DE INTERAÇÕES  
HIPERFINAS EM COMPOSTO INTERMETÁLICO LaMnSi<sub>2</sub>**

**CLÁUDIO DOMIENIKAN**

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

**Orientador:  
Prof. Dr. Rajendra Narain Saxena**

**Versão Original**

**São Paulo  
2016**

À minha esposa Ana e aos  
meus filhos Ariane e Tales

## **Agradecimentos**

A todos que direta ou indiretamente participaram da realização deste trabalho. Em especial agradeço:

Ao Dr. Rajendra Narain Saxena, pelos ensinamentos e pela extrema dedicação e paciência na orientação deste trabalho.

Ao Dr. Artur Wilson Carbonari, por suas sugestões, explicações e pelo permanente auxílio dado em laboratório.

Ao Dr. André Luis Lapolli pela importante participação no desenvolvimento dos programas de aquisição e comunicação de dados.

Ao Dr. Mestnik Filho pelas valiosas informações e pelo empenho na análise dos resultados experimentais.

A Dra. Brianna Bosch dos Santos Corrêa pelo inestimável auxílio na confecção das amostras e na análise dos resultados.

Ao Dr. Guilherme Soares Zahn e ao Dr. Frederico Antonio Genezini pela ajuda nos detalhes teóricos e nas críticas sempre construtivas.

Ao Dr. Franco Brancaccio pelo auxílio na correção do trabalho e pelas discussões sobre os circuitos eletrônicos.

Ao Me. Roberto Schoueri pela participação no projeto estrutural do espectrômetro de seis detectores.

Ao Me. Fábio de Toledo pela amizade e parceria técnica.

Ao Eng. Sun Kuang Chun pela imensa contribuição na minha formação acadêmica.

Aos meus amigos da extinta Divisão de Eletrônica do IPEN.

Aos companheiros do Laboratório de Interações Hiperfinas pela colaboração, incentivo e solidariedade.

Ao IPEN pelo material técnico e pela oportunidade de poder realizar este trabalho.

A FAPESP pelo apoio financeiro.

Obrigado  
Cláudio

**DESENVOLVIMENTO DE UM ESPECTRÔMETRO DE CORRELAÇÃO  
ANGULAR GAMA-GAMA PERTURBADA COM SEIS DETECTORES DE BaF<sub>2</sub> E  
ESTUDO DE INTERAÇÕES HIPERFINAS EM COMPOSTO INTERMETÁLICO  
LaMnSi<sub>2</sub>**

*Cláudio Domienikan*

**RESUMO**

Neste trabalho foi desenvolvido um Espectrômetro de Correlação Angular Gama-Gama Perturbada Diferencial em Tempo (CAP) constituído por seis detectores cintiladores de BaF<sub>2</sub>, para realização de medidas de interações hiperfinas (campo hiperfino magnético e gradiente de campo elétrico) em diversos materiais e propiciar estudos na área da física da matéria condensada.

O espectrômetro desenvolvido possui um sistema de aquisição não convencional em comparação aos demais equipamentos destinados a medidas de CAP. Ao invés do tradicional Analisador Multicanal (MCA), este espectrômetro utiliza um sistema de aquisição de dados constituído, basicamente, por um Conversor Analógico Digital (ADC) rápido, uma placa digital (I/O) convencional e um roteador construído no laboratório de Interações Hiperfinas (LIH) do IPEN. Este versátil e eficiente sistema, controlado por um “software” também criado no LIH em LabVIEW, permite a geração simultânea de 30 espectros de coincidências  $\gamma$ - $\gamma$  atrasadas, número superior em comparação aos 12 espectros do antigo espectrômetro de quatro detectores.

Além de medidas de linearidade, resolução em tempo e tempo morto, o funcionamento e o desempenho do espectrômetro foram comprovados através de medidas de CAP utilizando os núcleos de prova  $^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$  e  $^{181}\text{Hf} \rightarrow ^{181}\text{Ta}$ , cujos resultados são bem conhecidos da literatura. Foram feitas medidas de interação quadrupolar do  $^{181}\text{Ta}$  em háfnio metálico e do  $^{111}\text{Cd}$  em cádmio metálico, e de campo hiperfino magnético do  $^{111}\text{Cd}$  e do  $^{181}\text{Ta}$  em níquel. Os resultados destas medidas se mostraram em concordância com a literatura.

Adicionalmente foram realizadas medidas inéditas de interações hiperfinas magnéticas no composto intermetálico  $\text{LaMnSi}_2$  utilizando os núcleos de prova  $^{111}\text{Cd}$  e  $^{140}\text{Ce}$ . As medidas foram realizadas na faixa de temperatura de 10 K a 400K. No caso das medidas utilizando a sonda  $^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$ , os resultados mostram uma variação do campo magnético com a temperatura que segue a função de Brillouin. Já no caso das medidas com o núcleo de prova  $^{140}\text{La} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$ , o resultado apresentou um comportamento anômalo do campo hiperfino em função de temperatura. Os resultados evidenciam uma forte hibridização da banda 4f do Ce com a banda 3d do Mn, fato verificado e estudado em trabalhos anteriores com compostos semelhantes.

**DEVELOPMENT OF A PERTURBED GAMA-GAMA ANGULAR  
CORRELATION SPECTROMETER WITH SIX BaF<sub>2</sub> DETECTORS AND STUDY OF  
HIPERFINE INTERACTION IN THE INTERMETALLIC COMPOUND LaMnSi<sub>2</sub>**

*Cláudio Domienikan*

**ABSTRACT**

In this work a Perturbed gamma-gama Angular Correlation (PAC) spectrometer was constructed consisting of six BaF<sub>2</sub> scintillator detectors to perform measurements of hyperfine interactions (magnetic hyperfine field and electric field gradient) in different materials to study condensed matter physics.

The spectrometer developed has an unconventional acquisition system compared to other equipment for PAC measurements. Instead of a traditional multichannel analyzer (MCA), the spectrometer utilizes a data acquisition system consisting of basically a fast analog to digital converter (ADC), a conventional digital card (I/O) and a router constructed in the hyperfine interactions laboratory (LIH) of IPEN. This versatile and efficient system, controlled by software, also developed in the LIH using LabVIEW, allows simultaneous generation of 30 delayed  $\gamma$ - $\gamma$  coincidence spectra compared to 12 spectra in the old 4 detector spectrometer in our laboratory. In addition to the tests of system linearity, time resolution and dead time, the operational performance of this spectrometer was demonstrated by PAC measurements using  $^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$  and  $^{181}\text{Hf} \rightarrow ^{181}\text{Ta}$  nuclear probes, for which the results are well known from the literature. The quadrupole interaction of  $^{181}\text{Ta}$  in metallic hafnium, and  $^{111}\text{Cd}$  in metallic cadmium, and magnetic hyperfine field of  $^{111}\text{Cd}$  in nickel, were measured and the results are in agreement with the literature.

Additionally the measurements were carried out, with the new spectrometer, to study the hyperfine field in the intermetallic compound LaMnSi<sub>2</sub> using  $^{111}\text{Cd}$  and  $^{140}\text{Ce}$  nuclear probes. The measurements were carried out in the temperature range from 10 K to 400 K. While the temperature dependence of hyperfine field measured with  $^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$  probe, follows the Brillouin function the behaviour of the hyperfine field measured with  $^{140}\text{La} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$  is anomalous. This behavior has been explained in terms of a strong

hybridization of 4f band of Ce with the 3d band of Mn, a fact verified in previous studies with similar compounds.



## Sumário

<b>1 INTRODUÇÃO.....</b>	<b>1</b>
<b>2 ESPECTROSCOPIA DE CORRELAÇÃO ANGULAR GAMA-GAMA PERTURBADA.....</b>	<b>4</b>
2.1 Correlação Angular Direcional.....	4
2.2 Correlação Angular Gama-Gama Perturbada.....	6
2.3 Interação Quadrupolar.....	8
2.4 Interação Magnética.....	9
2.5 Núcleos de Prova.....	11
2.5.1 $^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$ .....	12
2.5.2 $^{181}\text{Hf} \rightarrow ^{181}\text{Ta}$ .....	13
2.5.3 $^{140}\text{La} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$ .....	14
2.6 Características Gerais dos Materiais Hospedeiros.....	15
<b>3 DESENVOLVIMENTO DO ESPECTRÔMETRO DE CAP DE SEIS DETECTORES.....</b>	<b>17</b>
3.1 Introdução.....	17
3.2 Estruturas dos Espectrômetros de CAP.....	17
3.2.1 Configuração Lento-Rápido.....	17
3.2.2 Configuração Rápido-Lento.....	19
3.2.3 Configuração Rápido-Rápido.....	20
3.2.4 Configuração Digital.....	21
3.3 Espectrômetro de CAP de Quatro Detectores.....	22
3.4 Desenvolvimento do Espectrômetro de CAP de Seis Detectores.....	25
3.4.1 Introdução.....	25
3.4.2 Detectores .....	25
3.4.3 Descrição Geral do Espectrômetro de Seis Detectores.....	26

3.4.4	Sistema de Aquisição.....	31
3.4.5	Roteador.....	34
3.4.6	Programa de Aquisição.....	39
3.4.7	Outras Unidades Desenvolvidas para o Espectrômetro.....	41
3.4.7.1	Sistema de Controle de Temperatura para Mini-Forno .....	41
3.4.7.2	Multiplexador Analógico.....	43
3.4.7.3	Módulos de Atraso Digital.....	44
3.4.7.4	Circuito de Posicionamento dos Detectores.....	45
3.4.7.5	Fontes de Alimentação para os CFDs.....	46
<b>4</b>	<b>METODOLOGIA EXPERIMENTAL.....</b>	<b>48</b>
4.1	Calibração em Tempo.....	48
4.2	Não Linearidade em Tempo.....	50
4.3	Resolução em Tempo.....	51
4.4	Determinação do Tempo Morto do Analisador Multicanal.....	52
4.5	Medida de Interações Hiperfinas em $^{181}\text{Ta}(\text{Hf})$ , $^{111}\text{Cd}(\text{Cd})$ , e $^{111}\text{Cd}(\text{Ni})$ .....	53
4.6	Preparo das Amostras.....	55
4.6.1	Amostras de $^{181}\text{Ta}(\text{Hf})$ , $^{111}\text{Cd}(\text{Cd})$ , $^{181}\text{Ta}(\text{Ni})$ e $^{111}\text{Cd}(\text{Ni})$ .....	55
4.6.2	Amostras de $^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$ e $^{140}\text{La} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$ em $\text{LaMnSi}_2$ .....	55
4.7	Tratamento de Dados Experimentais Obtidos nas Medidas de CAP.....	57
<b>5</b>	<b>RESULTADOS EXPERIMENTAIS E DISCUSSÕES.....</b>	<b>60</b>
5.1	Calibração em Tempo do Espectrômetro de CAP.....	60
5.2	Linearidade em Tempo.....	60
5.3	Tempo Morto.....	61
5.4	Resolução em Tempo.....	61
5.5	Medidas de CAP para Teste do Espectrômetro.....	63
5.5.1	Interação Quadrupolar do $^{181}\text{Ta}$ em Háfnio.....	63
5.5.2	Interação Quadrupolar do $^{111}\text{Cd}$ em Cádmio.....	64
5.5.3	Interação Magnética do $^{181}\text{Ta}$ em Níquel.....	66
5.5.4	Interação Magnética do $^{111}\text{Cd}$ em Níquel.....	67

5.6 Medidas de CAP no Composto Intermetálico LaMnSi <sub>2</sub> .....	68
5.6.1 Interação Hiperfina do <sup>111</sup> In → <sup>111</sup> Cd no Composto Intermetálico LaMnSi <sub>2</sub> .....	69
5.6.2 Interação Hiperfina do <sup>140</sup> La → <sup>140</sup> Ce no Composto Intermetálico LaMnSi <sub>2</sub> .....	71
<b>6 CONCLUSÕES.....</b>	<b>76</b>
<b>REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....</b>	<b>81</b>
<b>ANEXO I – DIAGRAMA DE TELA DO MCA – LABVIEW 8.5 – PARTE 1/4.....</b>	<b>86</b>
<b>ANEXO II – DIAGRAMA DE TELA DO MCA – LABVIEW 8.5 – PARTE 2/4.....</b>	<b>87</b>
<b>ANEXO III – DIAGRAMA DE TELA DO MCA – LABVIEW 8.5 – PARTE 3/4.....</b>	<b>88</b>
<b>ANEXO IV – DIAGRAMA DE TELA DO MCA – LABVIEW 8.5 – PARTE 4/4.....</b>	<b>89</b>

## Lista de Figuras

Figura 2.1. Esquema de níveis com decaimento gama em cascata. $I$ é o spin nuclear, $\pi$ é a paridade, $E$ é a energia do estado, $\tau$ é a vida média do estado intermediário e $L$ é a multipolaridade da transição gama.....	4
Figura 2.2. Esquema simplificado para medidas de correlação angular com dois detectores.....	5
Figura 2.3. Princípios básicos da correlação angular $\gamma$ - $\gamma$ perturbada.....	7
Figura 2.4. Precessão do momento $\vec{I}$ angular pelo campo hiperfino magnético $\vec{B}$ . A direção de rotação mostrada na figura é para um fator $g$ do estado intermediário positivo.....	10
Figura 2.5. Desdobramento do estado intermediário com spin $I = 5/2$ para o caso da interação magnética mostrando a separação dos níveis em seis componentes Zeeman.....	11
Figura 2.6. Esquema de decaimento do núcleo de prova $^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$ .....	13
Figura 2.7. Esquema de decaimento do núcleo de prova $^{181}\text{Hf} \rightarrow ^{181}\text{Ta}$ .....	14
Figura 2.8. Esquema de decaimento do núcleo de prova $^{140}\text{La} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$ .....	15
Figura 3.1. Configuração “lento-rápido” do espectrômetro de CAP.....	18
Figura 3.2. Configuração “rápido-lento” do espectrômetro de CAP.....	20
Figura 3.3. Configuração “rápido-rápido” do espectrômetro de CAP.....	21
Figura 3.4. Configuração “digital” do espectrômetro de CAP.....	22
Figura 3.5. Esquema simplificado do espectrômetro de CAP de quatro detectores do Laboratório de Interações Hiperfinas (LIH) do IPEN.....	23
Figura 3.6. Geometria dos detectores de $\text{BaF}_2$ (lado esquerdo) e disposição planar dos quatro conjuntos detectores-fotomultiplicadoras (lado direito).....	24
Figura 3.7. Circuito dos divisores de tensão das válvulas fotomultiplicadoras Philips XP2020/Q.....	26
Figura 3.8. Sinal de tempo do anodo (a) e de energia do nono dinodo (b) do tubo fotomultiplicador Philips XP2020/Q.....	26
Figura 3.9. Esquema geral do espectrômetro de CAP de seis detectores.....	27

Figura 3.10. Conjunto típico de sinais de uma unidade de coincidências”lento-rápida”: (a) sinal NIM negativo com marca de tempo proveniente do ramo rápido; (b) sinal do ramo lento proveniente do TSCA depois de alargado; (c) coincidência entre os dois sinais.....	28
Figura 3.11. Disposição dos detectores, os espectros correspondentes, suas combinações e os ângulos entre detectores. Em letra maiúscula, detector como “start”. Em letra minúscula, detector funcionando como “stop”.....	29
Figura 3.12. Espectro típico com trinta combinações simultâneas de coincidências entre $\gamma_1$ e $\gamma_2$ .....	30
Figura 3.13. Detalhe do arranjo cúbico dos seis detectores de BaF <sub>2</sub> com amostra posicionada no ponto central.....	30
Figura 3.14. Vista geral do espectrômetro de CAP com seis detectores (esquerda). Detalhe do arranjo dos seis detectores (direita).....	31
Figura 3.15. Diagrama em blocos do sistema de aquisição do espectrômetro de CAP.....	32
Figura 3.16. Diagrama de tempos do TAC Canberra modelo 2145.....	33
Figura 3.17. Diagrama em blocos do roteador do sistema de aquisição do espectrômetro.....	34
Figura 3.18. Esquema básico do circuito alargador de pulsos.....	35
Figura 3.19. Esquema básico do circuito lógico.....	36
Figura 3.20. Esquema básico do circuito decodificador.....	37
Figura 3.21. Listagem do código de programação do CPLD Altera EPM240T100C6.....	38
Figura 3.22. Principais sinais do sistema de aquisição do espectrômetro CAP: (1) “strobe”, (2) “enable”, (3) “clock” e (4) “tac out”.....	39
Figura 3.23. Vista da tela do MCA.....	40
Figura 3.24. Esquema básico da leitura de dados do MCA.....	40
Figura 3.25. Desenho esquemático do mini-forno para espectrômetro de CAP (esquerda) e o protótipo construído (direita).....	42
Figura 3.26. Diagrama em blocos do circuito elétrico do mini-forno para espectrômetro de CAP. ....	42
Figura 3.27. Tela do painel do controle remoto da temperatura do mini-forno.....	43
Figura 3.28. Diagrama em blocos do multiplexador analógico.....	43
Figura 3.29. Esquema do circuito do atraso digital.....	45

Figura 3.30. Diagrama em blocos do circuito de posicionamento dos detectores.....	46
Figura 3.31. Circuito da fonte de alimentação dos CFDs.....	46
Figura 3.32. Unidades complementares desenvolvidas no LIH para o espectrômetro de CAP seis detectores: (1) módulo de atraso digital; (2) circuito de posicionamento para detectores; (3) fontes de alimentação para CFDs; (4) divisor de tensão para válvula fotomultiplicadora; (5) roteador; (6) multiplexador analógico. As cores das fitas representam os detectores e seus ramos: vermelha (A), azul (B), amarelo (C), verde (D), cinza (E) e branco (F).....	47
Figura 4.1. Diagrama em blocos do arranjo de calibração em tempo sem utilização de núcleo radioativo.....	48
Figura 4.2. Exemplo de espectro obtido na calibração em tempo do espectrômetro de CAP. Neste caso: “range” = 160 ns e “period” = 20 ns (calibrador de tempo) e “time range” = 200 ns (TAC).....	49
Figura 4.3. Diagrama utilizado para definição de linearidade diferencial e integral. A curva (A) mostra a resposta medida para um determinado sinal de entrada. A reta (B) corresponde à resposta ideal.....	51
Figura 4.4. Espectro obtido através da fonte de $^{60}\text{Co}$ FWHM = 1,06(2) ns para calibração de 0,102(1) ns/canal.....	52
Figura 4.5. Estrutura cristalina do $\text{LaMnSi}_2$ .....	54
Figura 4.6. Forno de arco voltaico (a) utilizado para confecção das amostras. Forno de resistência utilizado para o tratamento térmico das amostras após fusão (b). Fornos do Laboratório de Interações Hiperfinas do CRPq/IPEN.....	56
Figura 4.7. Espectro típico de coincidências entre $\gamma_1$ e $\gamma_2$ .....	58
Figura 5.1. Variação do tempo morto do MCA do espectrômetro de seis detectores em relação à taxa de coincidências $\gamma-\gamma$ .....	61
Figura 5.2. Espectro de CAP do núcleo de prova $^{181}\text{Ta}$ no háfnio a 293 K e sua respectiva transformada de Fourier.....	64
Figura 5.3. Espectro de CAP do núcleo de prova $^{111}\text{Cd}$ em cádmio a 293 K e sua respectiva transformada de Fourier.....	65
Figura 5.4. Espectro de CAP do núcleo de prova $^{181}\text{Ta}$ em níquel a 293 K e sua respectiva transformada de Fourier.....	66
Figura 5.5. Espectro de CAP do núcleo de prova $^{111}\text{Cd}$ em níquel a 293 K e sua respectiva transformada de Fourier.....	67

- Figura 5.6. Padrão de difração de raios X para o composto  $\text{LaMnSi}_2$ . A linha vermelha representa o padrão calculado com o método Rietveld, a linha azul representa a diferença entre o resultado experimental e o ajustado, e os traços em preto representam a posição dos picos de acordo com a literatura..... 68
- Figura 5.7. Funções de perturbação para  $\text{LaMnSi}_2$  com o núcleo de prova  $^{111}\text{Cd}$  em várias temperaturas. As linhas sólidas correspondem ao ajuste de mínimos quadrados dos dados experimentais às funções teóricas..... 70
- Figura 5.8. Dependência do campo hiperfino magnético em função da temperatura do  $^{111}\text{Cd}$  em  $\text{LaMnSi}_2$ . A curva sólida representa o ajuste à função de Brillouin..... 71
- Figura 5.9. Funções de perturbação para  $\text{LaMnSi}_2$  com o núcleo de prova  $^{140}\text{Ce}$  em várias temperaturas. As linhas sólidas correspondem ao ajuste de mínimos quadrados dos dados experimentais às funções teóricas..... 72
- Figura 5.10. Dependência do campo hiperfino magnético em função da temperatura do  $^{401}\text{Ce}$  em  $\text{LaMnSi}_2$ . Em (a) o gráfico mostra medida do campo hiperfino magnético a baixas temperaturas com valores do campo em módulo. A curva sólida representa o ajuste à função de Brillouin. Em (b) gráfico mostra a contribuição do campo hiperfino magnético devido ao acoplamento do Ce a baixas temperaturas. As medidas foram feitas com um magnetômetro MPSM – SQUID ..... 73
- Figura 5.11. Resultado da medida de magnetização com campo externo de 5000Oe. .... 74
- Figura 6.1. Foto da estrutura mecânica do novo espectrômetro de seis detectores digital..... 78
- Figura 6.2. Diagrama em blocos do novo espectrômetro de seis detectores digital..... 79
- Figura 6.3. Diagrama de blocos do digitalizador N6751 da CAEN..... 80

## Lista de Tabelas

Tabela 4.1. Valores típicos para os parâmetros de calibração em tempo do espectrômetro de CAP.....	50
Tabela 4.2. Ponto de ebulição dos elementos utilizados na confecção das amostras.....	56
Tabela 5.1. Valores obtidos para a calibração em tempo do espectrômetro de CAP.....	60
Tabela 5.2. Valores obtidos para linearidade em tempo do espectrômetro de CAP.....	60
Tabela 5.3. Valores obtidos para as medidas de resolução em tempo dos espectros individuais para “range” de 100 ns e núcleo de $^{60}\text{Co}$ com energias de $\gamma_1$ e $\gamma_2$ ajustadas em 328 keV e 487 keV, correspondentes a cascata-gama no decaimento do $^{140}\text{La}$ - $^{140}\text{Ce}$ .....	62



## 1. INTRODUÇÃO

Espectrômetros são equipamentos comumente utilizados para análise físico-química da matéria como, por exemplo, na área de Ciência dos Materiais. Uma das diversas técnicas que emprega espectrômetros associados a detectores de radiação para investigação microscópica da matéria é a correlação angular gama-gama perturbada diferencial em tempo (CAPDT ou simplesmente CAP) [1]. Mais especificamente, a técnica CAP permite investigação de campos hiperfinos magnéticos e gradientes de campo elétrico em materiais, gerados pela vizinhança eletrônica e iônica de um núcleo radioativo de prova introduzido como traçador no material a ser investigado. O núcleo radioativo cria, em seu decaimento nuclear, um núcleo filho no estado excitado que se desexcita por meio da emissão de dois raios gama sucessivos,  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$ . Uma interação entre os campos eletromagnéticos extranucleares e os momentos nucleares do estado intermediário da cascata gama causa perturbação da correlação angular normal dos raios gama emitidos de uma maneira característica. A análise detalhada dessas perturbações proporciona informações sobre propriedades eletrônicas do material hospedeiro como: estrutura cristalina, estrutura magnética, defeitos estruturais, transição de fase, etc.

Os espectrômetros 30901030CAP típicos são constituídos basicamente por quatro detectores cintiladores [2,3]. Este também é o caso do Laboratório de Interações Hiperfinas (LIH) do Centro do Reator de Pesquisa (CRPq) do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), onde as medidas são realizadas utilizando-se um espectrômetro constituído por quatro detectores de BaF<sub>2</sub> em uma configuração planar com ângulo de 90° entre si, acoplados a um sistema eletrônico [4]. Neste sistema são obtidos 12 espectros de distribuição no tempo dos eventos de coincidências entre  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$  detectados pelos pares de detectores nas combinações possíveis, isto é, 8 espectros para os detectores em 90° e 4 em 180°. Os dois ângulos das medidas, 90° e 180°, são escolhidos para maximizar as amplitudes das oscilações na função de perturbação  $R(t)$ , uma vez que a diferença dos polinômios de Legendre entre estes dois ângulos alcança valor máximo.

Em medidas de CAP, a atividade da amostra não pode ser aumentada além de certo nível estabelecido pela razão entre as coincidências verdadeiras e acidentais. Isso limita a utilização de alguns núcleos de prova interessantes que possuem meias-vidas curtas, como por exemplo: <sup>140</sup>La, <sup>111m</sup>Cd e <sup>199m</sup>Hg. Assim, a única maneira de reduzir o

tempo da coleta de dados é aumentar a eficiência do equipamento de medidas através do aumento do número de detectores de quatro para seis. Entretanto, como tecnicamente esta modificação não é possível no atual espectrômetro, optou-se pelo desenvolvimento de um novo sistema de medidas constituído por seis detectores. Além do aumento do número de detectores e da estatística de contagens, as principais características deste espectrômetro são: a) alteração na forma de aquisição dos dados, com a substituição do Analisador Multicanal (MCA) convencional por um conjunto constituído de um Conversor Analógico-Digital (ADC) externo rápido e uma placa de I/O para acumular as informações digitais das coincidências  $\gamma$ - $\gamma$  em um disco rígido de um microcomputador; b) um programa para processar os dados obtidos sequencialmente desenvolvido no ambiente gráfico LabVIEW e apresentar o espectro resultante em tempo real; c) confecção de um novo roteador para gerar 30 espectros simultâneos de coincidências  $\gamma$ - $\gamma$ ; d) construção de módulos eletrônicos complementares para o espectrômetro, tais como: divisores de tensão para as válvulas fotomultiplicadoras, fontes de alimentação, movimentadores dos detectores e multiplexadores de sinais para facilitar o ajuste dos níveis de energias gama provenientes de cada detector; e) construção de um sistema de controle com microprocessador de um mini-forno de cerca  $1 \text{ cm}^3$  para medidas de amostras em temperaturas entre 298 K e 1373 K.

O desempenho do novo espectrômetro foi verificado através de testes de linearidade, resolução em tempo e tempo morto do sistema, e medidas de interações hiperfinas em sistemas já conhecidos da literatura tais como: interação quadrupolar do  $^{181}\text{Ta}$  em háfnio metálico, do  $^{111}\text{Cd}$  em cádmio metálico, e de campo hiperfino magnético do  $^{181}\text{Ta}$  e do  $^{111}\text{Cd}$  em níquel. Uma vez comprovado o funcionamento satisfatório do espectrômetro, foram realizadas medidas inéditas de interações hiperfinas em composto intermetálico  $\text{LaMnSi}_2$ . Os resultados das medidas serão apresentados e discutidos, assim como todo o desenvolvimento do espectrômetro.

O objetivo deste trabalho é, portanto, o desenvolvimento de um espectrômetro de correlação angular  $\gamma$ - $\gamma$  perturbada (CAP) composto por seis detectores de  $\text{BaF}_2$  para realização de pesquisas na área de interação hiperfina eletromagnética em diversos tipos de materiais. Este espectrômetro é capaz de gerar um número maior de espectros simultâneos de coincidências  $\gamma$ - $\gamma$  atrasadas (30) em comparação ao sistema de quatro detectores já instalado (12) no LIH, reduzindo o tempo das medidas de CAP e propiciando o estudo de

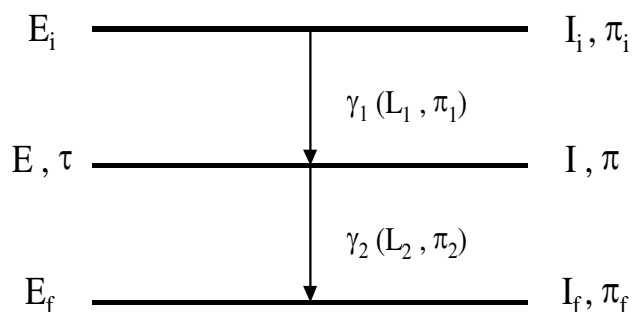
---

novos materiais, especialmente através da utilização de radioisótopos com meias-vidas curtas como, por exemplo, o  $^{140}\text{La}$ .

## 2. A ESPECTROSCOPIA DE CORRELAÇÃO ANGULAR GAMA-GAMA PERTURBADA

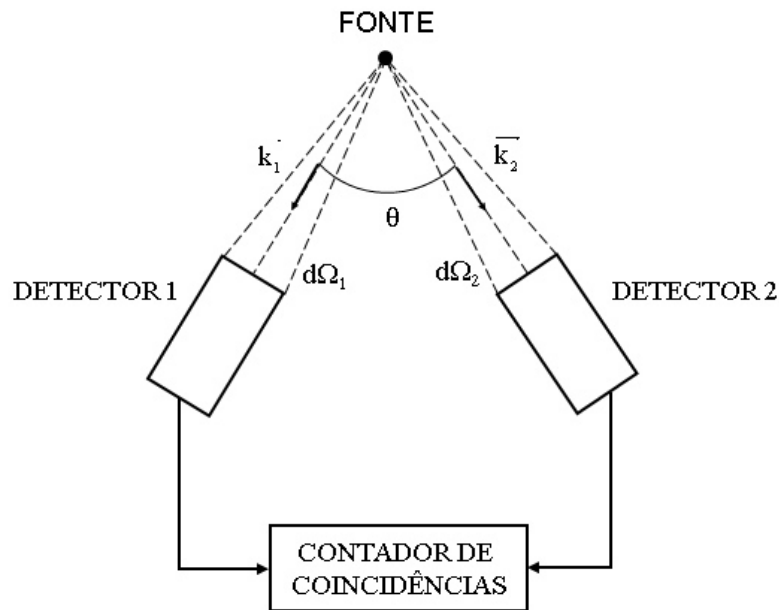
### 2.1 Correlação Angular Direcional

A técnica da correlação angular direcional gama-gama tem como base os princípios gerais da simetria de rotação e reflexão que levam em consideração a conservação do momento angular e da paridade [5]. A probabilidade da emissão de um fóton por um núcleo radioativo depende, em geral, do ângulo entre o eixo de spin nuclear e a direção da emissão. Assim, a radiação emitida por uma amostra comum é isotrópica, pois os núcleos individuais estão orientados aleatoriamente no espaço. A distribuição angular anisotrópica somente pode ser observada em um conjunto de núcleos que estão orientados em uma só direção. Para compreensão de uma das técnicas de criação de um padrão anisotrópico, é tomado como exemplo um núcleo excitado que decai pela emissão de dois raios gama sucessivos  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$ , cujo esquema de decaimento e os parâmetros nucleares envolvidos podem ser observados na figura 2.1.



**Figura 2.1** – Esquema de níveis com decaimento gama em cascata.  $I$  é o spin nuclear,  $\pi$  é a paridade,  $E$  é a energia do estado,  $\tau$  é a vida média do estado intermediário e  $L$  é a multipolaridade da transição gama.

A técnica CAP consiste em detectar raios gama em coincidência, sendo que o primeiro raio gama  $\gamma_1$  é detectado pelo detector 1 (fixo) e o segundo raio gama  $\gamma_2$  é detectado pelo detector 2 (móvel), separados pelo ângulo  $\theta$ . A detecção de  $\gamma_1$  numa direção fixa seleciona um conjunto de núcleos no estado intermediário com direção dos spins alinhados. A segunda radiação  $\gamma_2$  é, portanto, emitida pelo conjunto de núcleos com spins alinhados e mostra distribuição angular anisotrópica. A figura 2.2 ilustra o esquema experimental básico que é utilizado para se obter as coincidências entre as radiações  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$ , provenientes de um mesmo núcleo, emitidas nas direções de  $\vec{k}_1$  e  $\vec{k}_2$  dentro dos ângulos sólidos  $d\Omega_1$  e  $d\Omega_2$ .



**Figura 2.2** – Esquema simplificado para medidas de correlação angular com dois detectores.

A função correlação angular, que fornece a probabilidade da radiação  $\gamma_2$  ser emitida em um elemento de ângulo sólido  $d\Omega_2$  em coincidência com  $\gamma_1$ , emitida em um elemento de ângulo sólido  $d\Omega_1$ , pode ser escrita da seguinte forma:

$$W(\theta) = \sum_k A_{kk} P_k(\cos\theta) \quad (2.1)$$

onde  $W(\theta)$  é a função correlação angular e  $P_k(\cos\theta)$  são os Polinômios de Legendre de ordem  $k$ . Apenas os termos com  $k$  pares aparecem devido à conservação da paridade em transições eletromagnéticas. O valor do  $k_{m\acute{a}x}$  é restringido pela regra  $k_{m\acute{a}x} \leq \text{mínimo entre } (2I, 2L_1, 2L_2)$ . Em geral,  $k_{m\acute{a}x} = 4$ , pois as multipolaridades das transições gama ( $L, L+1$ ) são na maioria, do tipo dipolar ou quadrupolar. Desta forma a equação  $W(\theta)$  restringe-se a:

$$W(\theta) = A_{00} + A_{22}P_2(\cos\theta) + A_{44}P_4(\cos\theta) \quad (2.2)$$

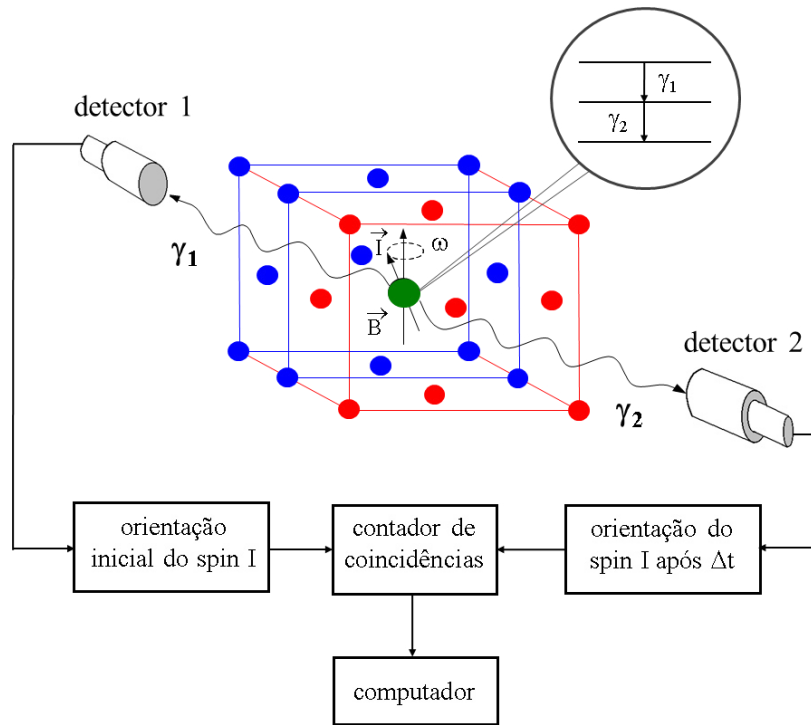
Normaliza-se esta função em relação a  $A_{00}$ , obtendo-se:

$$W(\theta) = 1 + A_{22}P_2(\cos\theta) + A_{44}P_4(\cos\theta) \quad (2.3)$$

Os coeficientes de correlação angular  $A_{kk}$  dependem dos spins dos estados nucleares e das multipolaridades das transições gama.

## 2.2 Correlação Angular Gama-Gama Perturbada

Se após a emissão de  $\gamma_1$  o núcleo permanecer no estado intermediário por um tempo suficientemente longo (da ordem de alguns nano-segundos ou mais), os momentos nucleares do estado poderão interagir com os campos extranucleares, como por exemplo campos magnéticos hiperfinos ou gradientes de campo elétrico. Estas interações produzem uma precessão do spin nuclear em torno do eixo de simetria, fazendo com que a radiação  $\gamma_2$  seja emitida com orientação de spin diferente daquela que deveria ter caso não existisse a interação. Como consequência, a correlação angular entre  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$  é alterada. Esta correlação angular modificada é denominada Correlação Angular Perturbada (CAP), e os princípios básicos desta técnica estão ilustrados na figura 2.3.



**Figura 2.3** – Princípios básicos da correlação angular  $\gamma$ - $\gamma$  perturbada.

A influência de um campo extranuclear sobre a correlação angular de uma cascata gama depende, em particular, da magnitude e da duração da interação. Para perturbações estáticas, a magnitude pode ser descrita pela frequência de precessão  $\omega$ . Para interação magnética,  $\omega$  é chamada de Frequência de Larmor  $\omega_L$ , que é proporcional ao momento dipolo magnético nuclear  $\mu$  e ao campo magnético  $B$ . No caso de interação quadrupolar, a frequência quadrupolar  $\omega_Q$  é proporcional ao momento quadrupolo elétrico  $Q$  e ao gradiente de campo elétrico GCE. Assim, a função correlação angular  $W(\theta)$  é escrita da seguinte forma [5]:

$$W(\theta, t) = \sum_k G_{kk}(t) A_{kk} P_k(\cos\theta) \tag{2.4}$$

onde  $G_{kk}(t)$  é o fator de perturbação que contém informações detalhadas sobre a interação nuclear do nível intermediário. Portanto, a função correlação angular não tem a sua forma genérica alterada pela perturbação; apenas foi introduzido um fator de perturbação  $G_{kk}(t)$ .

### 2.3 Interação Quadrupolar

A interação quadrupolar elétrica é o resultado da interação entre o momento de quadrupolo elétrico nuclear  $Q$  e o Gradiente de Campo Elétrico (GCE) criado pelas cargas ao redor do núcleo de prova. O GCE pode ser definido por apenas dois parâmetros, pela maior componente do potencial eletrostático  $V_{zz}$  e pelo seu parâmetro de assimetria  $\eta$  definido pela equação:

$$\eta = \frac{V_{xx} - V_{yy}}{V_{zz}} \quad (2.5)$$

Com a desigualdade das componentes de  $V_{nm}$  acima, mais a equação de Laplace  $V_{xx} + V_{yy} + V_{zz} = 0$ , os valores de  $\eta$  restringem-se ao intervalo  $0 \leq \eta \leq 1$ . Em amostras com simetrias axiais, a direção da componente principal  $V_{zz}$  coincide com o eixo de simetria, tornando o tensor GCE diagonal com  $V_{xx} = V_{yy}$  e, portanto,  $\eta = 0$ . A interação quadrupolar provoca desdobramento do nível intermediário do núcleo em sub-níveis duplamente degenerados e para caso de  $\eta = 0$  temos a menor frequência de precessão  $\omega_0$ .

$$\omega_0 = \frac{3eQV_{zz}}{4I(2I-1)\hbar} = 3\omega_Q \quad (I \text{ inteiro}) \quad (2.6)$$

e

$$\omega_0 = \frac{6eQV_{zz}}{4I(2I-1)\hbar} = 6\omega_Q \quad (I \text{ semi-inteiro}) \quad (2.7)$$

onde  $\omega_Q$  é a frequência quadrupolar,  $\hbar = h/2\pi$  e  $h$  é a constante de Plank.

A frequência quadrupolar, independente do spin nuclear, é definida por:



$$\nu_Q = \frac{eQV_{zz}}{h} \quad (2.8)$$

Para caso de  $\eta > 0$ , as frequências de transição dependem do valor do  $\eta$  e o fator de perturbação é dado por [5]:

$$G_{kk} = \sum_{n=0}^{k_{\max}} S_{kn} \cos \omega_{0n} t \quad (2.9)$$

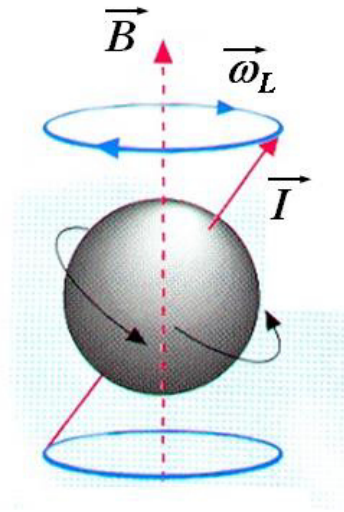
Onde  $S_{kn}$  são as amplitudes das frequências de transição que dependem diretamente do spin do estado intermediário e precisam ser calculadas em função do  $\eta$ .

Para o caso particular de núcleos com spin  $5/2$  do nível intermediário,  $\eta = 0$  e  $k_{\max} = 2$ , observamos três frequências:  $\omega_{01} = \omega_0$ ,  $\omega_{02} = 2\omega_0$  e  $\omega_{03} = 3\omega_0$ . Assim, o fator de perturbação torna-se:

$$G_{22}(t) = S_{20} + S_{21} \cos(\omega_0 t) + S_{22} \cos(2\omega_0 t) + S_{23} \cos(3\omega_0 t) \quad (2.10)$$

## 2.4 Interação Magnética

Quando um campo magnético  $\vec{B}$  age sobre um núcleo radioativo (seja um campo hiperfino em uma amostra ferromagnética ou um campo magnético externo aplicado) que decai com emissão de radiações  $\gamma$  sucessivas, a interação do campo magnético com o momento magnético nuclear  $\vec{\mu}$  do estado intermediário provoca uma precessão do spin nuclear em torno da direção do campo magnético  $\vec{B}$ , com uma frequência  $\omega_L$  (figura 2.4). Por consequência, após um tempo  $t$ , o spin nuclear sofre uma rotação dada pelo ângulo  $\omega_L t$ . Se a permanência do núcleo no estado intermediário da cascata gama for suficientemente longa ( $> 10^{-9}$  s) a interação magnética provoca uma mudança na direção do spin do estado intermediário e consequentemente altera a direção de emissão da segunda radiação gama da cascata.



**Figura 2.4** – Precessão do momento angular  $\vec{I}$  pelo campo hiperfino magnético  $\vec{B}$ . A direção de rotação mostrada na figura é para um fator  $g$  do estado intermediário positivo [6].

Para um campo magnético na direção do eixo  $z$  a interação magnética produz desdobramento Zeeman (figura 2.5) energeticamente equidistante. A frequência de Larmor  $\omega_L$  é dada por:

$$\omega_L = \frac{\Delta E}{\hbar} = g \cdot \frac{\mu_N}{\hbar} \cdot \vec{B}_z \quad (2.11)$$

onde  $g$  é o fator giromagnético do estado intermediário e  $\mu_N$  é o magnéton nuclear ( $\mu_N = 5,05 \times 10^{-31}$  J/Gauss). No caso de amostras policristalinas ferromagnéticas em que os domínios magnéticos estão orientados aleatoriamente, a função de perturbação pode ser escrita como:

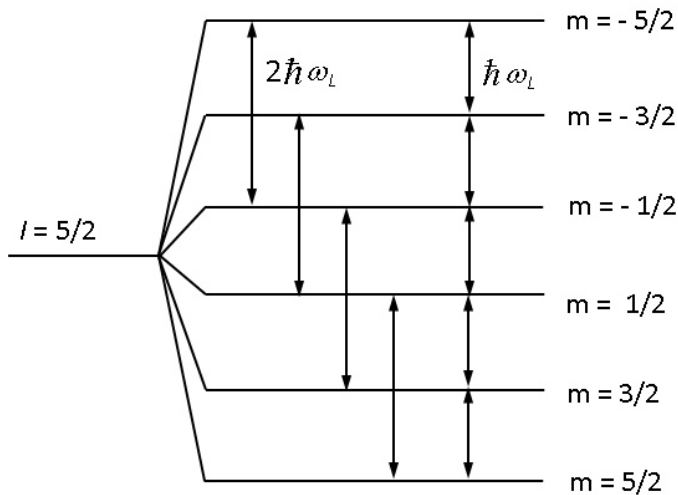
$$G_{kk}(t) = \frac{1}{2k+1} \sum_{n=-k}^k \cos(n\omega_L t) \quad (2.12)$$

Considerando apenas os termos com  $k = 2, 4$  temos:

$$G_{22}(t) = \frac{1}{5} [1 + 2\cos(\omega_L t) + 2\cos(2\omega_L t)] \quad (2.13)$$

e

$$G_{44}(t) = \frac{1}{9} [1 + 2\cos(\omega_L t) + 2\cos(2\omega_L t) + 2\cos(3\omega_L t) + 2\cos(4\omega_L t)] \quad (2.14)$$



**Figura 2.5** – Desdobramento do estado intermediário com spin  $I = 5/2$  para o caso da interação magnética mostrando a separação dos níveis em seis componentes Zeeman.

## 2.5 Núcleos de Prova

Os núcleos de prova utilizados nos experimentos CAP devem decair através de uma cascata gama com nível intermediário isomérico com meia vida entre alguns nano segundos e vários microssegundos. O limite inferior de tempo corresponde ao tempo de resolução do arranjo experimental e o limite superior de tempo é determinado pela razão entre coincidências verdadeiras e acidentais, proporcional a  $1/\tau_N$  (onde  $\tau_N$  é a vida média do estado intermediário da cascata gama). O momento de quadrupolo nuclear e a magnitude do momento dipolar magnético devem ser altos, pois a intensidade da interação hiperfina é proporcional a essas grandezas, o que permite que a detecção de campos fracos seja

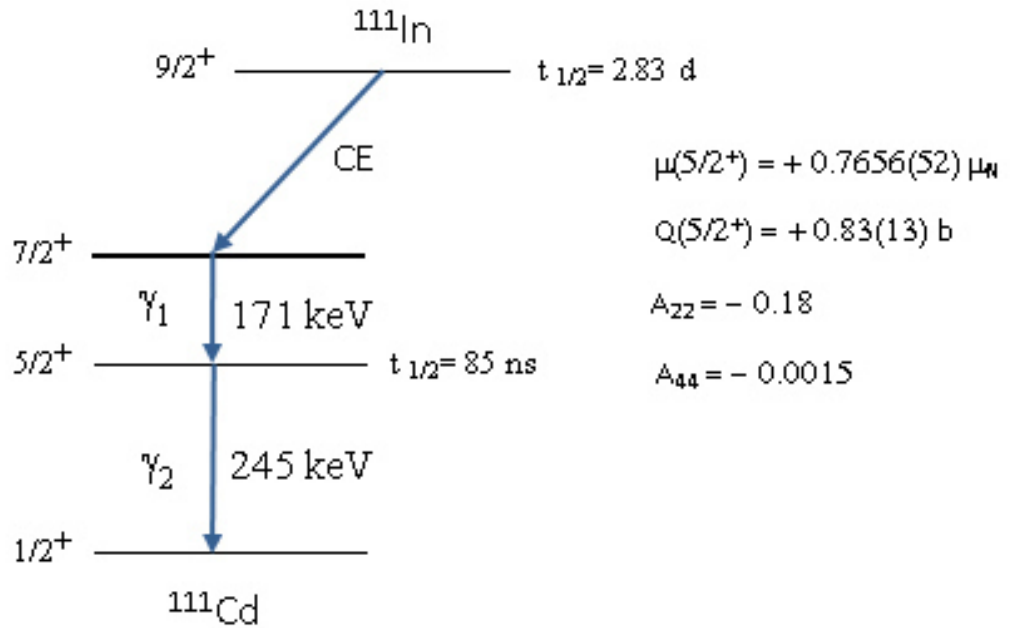
possível. O coeficiente de anisotropia  $A_{22}$  deve ser grande, pois é isso importante para determinar a amplitude de modulação, o que torna mais fácil a observação da perturbação. O spin do estado intermediário não deve ser muito alto (não maior que  $5/2$  para spin semi-inteiro e  $2$  para spin inteiro) já que rapidamente aumenta os termos que contribuem para a função de perturbação para interação quadrupolar e dificultaria a análise dos dados. Se o spin, por outro lado, for muito baixo (menor que  $1$  ou  $3/2$ ), o parâmetro de assimetria não pode ser determinado para amostras policristalinas.

Usualmente a atividade da fonte radioativa deve ser de cerca de  $10 - 20 \mu\text{Ci}$ , valor correspondente a uma ordem de  $10^{11}$  a  $10^{12}$  núcleos de prova. Cada núcleo de prova deve emitir dois raios  $\gamma$  sucessivos com energias bem definidas; o primeiro gama ( $\gamma_1$ ) povoa o nível intermediário e o segundo gama ( $\gamma_2$ ) é emitido em seu decaimento. Além disso, é conveniente que o radioisótopo (pai) seja de fácil produção e tenha meia-vida da ordem de dias ou semanas.

É importante também que o núcleo de prova escolhido tenha as mesmas propriedades químicas que o elemento localizado no sítio que se deseja medir a interação, pois assim o núcleo de prova pode substituir esse elemento de maior afinidade química. Desta forma, os núcleos de prova escolhidos para este trabalho foram:  $^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$ ,  $^{181}\text{Hf} \rightarrow ^{181}\text{Ta}$  e  $^{140}\text{La} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$ . Estes núcleos possuem os requisitos necessários para aplicação em CAP.

### 2.5.1 $^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$

O  $^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$  é um dos principais núcleos utilizados nos experimentos de CAP. O isótopo  $^{111}\text{In}$ , que decai para  $^{111}\text{Cd}$  por captura de elétrons (CE) como apresentado no esquema simplificado da figura 2.6 [7], pode ser produzido por reações nucleares  $^{110}\text{Cd}(d, n)^{111}\text{In}$  ou  $^{109}\text{Ag}(\alpha, 2n)^{111}\text{In}$  seguido de uma separação química. O  $^{111}\text{In}$  pode ser introduzido numa amostra por difusão térmica, por implantação iônica, e por processos químicos ou metalúrgicos. No presente trabalho, a amostra de  $^{111}\text{In}$  sem carregador foi fornecida pela empresa canadense MS Nordian na forma de solução de  $\text{InCl}_3$ .



**Figura 2.6** – Esquema de decaimento do núcleo de prova  $^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$ .

### 2.5.2 $^{181}\text{Hf} \rightarrow ^{181}\text{Ta}$

O núcleo  $^{181}\text{Hf} \rightarrow ^{181}\text{Ta}$  é produzido por captura de nêutrons térmicos pelo  $^{180}\text{Hf}$ . Em virtude de sua elevada seção de choque de captura ( $\sigma = 14 \text{ b}$ ), é possível a obtenção de amostras com alta atividade específica num curto período de tempo de irradiação. O  $^{181}\text{Hf}$  é usualmente introduzido nas amostras através de fusão com componentes metálicos. A quantidade de  $^{181}\text{Hf}$  utilizada é de aproximadamente 0,1 % do total de átomos da amostra. O  $^{181}\text{Hf}$  utilizado neste trabalho foi produzido através da irradiação do háfnio natural com nêutrons térmicos no Reator Nuclear de Pesquisas IEA-R1 do IPEN. O esquema de decaimento simplificado, obtido da referência [7], pode ser visto na figura 2.7.

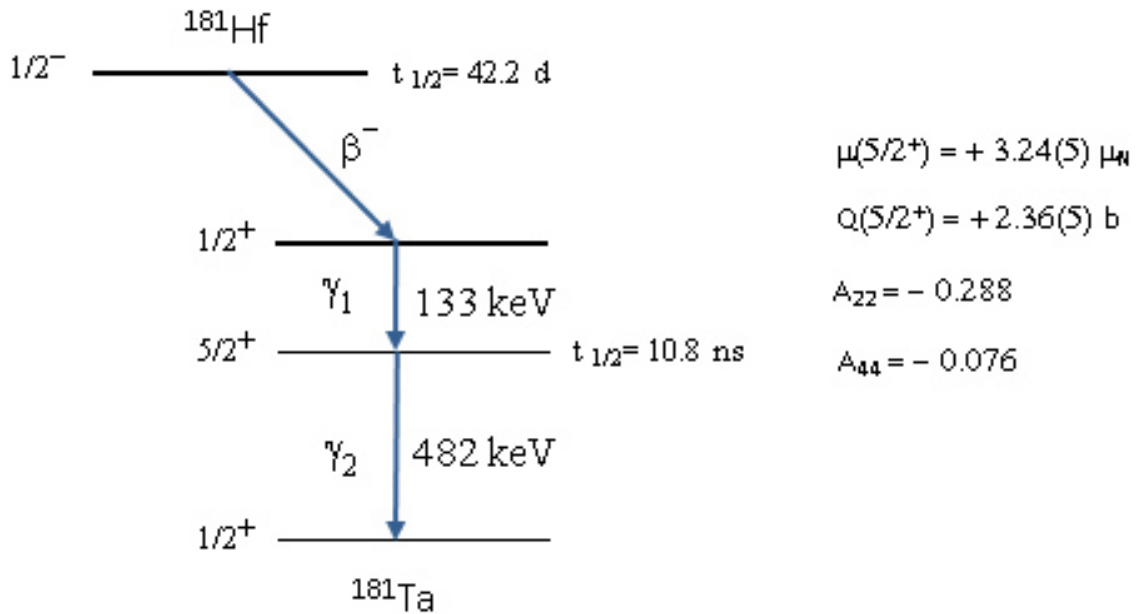
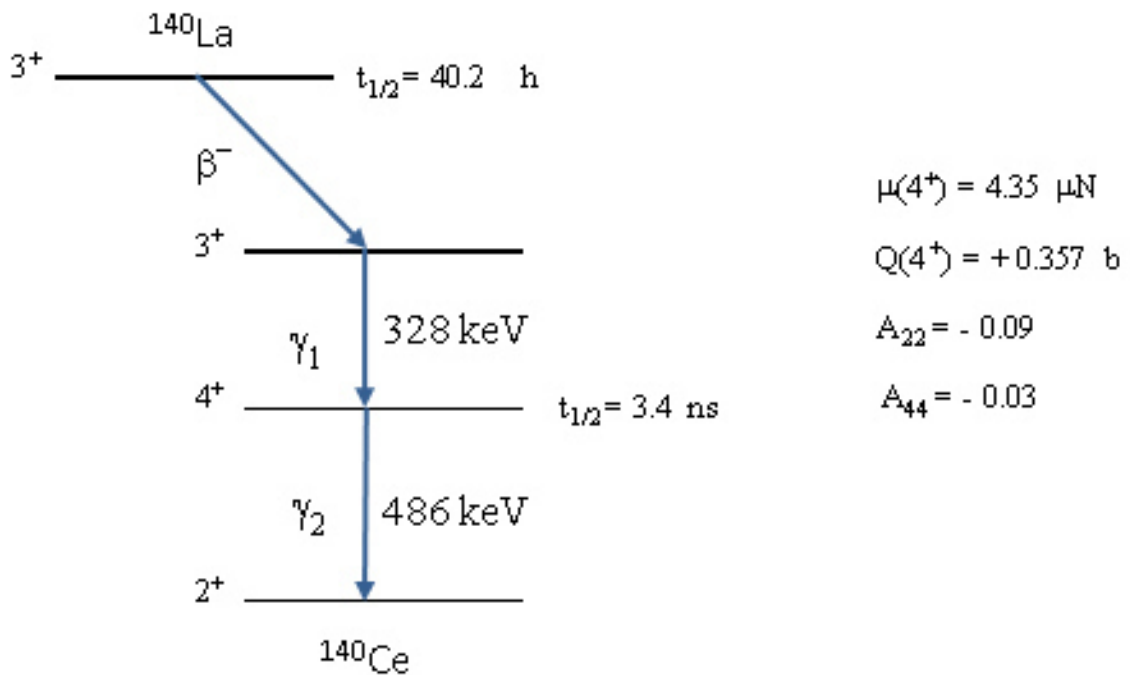


Figura 2.7 – Esquema de decaimento do núcleo de prova  $^{181}\text{Hf} \rightarrow ^{181}\text{Ta}$ .

### 2.5.3 $^{140}\text{La} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$

O núcleo  $^{140}\text{La} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$  é produzido através da reação  $^{139}\text{La}(n,\gamma)^{140}\text{La}$ . O lantânio radioativo é frequentemente introduzido nas amostras através de fusão dos componentes metálicos junto com o  $^{140}\text{La}$ . Como o momento de quadrupolo nuclear do  $^{140}\text{Ce}$  é muito baixo ( $Q = 0,36 \text{ b}$ ), este núcleo é pouco sensível a interação quadrupolar. Assim, este núcleo é interessante para medidas de campo hiperfino magnético (CHM) em amostras magnéticas cuja estrutura é diferente da cúbica. O esquema de decaimento simplificado [8], os momentos nucleares do nível nuclear intermediário [9] e os coeficientes de correlação angular [10] são apresentados na figura 2.8.



**Figura 2.8** – Esquema de decaimento do núcleo de prova  $^{140}\text{La} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$ .

## 2.6 Características Gerais dos Materiais Hospedeiros

Vários são os materiais que podem ser estudados por meio da técnica CAP. Compostos intermetálicos, isolantes, semicondutores, estruturas biológicas, e ligas ferromagnéticas são alguns exemplos. De modo geral, estes materiais devem possuir GCE ou CHM capazes de interagir com os momentos nucleares dos átomos de prova incorporados, perturbando de uma forma peculiar a correlação angular entre as radiações  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$  da cascata gama.

A interação entre o GCE do material hospedeiro e os momentos de quadrupolo elétrico dos núcleos de prova ocorre em amostras que apresentam estrutura cristalina não cúbica, ou seja, onde a distribuição de cargas ao redor dos sítios atômicos ocupados pelo núcleo de prova não é esférica. Nesta situação, a técnica CAP permite a obtenção de informações sobre a configuração eletrônica (estrutura cristalina) do material em análise.

No caso de materiais que apresentam estrutura cristalina cúbica, o GCE é nulo. Entretanto, a existência de defeitos (como vacâncias, quando o material é danificado por radiação), ou a adição de impurezas (como na dopagem de semicondutores) [11],

contribuem para o aparecimento de gradientes de campo elétrico que podem ser detectados e estudados através de medidas de CAP. De forma similar, gradientes de campo elétrico surgem quando os núcleos de prova estão próximos à superfície do material hospedeiro, onde a estrutura cristalina não é perfeitamente cúbica; nesta condição, a técnica CAP permite o estudo de características e estrutura da superfície do material [12].

Em Biologia, podem ser analisados pela técnica CAP, os comportamentos das biomoléculas, os fenômenos metabólicos envolvidos, e a ação dos íons metálicos no interior das células [13].

Fenômenos do magnetismo em determinados metais e ligas metálicas podem ser estudados por CAP, como por exemplo, o níquel, ferro, cobalto e gadolínio, e em várias ligas metálicas, inclusive com a adição de impurezas; nestas situações verifica-se a interação do campo hiperfino magnético dos materiais hospedeiros, com o momento de dipolo magnético dos núcleos de prova. No caso da aplicação de campos magnéticos externos, a técnica CAP permite a determinação dos momentos magnéticos dos estados nucleares excitados.



### **3. DESENVOLVIMENTO DO ESPECTRÔMETRO COM SEIS DETECTORES PARA MEDIDAS DE CAP**

#### **3.1 Introdução**

Os primeiros experimentos de CAP utilizavam espectrômetros constituídos por dois [14] e três [15] detectores cintiladores em configuração móvel de um ou dois detectores. Posteriormente optou-se pela configuração fixa constituída de quatro [16] ou seis [2] detectores. Em geral, as medidas são realizadas nos ângulos de  $90^\circ$  e  $180^\circ$  entre os conjuntos de detectores, pois os coeficientes de correlação angular são em muitos casos  $A_{22} \gg A_{44}$ . Apesar da elevação do custo, a vantagem de utilizar arranjos fixos com número maior de cintiladores é a redução do tempo de duração dos experimentos na proporção de 1 : 2,7 : 4,8 para conjuntos com três, quatro e seis detectores, respectivamente [2] e desta forma é possível obter, proporcionalmente, melhor estatística, para um mesmo tempo de contagem.

Os detectores utilizados nos experimentos de CAP são constituídos por cristais cintiladores acoplados a válvulas fotomultiplicadoras (PM), alimentadas por fontes de alta-tensão (HV). Estes detectores fornecem informações sobre as energias e os tempos das emissões das radiações  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$ . Assim, os cristais cintiladores devem possuir uma ótima resolução em tempo e uma razoável resolução em energia para que os resultados dos experimentos sejam satisfatórios. Os primeiros trabalhos CAP empregavam cristais de NaI(Tl), que posteriormente foram sendo substituídos por cintiladores de CsF, BaF<sub>2</sub> [17] e, mais recentemente, de LaBr<sub>3</sub>(Ce) [18].

Os espectrômetros CAP apresentam quatro configurações que se diferenciam pela forma de validação dos sinais de “tempo” (“rápido”) e “energia” (“lento”) provenientes, respectivamente, do anodo e do dinodo dos detectores. Estas configurações são: “lento-rápido”, “rápido-lento”, “rápido-rápido”, e “digital”.

#### **3.2 Estruturas dos Espectrômetros de CAP**

##### **3.2.1 Configuração “Lento-Rápido”**

No arranjo “lento-rápido” [2, 19] é feita uma coincidência entre os sinais de tempo e energia correspondentes a cada uma das radiações gama. Um esquema de

espectrômetro na configuração “lento-rápido” é apresentado na figura 3.1. São utilizados apenas dois detectores para fins de exemplificação; o detector 1 detecta  $\gamma_1$  da cascata e o detector 2 detecta  $\gamma_2$ . O sinal do anodo da fotomultiplicadora é aplicado a um discriminador de fração constante (CFD) que cria uma marca de tempo precisa do instante da emissão da radiação gama (pulso rápido). O sinal amplificado e formatado proveniente de um dos últimos dinodos da válvula fotomultiplicadora é levado a um analisador monocanal com marca de tempo (TSCA), onde é definida uma janela em torno de uma das energias da cascata gama (pulso lento).

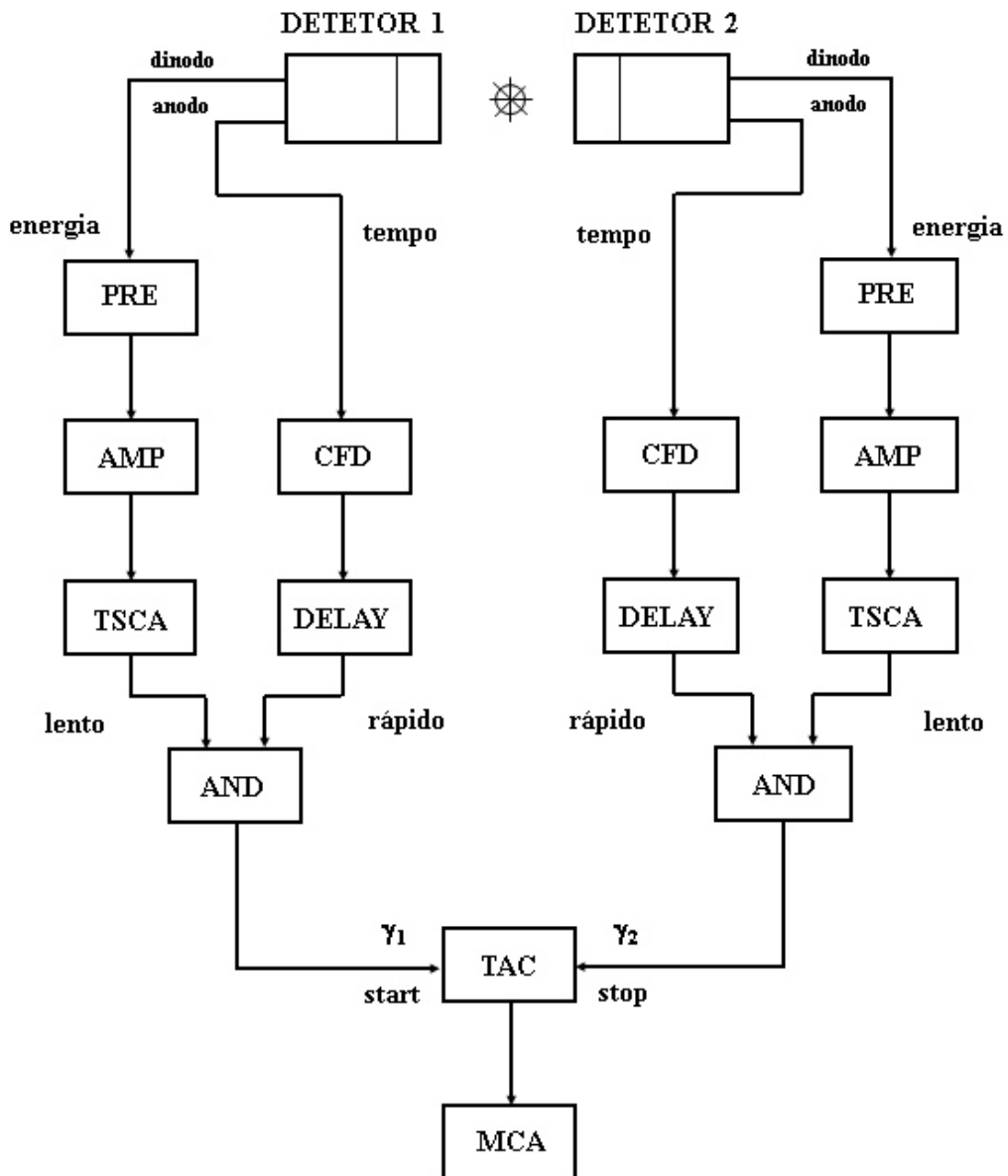


Figura 3.1 – Configuração “lento-rápido” do espectrômetro CAP.

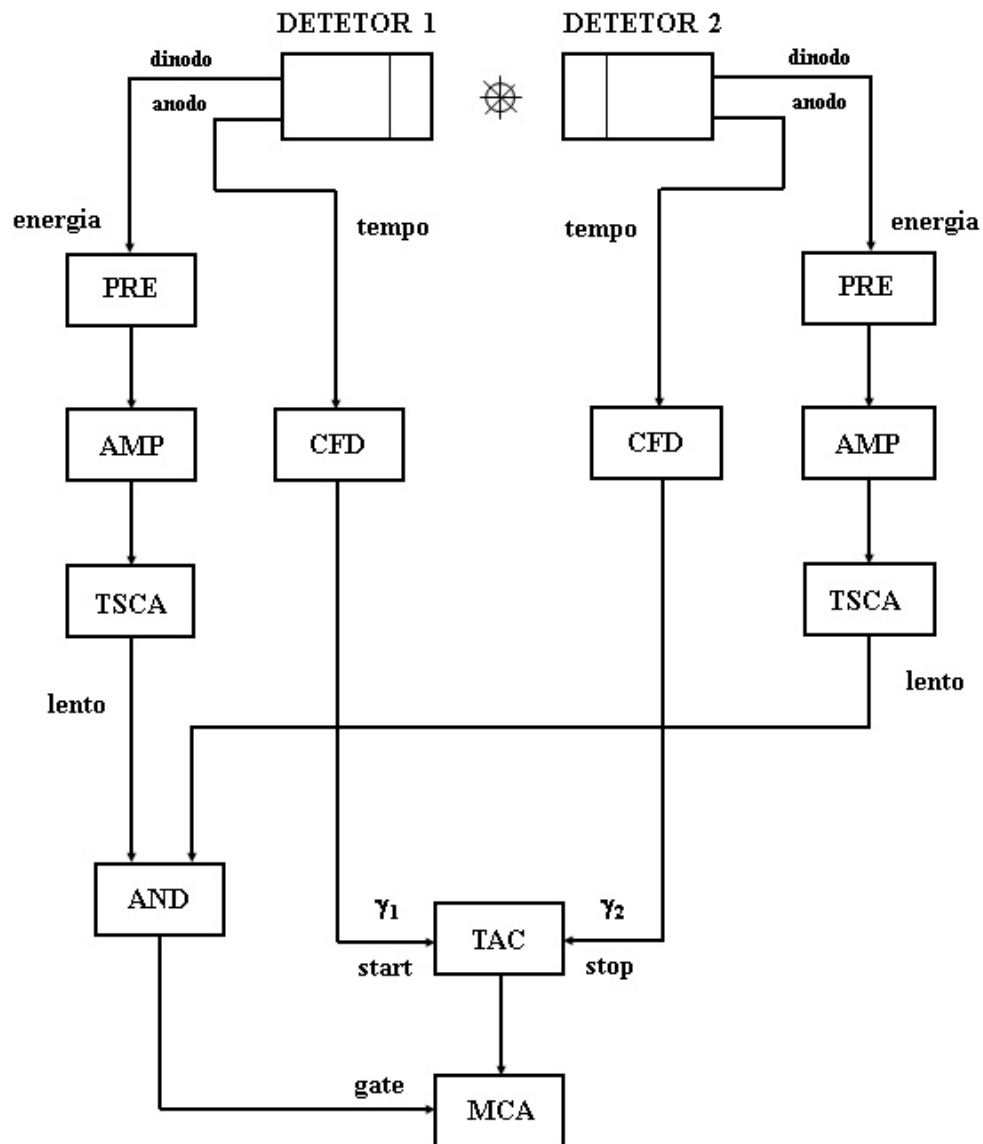
Antes de efetuar a coincidência é necessário atrasar em aproximadamente 2,5  $\mu\text{s}$  o sinal do ramo rápido (DELAY) para compensar o tempo de processamento do TSCA. O pulso resultante desta coincidência é caracterizado por ser um registro fiel do instante da emissão da radiação e, simultaneamente, da sua energia. Este pulso é denominado “start” para  $\gamma_1$  e “stop” para  $\gamma_2$ . O conversor de tempo em Amplitude (TAC) produz na saída um pulso analógico cuja altura é proporcional ao tempo entre “start” e “stop”. A saída do TAC é direcionada para um analisador multicanal (MCA) que gera um espectro do número de coincidências entre  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$  dentro de uma faixa de tempo  $T_c$  definida pelo valor da meia-vida do estado intermediário do núcleo ( $T_{1/2}$ ), onde  $T_c > 10 T_{1/2}$ .

Na configuração “lento-rápido” a validação do sinal rápido é feita pelo sinal lento antes do TAC. O sistema “lento-rápido” apresenta como vantagem o fato de só serem aplicados no TAC sinais do ramo rápido que foram previamente validados pelo ramo lento, e que correspondem às radiações da cascata. Deste modo, o TAC opera a uma taxa relativamente baixa, proporcionando um número reduzido de coincidências acidentais (coincidências entre transições gama provenientes de núcleos distintos).

### 3.2.2 Configuração “Rápido-Lento”

No espectrômetro CAP de configuração “rápido-lento” [16, 20], todos os sinais provenientes do anodo (rápido) das válvulas fotomultiplicadoras são aplicados diretamente nas entradas “start” e “stop” do conversor de tempo em amplitude. Os ramos lentos, da mesma forma que na configuração “lento-rápido”, são constituídos por um pré-amplificador de pulsos, um amplificador de pulsos, e por um analisador monocal com marca de tempo. Os sinais provenientes de cada ramo lento, e correspondentes a  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$ , são aplicados a uma unidade lógica AND. O sinal de saída da unidade AND é levado para a entrada “gate” do analisador multicanal, que valida o sinal convertido pelo TAC.

O sistema “rápido-lento”, que pode ser visto na figura 3.2, apresenta como vantagem a utilização de um menor número de unidades eletrônicas (por exemplo: DELAY, AND) no arranjo do espectrômetro CAP. Todos os sinais provenientes do anodo das válvulas fotomultiplicadoras são aplicados diretamente nas entradas “start” e “stop” do TAC. Entretanto, o TAC trabalha com uma taxa elevada de conversões, resultando em uma diminuição da eficiência do sistema e um aumento da taxa de coincidências acidentais.



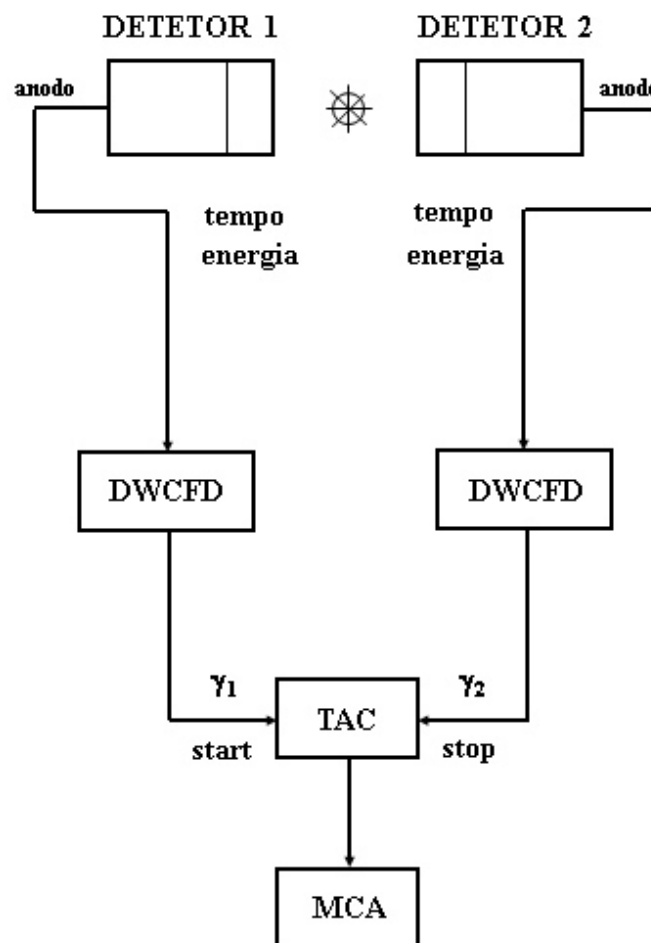
*Figura 3.2 – Configuração “rápido-lento” do espectrômetro CAP.*

### 3.2.3 Configuração “Rápido-Rápido”

No espectrômetro CAP de configuração “rápido-rápido” [21, 22] a informação de tempo e energia é obtida simultaneamente por um discriminador de fração constante de janela dupla (“Double-Window Constant Fraction Discriminator” - DWCFD).

O DWCFD realiza tanto a marca de tempo quanto a seleção de energia para as radiações  $\gamma_1$  (“start”) ou  $\gamma_2$  (“stop”) a partir do sinal de rápido do detector. Os sinais de saída de cada DWCFD (“start” e “stop”) são direcionados ao TAC e o resultado da conversão é aplicado no MCA sem controle de “gate”.

O arranjo “rápido-rápido” (figura 3.3) apresenta como vantagem o número reduzido de unidades, o que o torna um espectrômetro muito compacto. Entretanto, a resolução em energia da componente rápida de cintilação do detector é pior que a da componente lenta (em torno de fator 3), dificultando a seleção das energias dos raios gama. Dessa forma, o sistema “rápido-rápido” não é adequado para núcleos com energias das emissões de  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$  muito próximas.

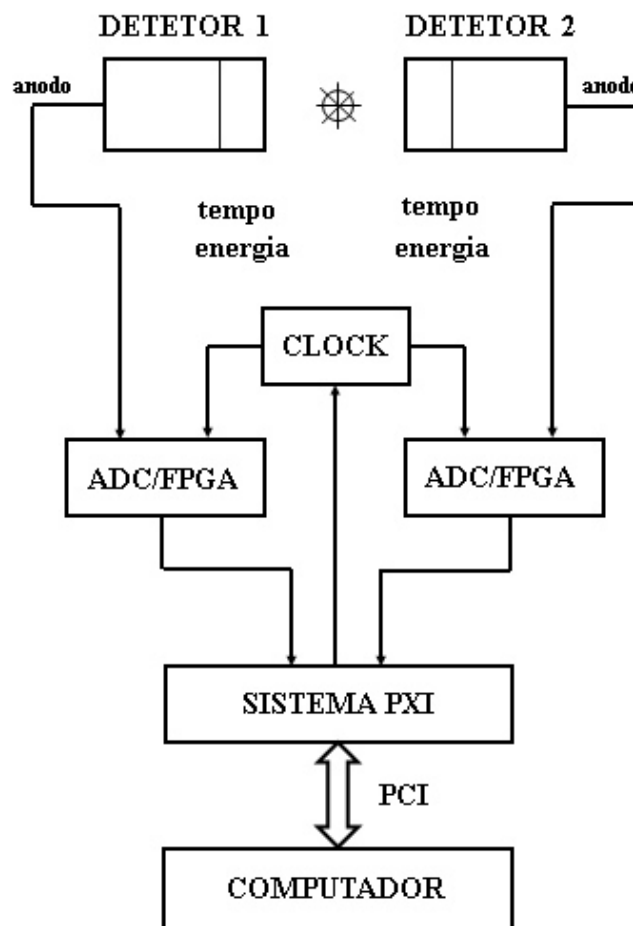


*Figura 3.3 – Configuração “rápido-rápido” do espectrômetro CAP.*

### 3.2.4 Configuração “Digital”

O espectrômetro CAP de configuração “digital” [23, 24] contém um módulo digitalizador de sinais de alta velocidade (com taxa de conversão maior que 1 GS/s) conectado ao anodo de cada detector (figura 3.4). Os digitalizadores contém um circuito FPGA (Field Programmable Gate Array) destinado ao pré-processamento do sinal

digitalizado. Cada digitalizador está conectado a um sistema modular do tipo PXI (PCI eXtensions for Instrumentation), sincronizado e controlado por um computador “mestre”. Todos os sinais digitalizados possuem informação de tempo e energia das radiações detectadas. As janelas de energia, as referências de tempo por fração constante, os atrasos, e as seleções das coincidências entre os pulsos digitalizados são feitas por meio de “software”. A grande vantagem deste espectrômetro é sua estrutura compacta embora utilize um algoritmo complexo. Por outro lado, a desvantagem deste arranjo é o tamanho de cada palavra de dado por evento (8 bytes – 400 bytes), de acordo com a referência [3].

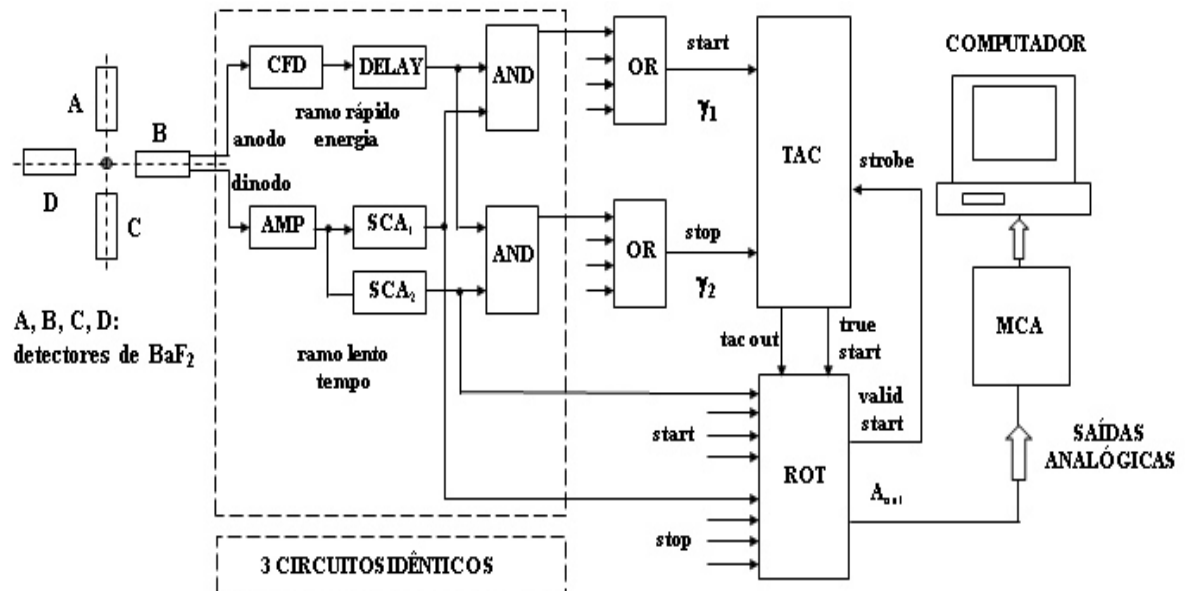


*Figura 3.4 – Configuração “digital” do espectrômetro CAP.*

### 3.3 Espectrômetro de CAP de Quatro Detectores

O LIH do CRPq do IPEN possui desde meados do ano de 2000 um espectrômetro no arranjo “lento-rápido” composto por quatro detectores. Este

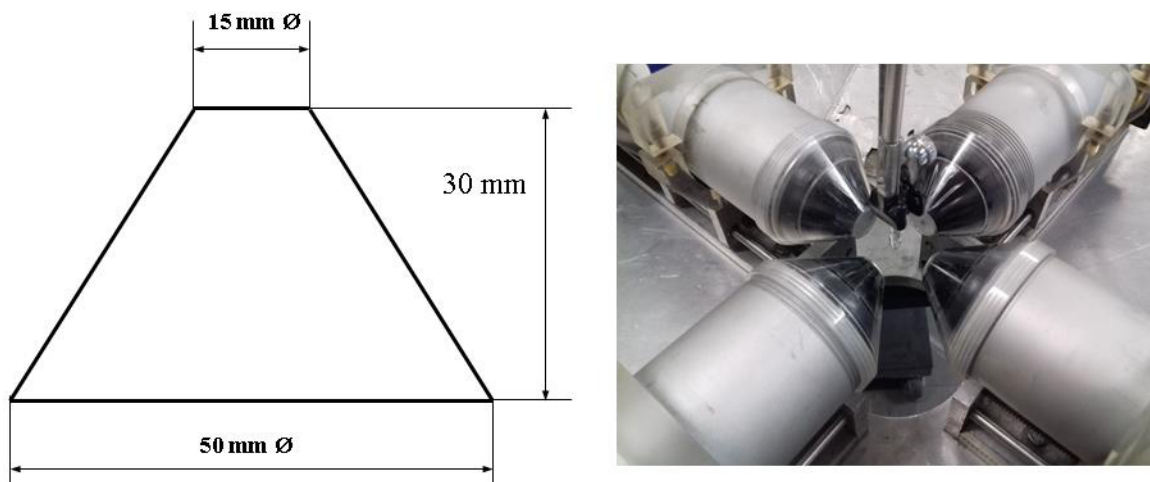
espectrômetro, apresentado esquematicamente na figura 3.5, possibilita a aquisição simultânea de doze espectros de coincidências gama-gama. Este sistema foi projetado para funcionar exclusivamente com o Analisador Multicanal (MCA) ADCAM modelo 920, que possui 16 entradas analógicas multiplexadas, e com o programa MAESTRO II, ambos da Ortec.



**Figura 3.5** – Esquema simplificado do espectrômetro de CAP de quatro detectores do Laboratório de Interações Hiperfinas (LIH) do IPEN.

Os detectores A, B C e D são dispostos em uma geometria planar, formando ângulos de  $90^\circ$  entre si. São constituídos por cristais de  $BaF_2$  (cuja geometria pode ser vista na figura 3.6) acoplados a fotomultiplicadoras Philips modelo XP2020. O sinal de energia (lento) é retirado do dinodo das válvulas fotomultiplicadoras e amplificado. Os analisadores monocanal com marca de tempo  $SCA_1$  e  $SCA_2$  (Ortec modelo 551) selecionam em energia as radiações  $\gamma_1$  (“start”) e  $\gamma_2$  (“stop”). Deste modo cada detector pode fornecer um sinal de “start” e um de “stop”. O sinal do anodo de cada detector é aplicado a um discriminador de fração constante que gera um pulso correspondente ao instante da detecção do raio gama (marca de tempo). Este pulso de tempo (rápido) é atrasado para compensar o tempo necessário ao processamento do sinal por cada SCA. Posteriormente, efetua-se uma coincidência entre os sinais lento e rápido de forma a garantir que a radiação gama tenha sido emitida pelo mesmo núcleo. Os sinais em coincidência são misturados e aplicados no TAC.

Na entrada do TAC não há qualquer informação sobre o detector que originou um evento de coincidência. Essa informação é obtida através de um módulo de endereçamento denominado roteador (do inglês “router”) que, não sendo disponível comercialmente, foi projetado e construído nos laboratórios do CRPq [4]. O roteador recebe todos os sinais misturados de “start” e “stop”, elimina possíveis coincidências inválidas e determina o par de detectores que originou a coincidência válida entre as transições gama. Uma vez validado o evento, o roteador libera o sinal do TAC para uma das 12 (de um total de 16) entradas multiplexadas do MCA, de acordo com a combinação dos detectores que originaram a coincidência entre as radiações gama. A conversão do sinal analógico em digital é efetuada pelo ADC interno do MCA e seu resultado é armazenado em uma determinada região de memória (segmento). Cada segmento da memória correspondente a uma determinada entrada do MCA. Os dados armazenados na memória geram 12 espectros de coincidências gama-gama por meio de um microcomputador do tipo PC conectado ao MCA.



**Figura 3.6** – Geometria dos detectores de  $BaF_2$  (lado esquerdo) e disposição planar dos quatro conjuntos de detector-fotomultiplicadora (lado direito).

Este sistema de aquisição permite apenas a geração de até 16 espectros de coincidências  $\gamma$ - $\gamma$  e deve ser utilizado em conjunto com o programa Maestro for Windows, da Ortec. A expansão para seis detectores, portanto, não é possível nesta estrutura.



### 3.4 Desenvolvimento do Espectrômetro de CAP de Seis Detectores

#### 3.4.1 Introdução

O interesse em desenvolver um novo espectrômetro partiu inicialmente da necessidade de atender à crescente demanda de novos experimentos por parte dos pesquisadores e estudantes do grupo do LIH. Dessa forma optou-se por um projeto que mostrasse desempenho satisfatório na utilização de núcleos de prova com meias-vidas curtas (principalmente o  $^{140}\text{La}$ ) com um sistema de aquisição modular e versátil e um programa de controle e de coleta de dados desenvolvido no próprio LIH.

Na época deste projeto o sistema digital de espectrometria não estava ainda totalmente consolidado. Dessa forma, foi feita a escolha pelo tradicional arranjo “lento-rápido” composto por seis detectores de  $\text{BaF}_2$ . Os ramos lento e rápido possuem praticamente a mesma composição que o espectrômetro de quatro detectores. A diferença está no sistema de aquisição, implantando-se uma estrutura prática e mais eficiente.

#### 3.4.2 Detectores

Os detectores utilizados no espectrômetro são cristais de  $\text{BaF}_2$  (iguais aos apresentados na figura 3.6), que apresentam uma componente rápida de cintilação da luz muito superior aos de detectores de  $\text{NaI}(\text{Tl})$ , chegando a ser comparáveis aos detectores plásticos [25]. A resolução em tempo para radiações  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$  detectadas simultaneamente por um detector de  $\text{BaF}_2$  é de cerca de 650 ps para emissões gama na faixa de 500 keV e 1480 ps para emissões na faixa de 70 a 80 KeV.

Os detectores de  $\text{BaF}_2$  foram acoplados aos tubos fotomultiplicadores Philips XP2020/Q. A alimentação da válvula fotomultiplicadora é feita por uma fonte de alta tensão (~ 1900 V) Ortec modelo 456 através de um circuito divisor de tensão de “rápida resposta”, indicado para aplicações de baixa intensidade de componente luminosa. Este divisor de tensão (15 unidades) também foi construído no LIH utilizando-se o circuito eletrônico descrito na referência [26]. O circuito completo do divisor contendo as razões de tensões nos dinodos pode ser visto na figura 3.7. Os sinais de tempo e energia são apresentados na figura 3.8. O pulso de tempo (“rápido”) é obtido no anodo (pino 10), enquanto que o pulso de energia (“lento”) é adquirido no nono dinodo (pino 7). A melhor resolução e máxima amplitude dos pulsos de tempo e energia são obtidas por meio dos potenciômetros P1 e P2, variando-se os potenciais na grade G1 e no segundo dinodo da

válvula fotomultiplicadora. Cada conjunto foi inserido em um tubo cilíndrico de alumínio e protegido por uma tampa plástica.

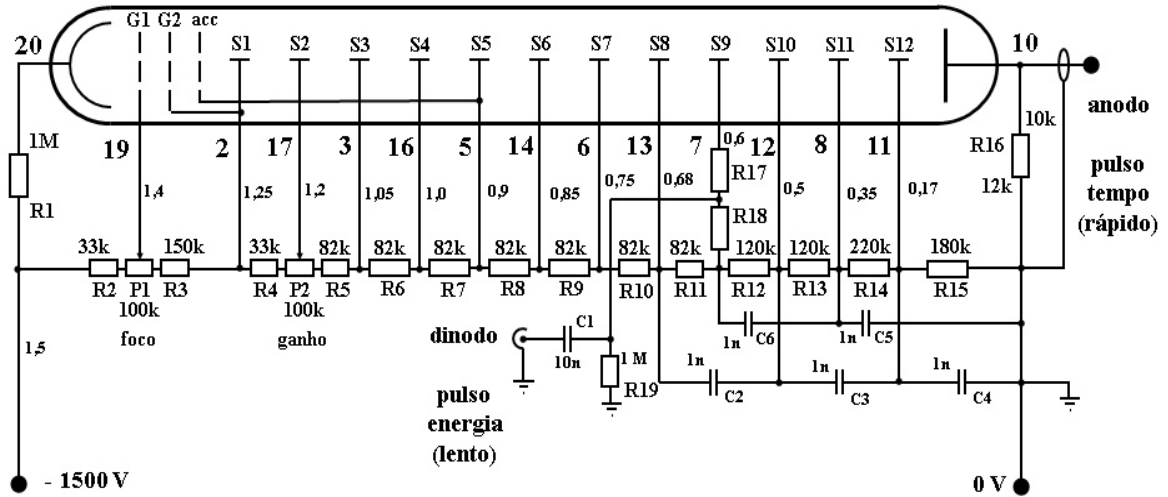


Figura 3.7 – Circuito dos divisores de tensão das válvulas fotomultiplicadoras Philips XP2020/Q.

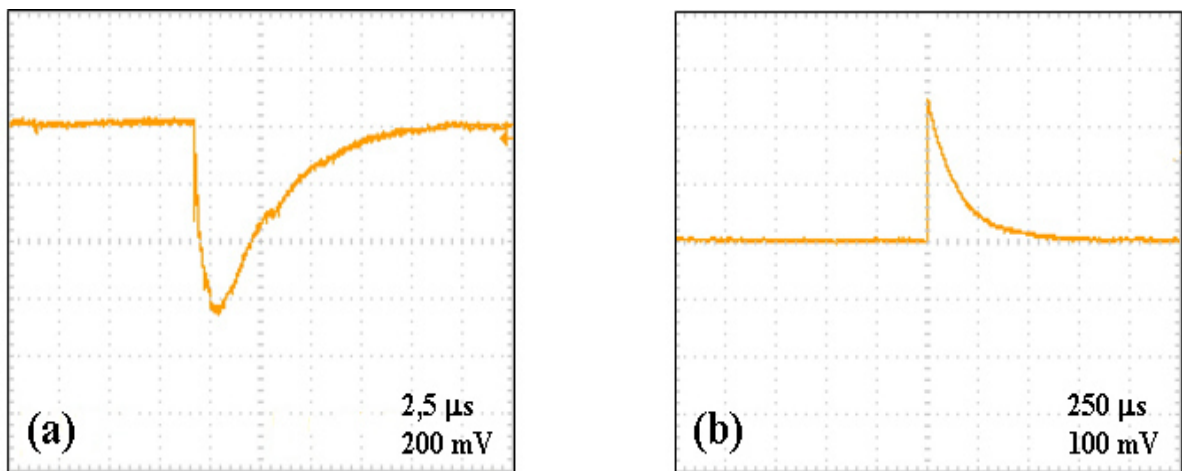


Figura 3.8 – Sinal de tempo do anodo (a) e de energia do nono dinodo (b) do tubo fotomultiplicador Philips XP2020/Q.

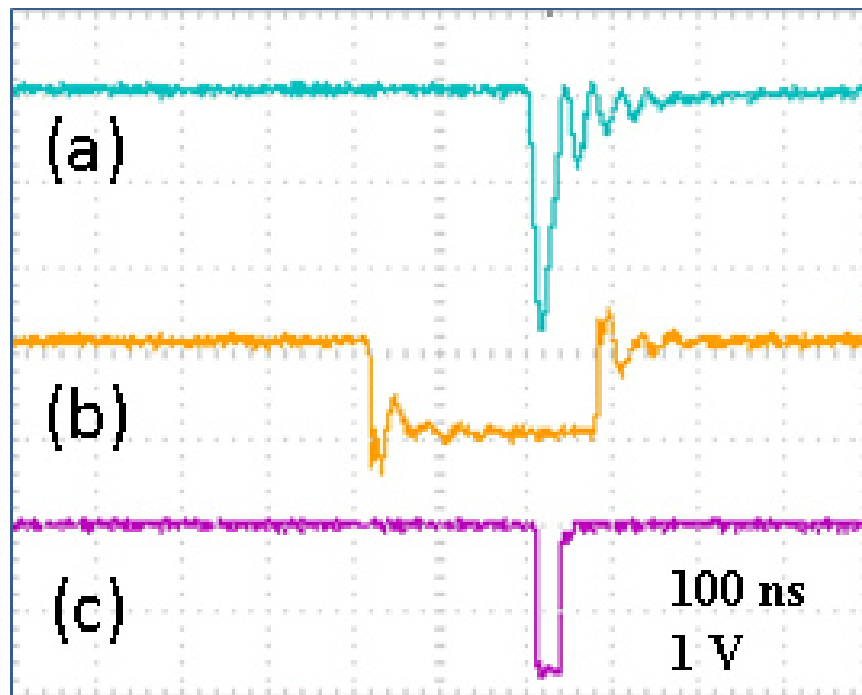
### 3.4.3 Descrição Geral do Espectrômetro de Seis Detectores

O diagrama em blocos do espectrômetro de CAP “lento-rápido” construído pode ser observado na figura 3.9. Os seis detectores de BaF<sub>2</sub> (A-F) são fixados em cada



convertido pelo ADC que gera uma informação digital de 10 bits (dados) para cada coincidência válida entre  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$ .

A validação das coincidências  $\gamma$ - $\gamma$  é feita pelo roteador (ROUTER) a partir dos sinais lógicos de “start - stop” dos SCAs e “valid start - valid stop” do TAC. Se a coincidência for válida, o roteador emite os pulsos de “strobe” e “enable” para que o sinal “tac out” seja liberado e convertido pelo ADC. Uma vez realizada a conversão, o roteador gera outros 5 bits de endereço, que representam a combinação entre os detectores. A informação de 15 bits (10 para os dados e 5 para os endereços) é direcionada para uma placa de entradas e saídas digitais (I/O BOARD), sincronizada com o roteador, onde é armazenada em um disco rígido de um computador do tipo PC.

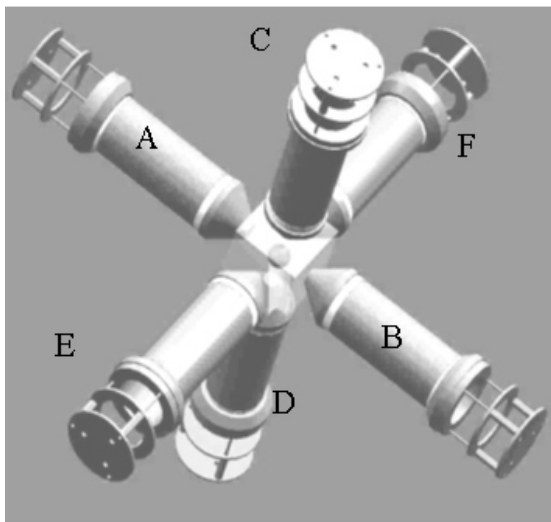


**Figura 3.10** – Conjunto típico de sinais de uma unidade de coincidências “lento-rápida”:

(a) sinal NIM negativo com marca de tempo proveniente do ramo rápido; (b) sinal do ramo lento proveniente do TSCA depois de alargado; (c) coincidência entre os dois sinais.

A geração dos espectros de coincidências  $\gamma$ - $\gamma$  é feita por um programa de aquisição criado no ambiente gráfico de desenvolvimento de sistemas de instrumentação virtual denominado LabVIEW, da National Instruments. Este programa permite visualização em tempo real de 30 espectros de coincidências, sendo 24 espectros para

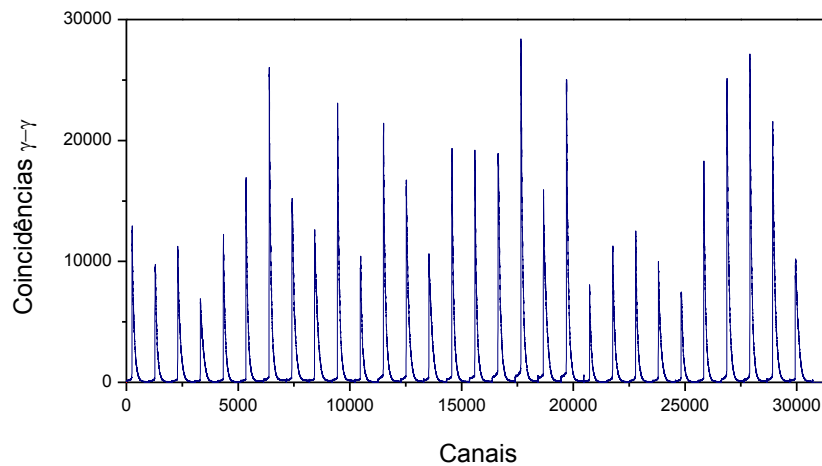
ângulos de 90° e 6 espectros para ângulos de 180° entre os detectores A-F. As combinações entre os detectores são apresentadas na figura 3.11. Combinações de “start-stop” do mesmo núcleo são consideradas “inválidas” (ex: “A-a”) e não devem ser registradas. O mesmo ocorre para combinações de mais de um “start” ou mais de um “stop”. Combinações de “start-stop” de núcleos diferentes são consideradas coincidências acidentais. Um espectro com as trinta combinações de coincidências entre  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$  pode ser observado na figura 3.12.



ESPECTRO	COMBINAÇÃO	ÂNGULO
1	Ab	180°
2	Ac	90°
3	Ad	90°
4	Ae	90°
5	Af	90°
6	Ba	180°
7	Bc	90°
8	Bd	90°
9	Be	90°
10	Bf	90°
11	Ca	90°
12	Cb	90°
13	Cd	180°
14	Ce	90°
15	Cf	90°
16	Da	90°
17	Db	90°
18	Dc	180°
19	De	90°
20	Df	90°
21	Ea	90°
22	Eb	90°
23	Ec	90°
24	Ed	90°
25	Ef	180°
26	Fa	90°
27	Fb	90°
28	Fc	90°
29	Fd	90°
30	Fe	180°

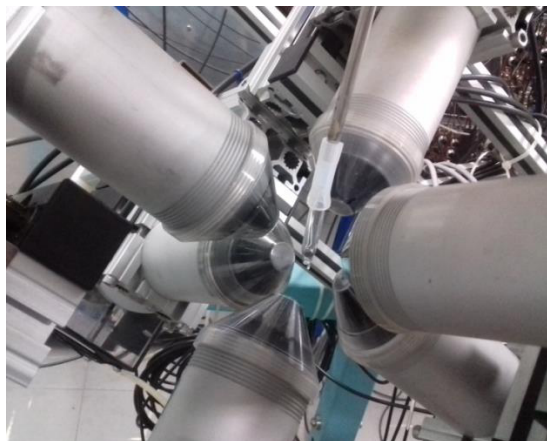
Nm { N = start  
m = stop

**Figura 3.11** – Disposição dos detectores, os espectros correspondentes, suas combinações e os ângulos entre detectores. Em letra maiúscula, detector como “start”. Em letra minúscula, detector funcionando como “stop”.



**Figura 3.12** – Representação dos trinta espectros de coincidência entre  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$ .

A estrutura mecânica do espectrômetro incluindo a mesa sob rodízio que sustenta a configuração com disposição cúbica dos detectores (figura 3.13) permite a introdução de um criostato e de um mini-forno (descrito na seção 3.4.7.1) para que as medições possam ser realizadas em uma faixa de temperatura entre 4 K e 1373 K. O espectrômetro de seis detectores concluído pode ser observado na figura 3.14, com a estrutura cúbica contendo os seis detectores em primeiro plano, a eletrônica do lado direito e as unidades de “DELAY” ao fundo.



**Figura 3.13** – Detalhe do arranjo cúbico dos seis detectores de  $BaF_2$  com amostra posicionada no ponto central da estrutura.



*Figura 3.14 – Vista geral do espectrômetro de CAP constituído por seis detectores instalado no LIH.*

#### **3.4.4 Sistema de Aquisição**

O sistema de aquisição de dados do espectrômetro de seis detectores utiliza uma configuração peculiar em comparação aos demais espectrômetros referenciados neste trabalho. O MCA convencional foi substituído por um versátil arranjo constituído por um TAC Canberra 2145, um ADC Canberra 8715, uma placa de I/O National Instruments NI6534 e um roteador (circuito de validação, seleção, e endereçamento de coincidências). Com exceção do roteador, desenvolvido no LIH, é possível substituir os demais módulos por outros similares de forma quase direta, evitando que o sistema se torne inoperante ou obsoleto. O esquema em blocos do sistema de aquisição do espectrômetro pode ser observado na figura 3.15.

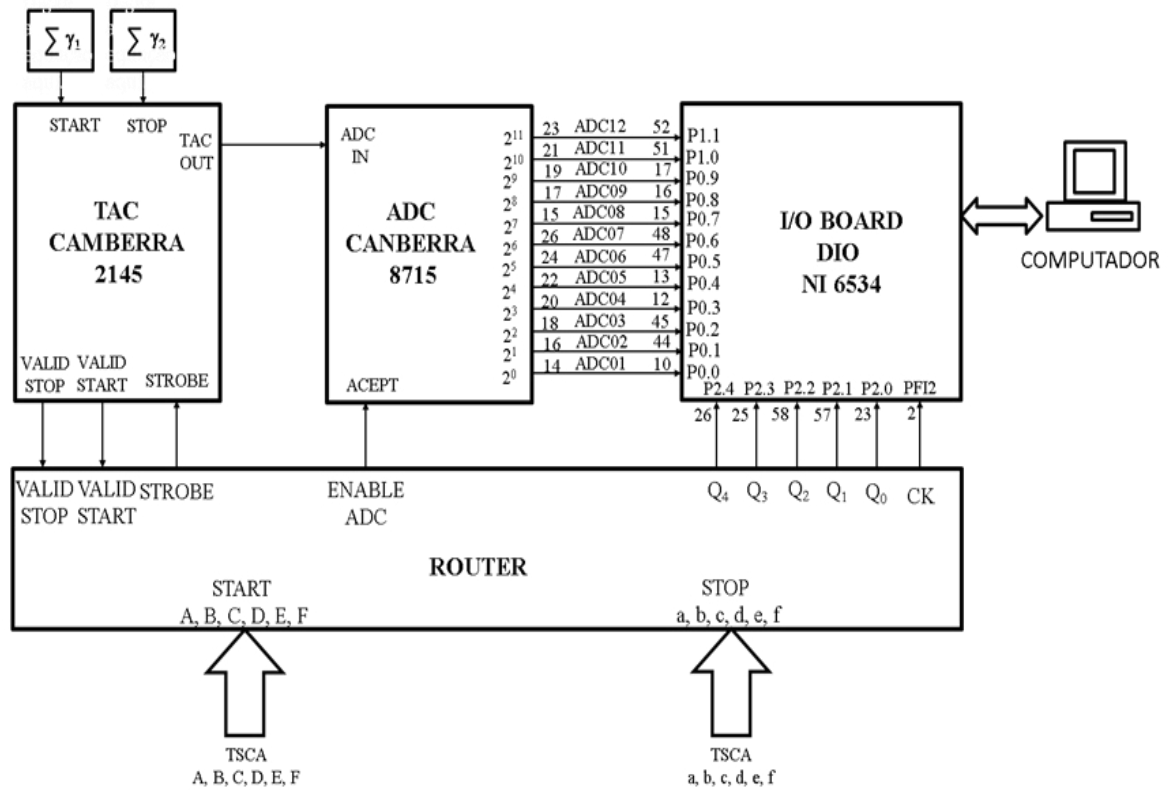


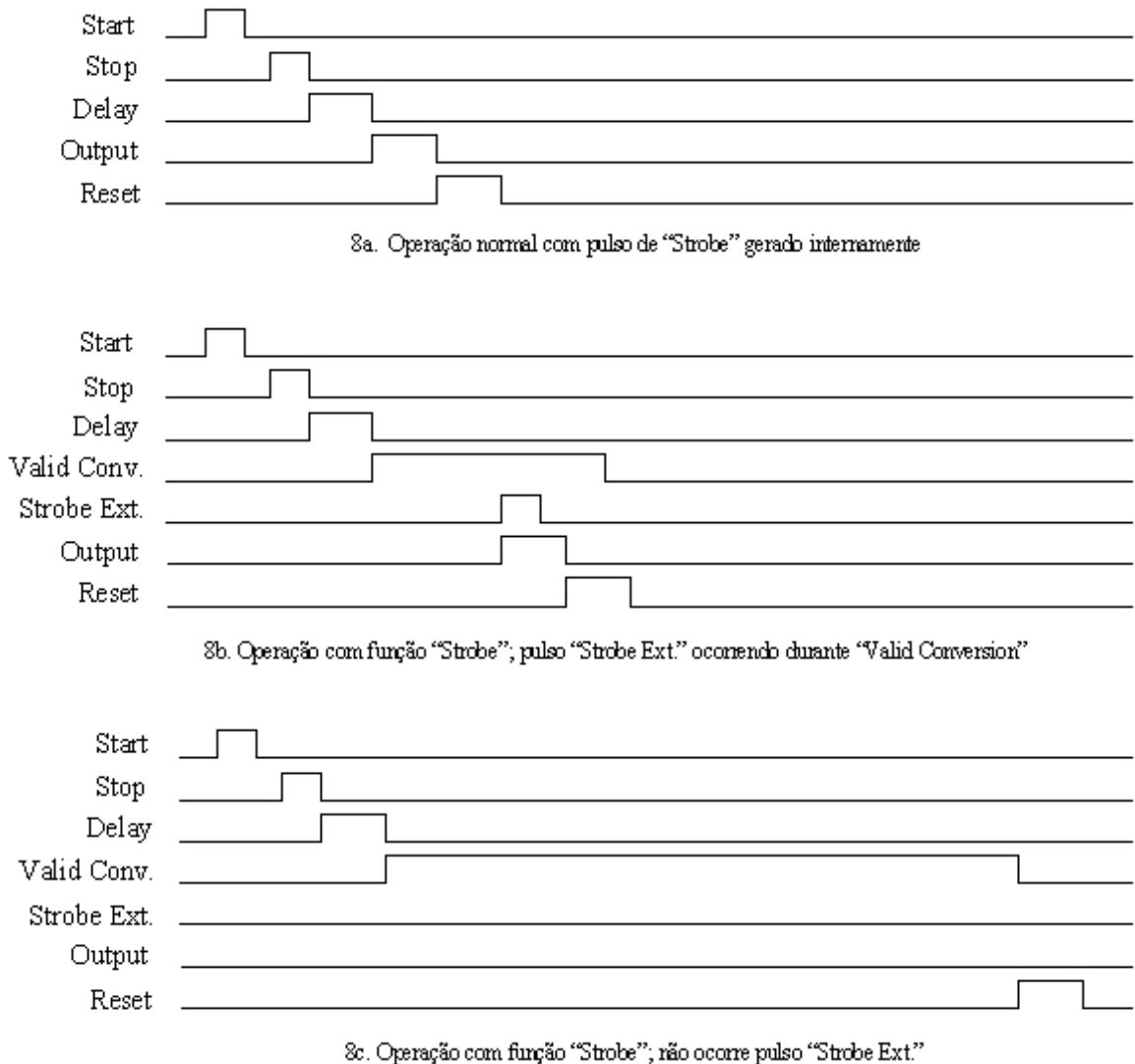
Figura 3.15 – Diagrama em blocos do sistema de aquisição do espectrômetro de CAP.

O TAC utilizado neste esquema é o modelo 2145 [27] da Canberra, que gera em sua saída um pulso retangular de 500 ns e amplitude proporcional ao tempo entre “start” e “stop” (máximo de +10 V). O TAC recebe os sinais e “start” e “stop” provenientes de todos os detectores. Entretanto, só existirá uma saída “tac out” quando a coincidência entre detectores for validada pelo roteador, através do sinal “strobe”. O “strobe” deve ser aplicado no TAC durante o tempo de “valid conversion”, ajustado em 2,0  $\mu$ s. Na ausência de um “strobe” depois de 2,0  $\mu$ s da chegada de um par “start-stop”, o TAC é reiniciado e a saída de pulso é inibida conforme pode ser observado no diagrama de tempos da figura 3.16.

Para converter o pulso do TAC, foi empregado o ADC modelo 8715 da Canberra [28] do tipo “aproximações sucessivas” com tempo fixo de conversão de 800ns. Este ADC, além de ser indicado para altas taxas de contagens, apresenta linearidades integral e diferencial compatíveis com os ADCs Wilkinson [29]. O ADC converte o sinal “tac out” em um sinal digital de 12 bits que permanece retido em suas 12 saídas (ADC00 – ADC11). Quando o roteador emitir um sinal de “clock” (CK), a placa de I/O captura



somente os 10 bits menos significativos do sinal proveniente do ADC. Feita esta captura, o roteador emite o sinal “enable” informando ao ADC que a conversão foi aceita pela placa de I/O. Nesse momento o ADC é reinicializado e irá aguardar um novo “tac out”.



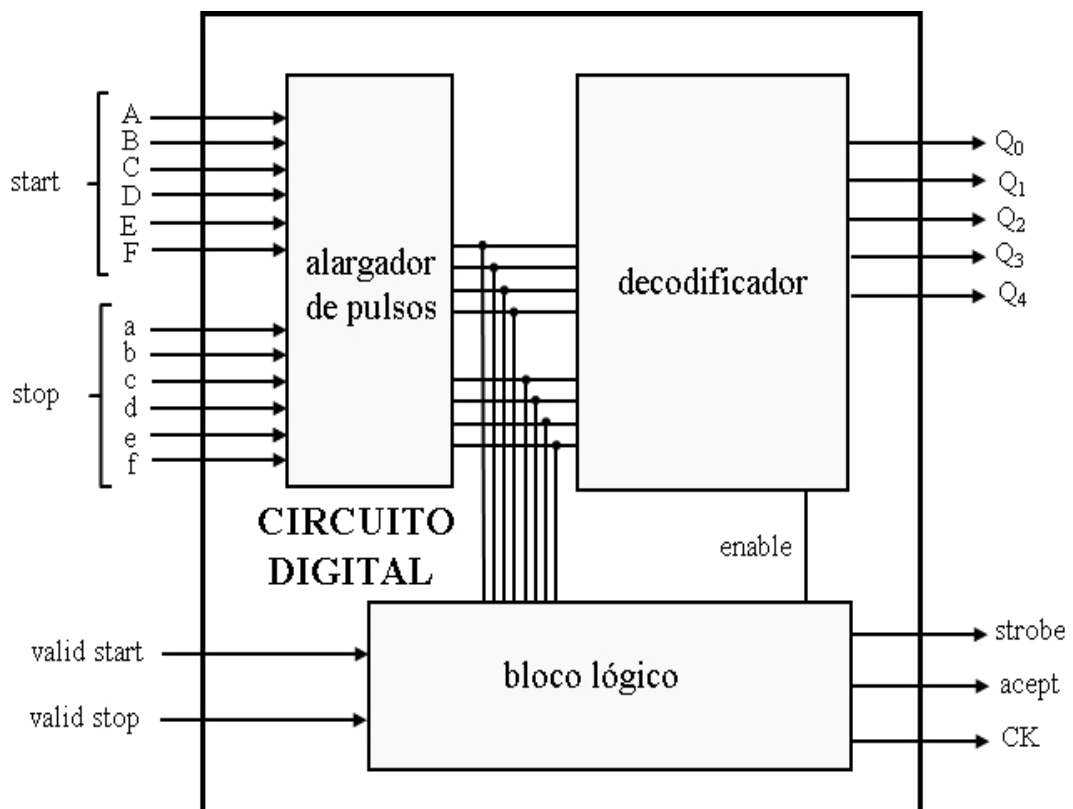
**Figura 3.16** – Diagrama de tempos do TAC Canberra modelo 2145.

A placa de I/O NI6534 possui 32 pinos configuráveis como entrada ou saída, lógica TTL e taxa máxima de transferência de 20 MHz. Um bloco de conexões SCB-68 realiza a interface entre o sistema de aquisição e o computador. Esta placa de I/O está configurada para operar no modo “Handshaking I/O”, isto é, aguarda um sinal de “request” (REQ) para realizar a aquisição. Quando o roteador emite o sinal “CK”, conforme descrito

anteriormente, a placa de I/O captura os primeiros 10 bits (do total de 12) de dados gerados pelo ADC. Os 10 bits de dados do ADC em conjunto com os 5 bits do roteador definem uma região de 32768 canais na memória do sistema de aquisição. Essa região é dividida em 32 segmentos de 1024 canais, onde cada segmento corresponde a uma combinação entre os detectores. Os dois últimos segmentos não são utilizados.

### 3.4.5 Roteador

O roteador é um circuito lógico responsável por identificar a validade das coincidências, a combinação entre os detectores e gerar os sinais de controle no sistema de aquisição. O esquema em blocos simplificado do roteador é apresentado na figura 3.17. O roteador é constituído basicamente por três circuitos: “alargador de pulsos”, “decodificador” e “bloco lógico”.



**Figura 3.17** – Diagrama em blocos do roteador do sistema de aquisição do espectrômetro.

O alargador de pulsos (figura 3.18) recebe os pulsos padrão lógico Transistor-Transistor Logic (TTL) dos TSCAs e utiliza multivibradores monoestáveis duplos 74HC123 para “alargar” os pulsos de “start” (A, B, C, D, E, F) e “stop” (a, b, c, d, e, f) em 1,8  $\mu$ s. Este tempo corresponde a aproximadamente 10 meias-vidas do estado intermediário do  $^{111}\text{In}$ , núcleo com maior valor dentre os utilizados. Este valor é suficiente para não haver “corte” na região final dos espectros. Os sinais de saída são: “CD\_1” (ativo em nível lógico “1”) e “ST\_1” (ativo em nível lógico “0”).

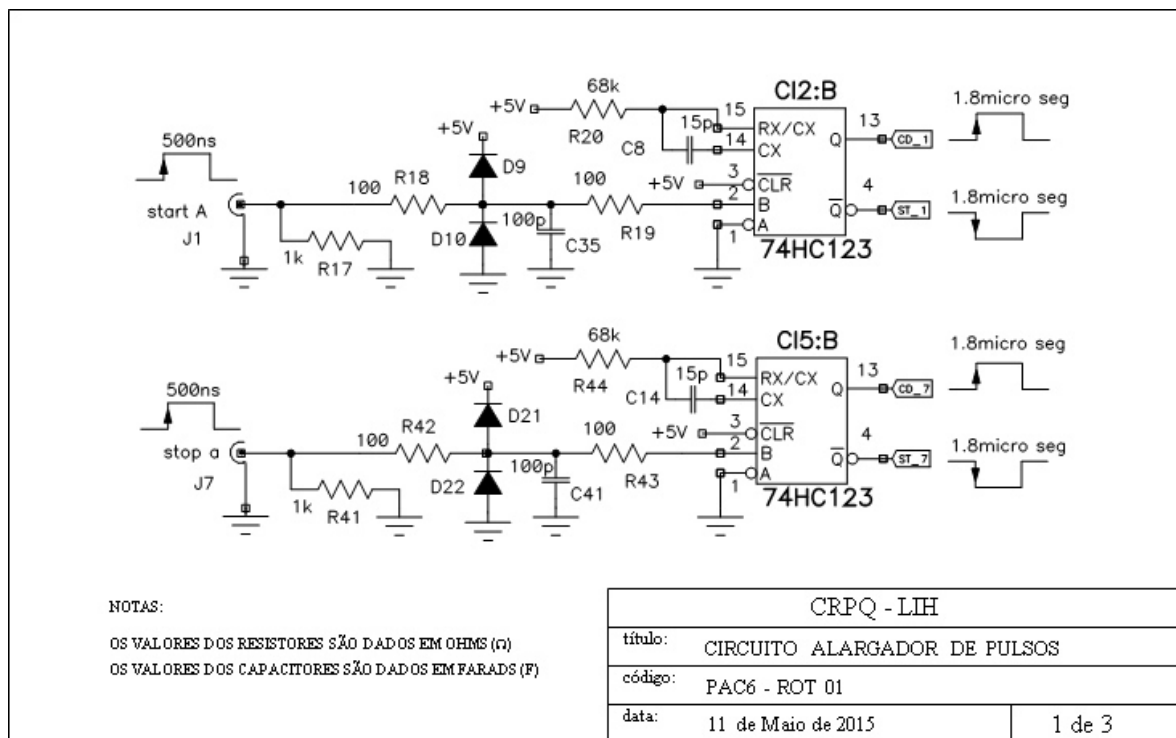


Figura 3.18 – Esquema básico do circuito alargador de pulsos.

O circuito lógico, visto na figura 3.19, realiza uma coincidência (CI 14:A) entre os sinais “start” - “stop” (provenientes dos TSCAs) e “valid start” - “valid stop” (provenientes do TAC). Ao ocorrer uma coincidência entre todos estes sinais, o circuito gera o sinal de amostragem (“AMOSTRA”) e fixa um atraso interno (CI 9:A) para compensar o tempo gasto na decodificação (cerca de 500 ns). Os CI 14:B e CI 14:A emitem os sinais válidos sequenciais “strobe”, “accept” e “clock” (ou “CK”) para o TAC, ADC e placa de I/O, respectivamente. O led1, ativado por CI 9:B, indica a taxa de coincidências válidas.

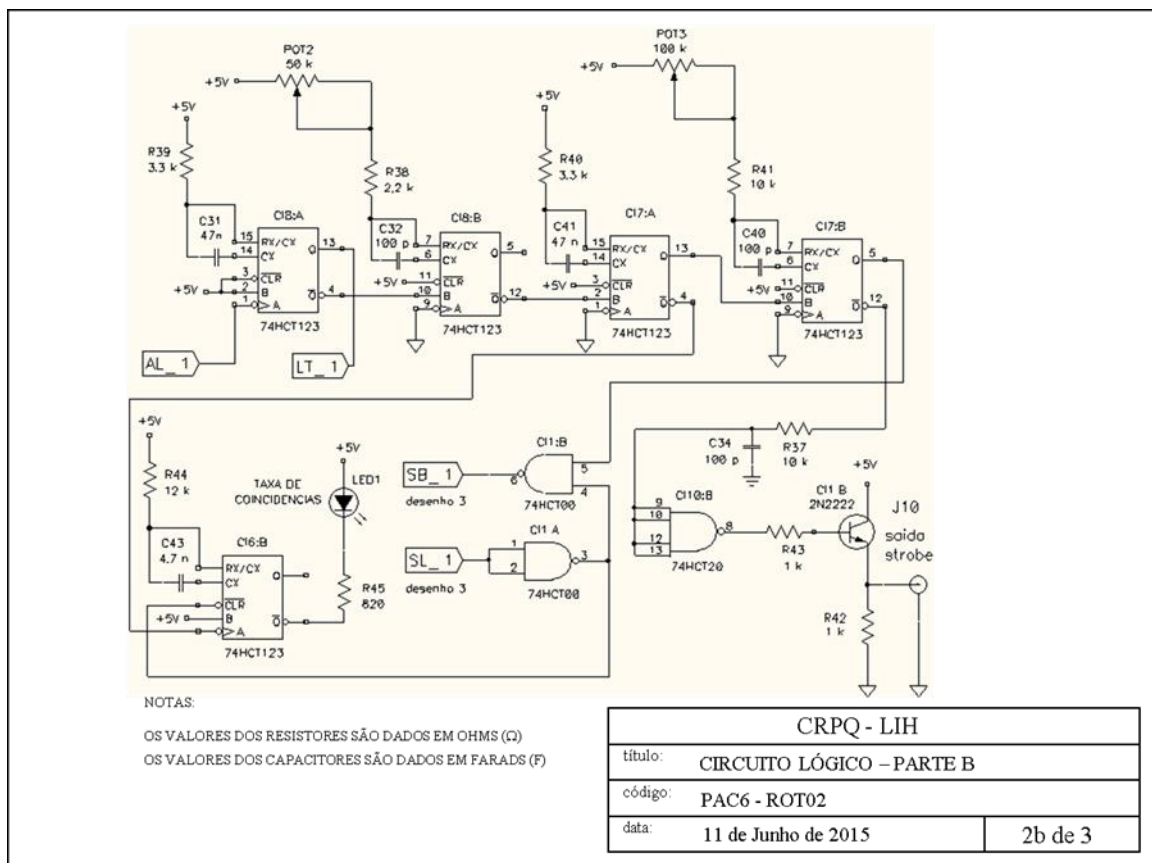
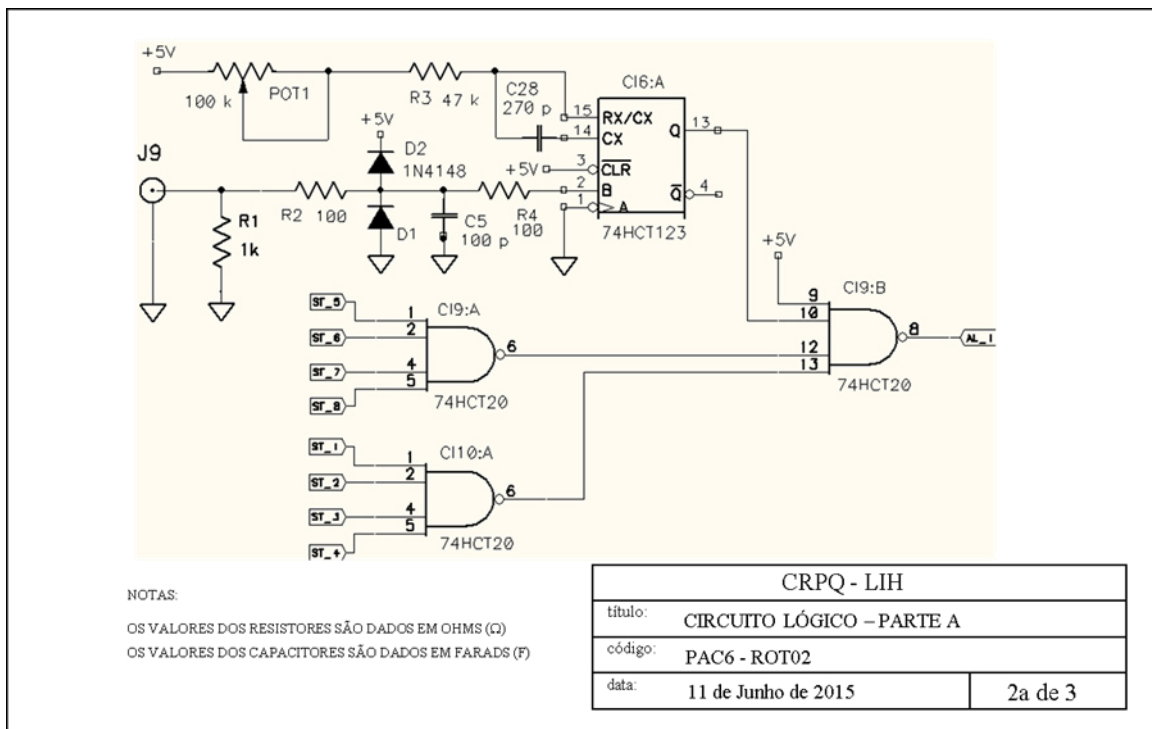


Figura 3.19 – Esquema básico do circuito lógico.

O decodificador (figura 3.20) determina o par de detectores que originou “start” e “stop” e verifica as combinações possíveis (de um total de 30) entre estes sinais. Este circuito é constituído por dois “latches” 74HCT138 (CI15 e CI16) que realizam uma amostragem em 200 ns dos sinais alargados de “start” e “stop”.

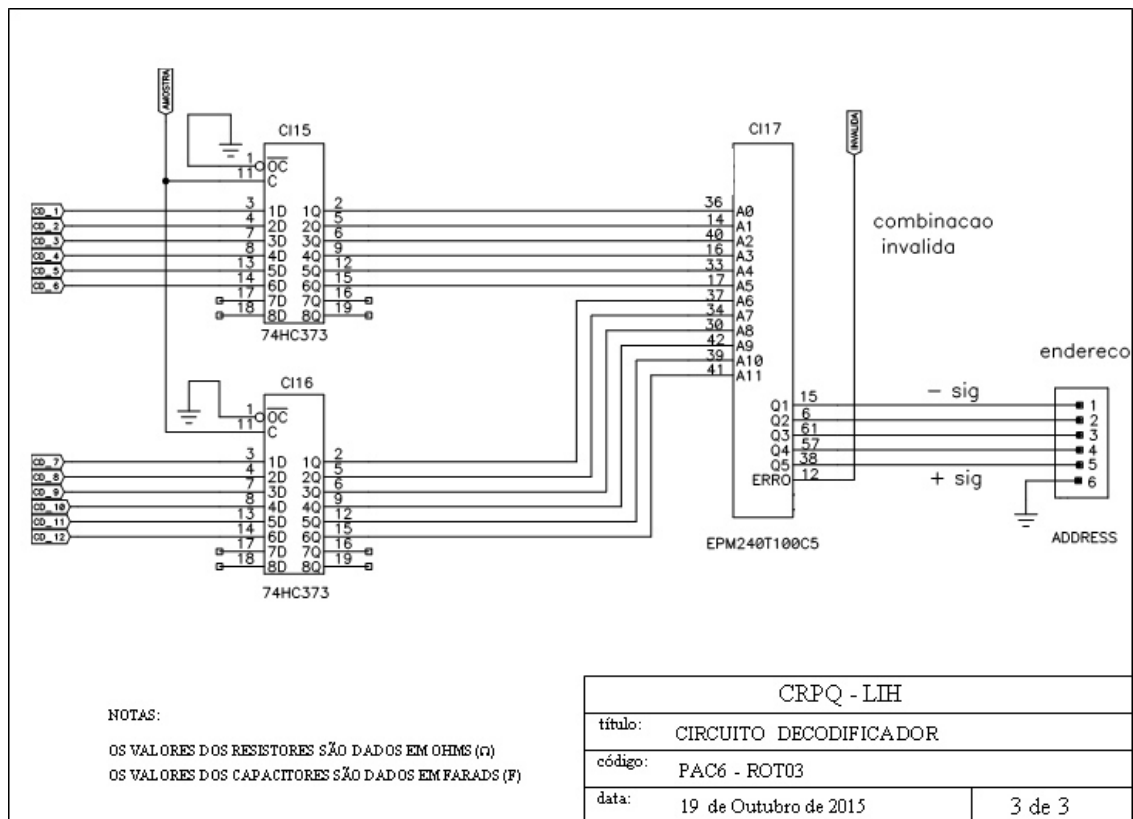


Figura 3.20 – Esquema básico do circuito decodificador.

A verificação entre as coincidências entre os sinais de “start” e “stop” é feita por um Dispositivo de Lógica Programável Complexo (CPLD) Altera EPM240T100C6 (CI17), que funciona como um decodificador (“decoder”). Este CPLD fornece em suas saídas um endereço de cinco bits para cada combinação de coincidência entre detectores válida que corresponde aos doze bits de entrada, seis para “start” e seis para “stop”. No caso de coincidências inválidas, o CPLD emite um bit de “ERRO” enquanto suas saídas de endereço assumem valor “0”. A codificação deste dispositivo em linguagem “Very High Speed Integrated Circuit Hardware Description Language” (VHDL) foi feita com o programa Quartus II versão 12.1 da Altera, e é apresentada na figura 3.22.

```

_******
_*          30 to 5 encoder          *
_*          Device: EPM240T100C5    *
_*          Routing - PAC Spectrometer *
_*          LIH - CRPq - IPEN/CNEN-SP *
_******

library ieee;                -- Defines std_logic types
use ieee.std_logic_1164.all;

entity encoder30to5c is
  port ( A, B, C, D, E, F, G, H, I, J, L, M : in std_logic; -- Defines ports
        Q: out std_logic_vector(4 downto 0);
        ERROR : out std_logic);
end encoder30to5c;

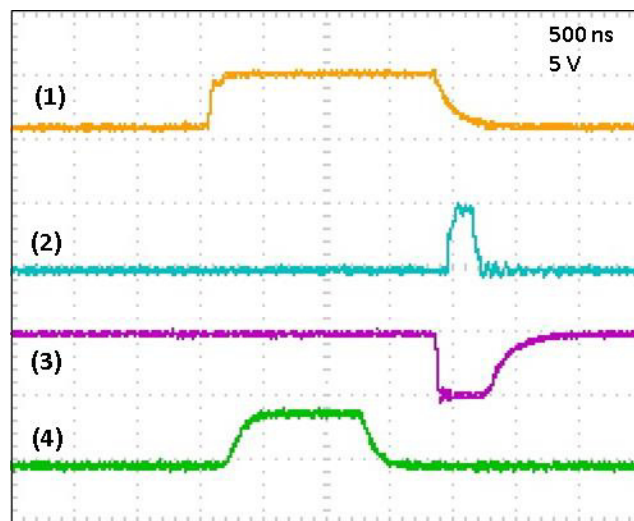
architecture encoder30to5c_arch of encoder30to5c is
  signal IN_DATA : std_logic_vector(11 downto 0); -- Defines internal signals
begin
  IN_DATA <= M & L & J & I & H & G & F & E & D & C & B & A; -- Binding vector
  process( IN_DATA ) begin
    ERROR <= '0'; -- Clear error bit
    case IN_DATA is -- Encode with input data
      when "100000010000" => Q <= "00000"; -- (1) Ab
      when "100000001000" => Q <= "00001"; -- (2) Ac
      when "100000000100" => Q <= "00010"; -- (3) Ad
      when "100000000010" => Q <= "00011"; -- (4) Ae
      when "100000000001" => Q <= "00100"; -- (5) Af
      when "010000100000" => Q <= "00101"; -- (6) Ba
      when "010000001000" => Q <= "00110"; -- (7) Bc
      when "010000000100" => Q <= "00111"; -- (8) Bd
      when "010000000010" => Q <= "01000"; -- (9) Be
      when "010000000001" => Q <= "01001"; -- (10) Bf
      when "001000100000" => Q <= "01010"; -- (11) Ca
      when "001000010000" => Q <= "01011"; -- (12) Cb
      when "001000000100" => Q <= "01100"; -- (13) Cd
      when "001000000010" => Q <= "01101"; -- (14) Ce
      when "001000000001" => Q <= "01110"; -- (15) Cf
      when "000100100000" => Q <= "01111"; -- (16) Da
      when "000100010000" => Q <= "10000"; -- (17) Db
      when "000100001000" => Q <= "10001"; -- (18) Dc
      when "000100000010" => Q <= "10010"; -- (19) De
      when "000100000001" => Q <= "10011"; -- (20) Df
      when "000010100000" => Q <= "10100"; -- (21) Ea
      when "000010010000" => Q <= "10101"; -- (22) Eb
      when "000010001000" => Q <= "10110"; -- (23) Ec
      when "000010000100" => Q <= "10111"; -- (24) Ed
      when "000010000001" => Q <= "11000"; -- (25) Ef
      when "000001100000" => Q <= "11001"; -- (26) Fa
      when "000001010000" => Q <= "11010"; -- (27) Fb
      when "000001001000" => Q <= "11011"; -- (28) Fc
      when "000001000100" => Q <= "11100"; -- (29) Fd
      when "000001000010" => Q <= "11101"; -- (30) Fe

      when others => ERROR <= '1'; -- Illegal condition
    end case;
  end process;
end encoder30to5c_arch;

```

**Figura 3.21** – Listagem do código de programação do CPLD Altera EPM240T100C6.

Assim que o CPLD valida a combinação entre detectores, o circuito lógico do roteador emite os sinais “strobe”, “enable”, “clock” e “tac out”, conforme o diagrama de tempos da figura 3.21. A partir do “strobe” (1), o sinal analógico “tac out” (4) é liberado para o ADC realizar a conversão analógico-digital (A/D). O sinal de “clock” (3) faz com que a placa de I/O capture o sinal digital resultante da conversão, enquanto que o sinal “enable” (2) finaliza o ciclo e reinicia o ADC. O sinal “strobe” é limitado em 2,5  $\mu$ s, tempo máximo para o TAC realizar uma conversão de tempo em amplitude. Se após 2,5  $\mu$ s o TAC não receber um pulso de “stop”, subentende-se que não houve coincidência e o TAC é reiniciado.



**Figura 3.22** – Principais sinais do sistema de aquisição do espectrômetro CAP: (1) “strobe”, (2) “enable”, (3) “clock” e (4) “tac out”.

### 3.4.6 O Programa de Aquisição

A placa de I/O é conectada no barramento PCI de um microcomputador do tipo “dual core” que opera com o sistema operacional Windows 7. Os dados provenientes da placa de I/O são armazenados em modo FILA no disco rígido. A leitura dos dados e geração dos espectros é feita através do uso do ambiente gráfico de desenvolvimento de sistemas por instrumentos virtuais (“vi”) LabVIEW 8.5. LabVIEW é largamente utilizado para realizar simulações, testes automatizados, aquisição e análise de dados e controle de processos. No ambiente LabVIEW foi desenvolvido, em conjunto com o Dr. André Luís Lapolli, um MCA, similar a referência [30]. Neste projeto a placa de I/O está configurada como “digital input”, em modo de operação “handshaking I/O”. No modo “handshaking

I/O” a leitura das entradas de dados é feita de modo contínuo em sincronismo com o sinal de controle “REQ”, proveniente do roteador. Os dados lidos são armazenados no disco rígido do computador ao mesmo tempo em que incrementam os espectros visualizados na tela do computador. Os comandos do MCA, também dispostos na tela, permitem iniciar e terminar a contagem, salvar os espectros no formato ASCII (extensão “dat”) e selecionar o conjunto dos 30 espectros ou cada um individualmente. A tela com os comandos do MCA pode ser vista na figura 3.23. A figura 3.24 mostra a estrutura principal de leitura de dados do MCA.

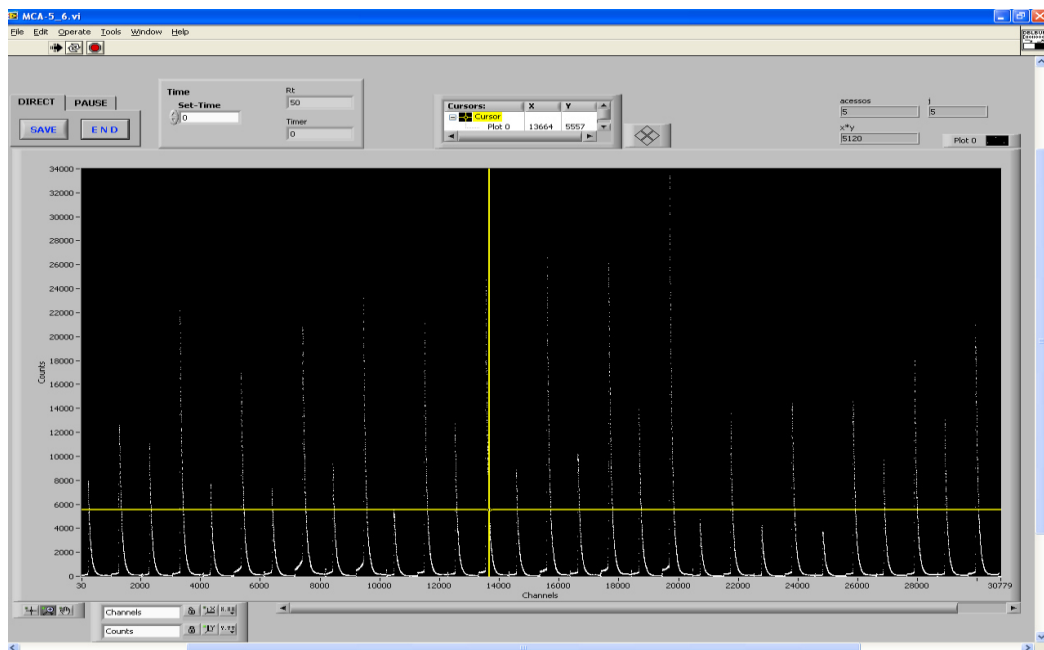


Figura 3.23 – Vista da tela do MCA.

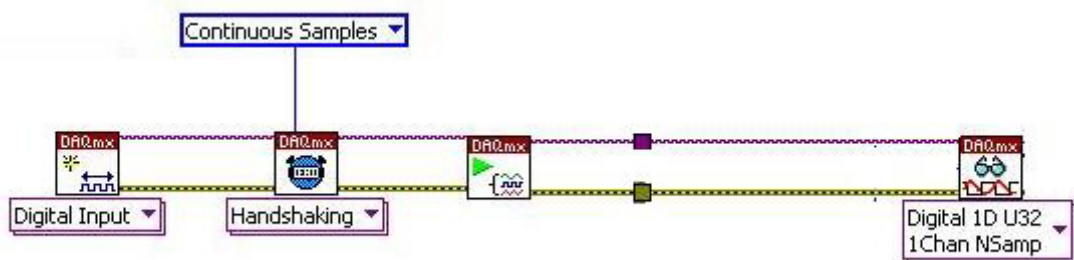


Figura 3.24 – Esquema básico da leitura de dados do MCA.



### 3.4.7 Outras Unidades Desenvolvidas para o Espectrômetro

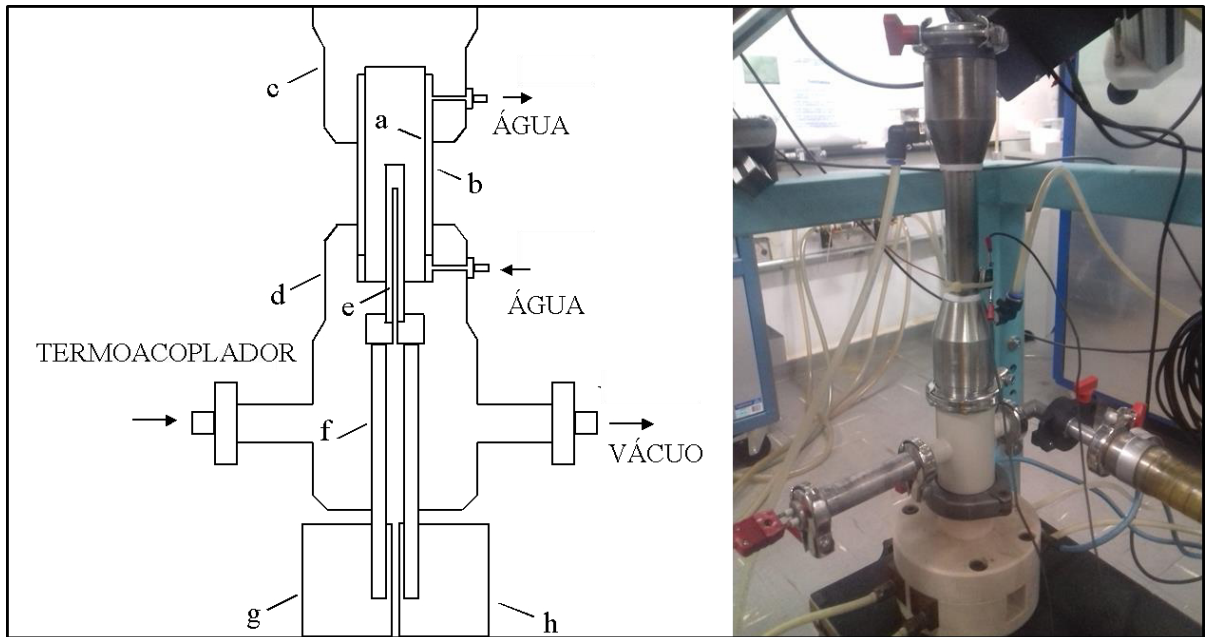
Várias unidades eletrônicas secundárias foram construídas para constituir o espectrômetro e colaborar com as rotinas das medidas de CAP. Estas unidades serão descritas nas próximas seções.

#### 3.4.7.1 Sistema de Controle de Temperatura do Mini-Forno de Grafite

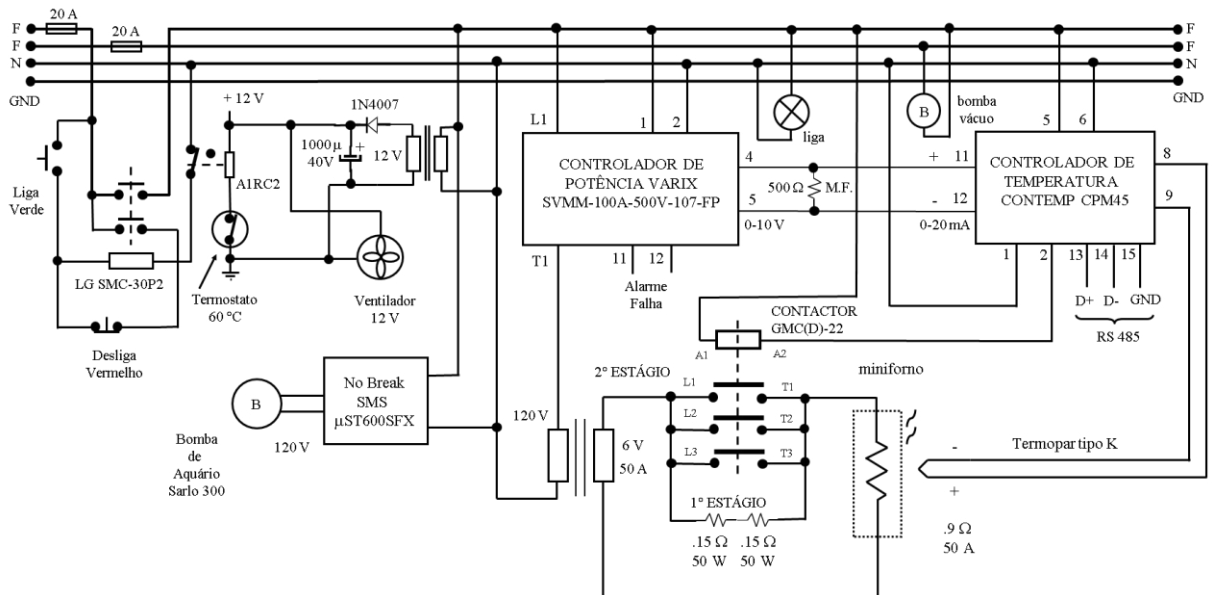
Foi desenvolvido um sistema de controle de temperatura de um mini-forno de grafite automatizado [31] para ser utilizado tanto com o espectrômetro de seis como com o de quatro detectores. Este mini-forno possui um elemento aquecedor de grafite com volume de cerca de  $1 \text{ cm}^3$  para acondicionamento das amostras que, durante o experimento, podem ser submetidas a uma temperatura de até  $1100 \text{ }^\circ\text{C} \pm 0.1\%$  em vácuo.

O mini-forno, que pode ser observado na figura 3.25, consiste de dois tubos de alumínio concêntricos (a, b) com 0,5 mm de espessura cada. O espaço existente entre os tubos é utilizado para circulação de água para refrigeração. Nas extremidades dos tubos situam-se duas câmaras: a superior (c), para conexão de vácuo, de água para refrigeração e introdução da amostra no forno, e a inferior (d), destinada às conexões de água para refrigeração, vácuo, termopar, e fonte de corrente para a resistência. No interior do tubo de menor diâmetro, em vácuo, repousa uma resistência tubular de grafite (e) conectada à fonte de alimentação através de um “feedthrough” de dois pólos (f), com as extremidades fixadas a blocos dissipadores de cobre distintos (g, h) refrigerados a água. No interior da resistência cilíndrica é inserida a amostra de material a ser aquecida para medida no espectrômetro de CAP.

O circuito de controle do mini-forno é apresentado na figura 3.26. A fonte de alimentação do forno é capaz de fornecer uma corrente variável de até 60 A em 50 V para a resistência de grafite, por meio de um controlador de potência da marca VARIX. O controlador de temperatura utilizado é o modelo COM 45 da Contemp que possui via de comunicação RS485, o que possibilitou o desenvolvimento de um programa (cuja tela pode ser vista na figura 3.27) para realizar o ajuste da temperatura do mini-forno no próprio computador de aquisição (ou de forma remota). O termopar utilizado é de Tipo K (Cromel / Alumel). A refrigeração do forno é feita por uma pequena bomba de aquário alimentada por um sistema ligado a um “no-break”.



**Figura 3.25** – Desenho esquemático do mini-forno para espectrômetro de CAP (esquerda) e o protótipo construído (direita).



**Figura 3.26** – Diagrama em blocos do circuito elétrico do mini-forno para espectrômetro CAP.



Figura 3.27 – Tela do painel do controle remoto da temperatura do mini forno.

### 3.4.7.2 Multiplexador Analógico

O multiplexador analógico foi desenvolvido para facilitar o ajuste dos pulsos de energias de  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$  e dos sinais dos CFDs, cujo diagrama em blocos é apresentado na figura 3.28.

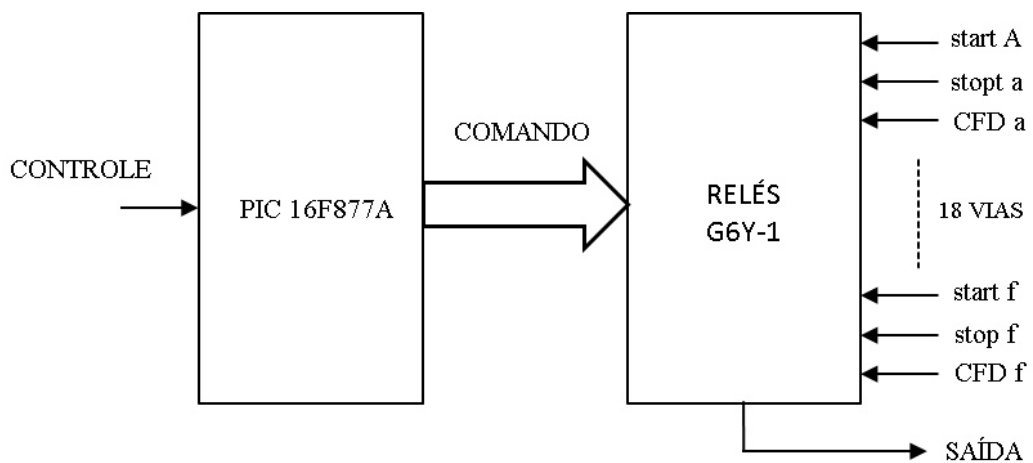


Figura 3.28 – Diagrama em blocos do multiplexador analógico.

O multiplexador analógico é composto basicamente por um microcontrolador PIC 16F877A programado em “mikroBasic”. Os sinais de “start”, “stop” e CFDs correspondentes aos seis detectores são aplicados nas 18 entradas do multiplexador. A seleção do sinal é feita por uma chave “push-pull” conectada ao PIC. A cada toque na chave, o sinal de uma das entradas é levado à saída do circuito, podendo ser observado por um osciloscópio. Isto facilita os ajustes das energias das radiações gama e do “trigger” dos CFDs. Adicionalmente, foi construído outro multiplexador com seis entradas para fornecer sinais de “trigger” para o osciloscópio.

### 3.3.6.3 Módulos de Atraso Digital

O atraso do sinal do ramo rápido, como mencionado na seção 3.3, é normalmente realizado fazendo o pulso percorrer 650 m de cabo coaxial de baixa atenuação, correspondente a um atraso de 1,5  $\mu$ s. Este procedimento apresenta como desvantagem, além do grande volume ocupado, a necessidade de utilizar um amplificador e um discriminador rápido para reformatar o sinal na saída do cabo de modo a compensar a degradação sofrida em amplitude e em tempo de subida.

O circuito de atraso digital [32] foi concebido com a intenção de substituir o conjunto de cabos coaxiais e seu circuito é apresentado na figura 3.29. O pulso padrão “Nuclear Instrumentation Module” (NIM) rápido negativo proveniente do detector é amplificado e convertido para o padrão lógico Emitter Coupled Logic (ECL). Este pulso dispara um multivibrador monoestável MC10198 que proporciona uma temporização igual ao tempo de atraso dado pelos cabos coaxiais. Ao final do período de temporização, na borda de descida, um flip-flop MC10231 é disparado gerando um pulso NIM atrasado que é amplificado pelos transistores de saída 2N918. Portanto, o pulso de saída da unidade tem as mesmas características do pulso de entrada, porém defasado em 2,5  $\mu$ s. Um led indica a taxa de pulsos aceitos. Vale ressaltar que o pulso inicial não é atrasado e sim reconstituído. Desta forma, a estabilidade e resolução do circuito são fatores extremamente críticos, principalmente em condições de variação de temperatura. Observamos em diversos testes com núcleos de  $^{111}\text{In}$  e  $^{181}\text{Hf}$  que a resolução em tempo do espectrômetro superou 1,2 ns, valor alto para a utilização de detectores de  $\text{BaF}_2$ , porém aceitável para utilização com detectores de  $\text{NaI}$ . Portanto, os atrasos feitos com cabos coaxiais apresentaram melhor resolução e foram utilizados no projeto do espectrômetro.

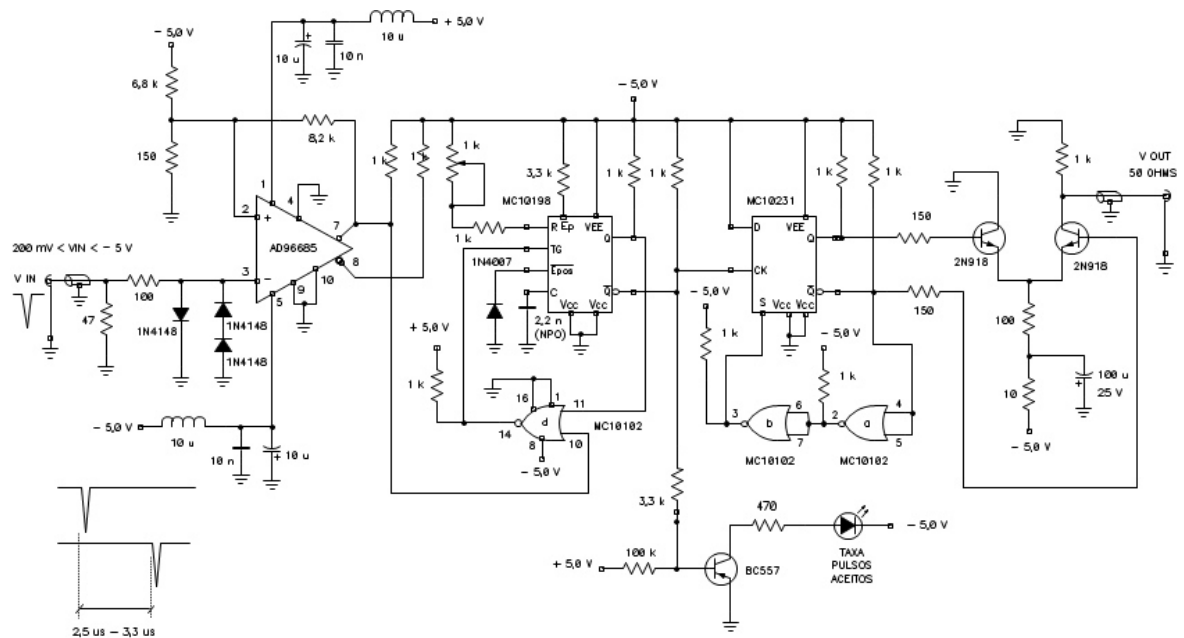


Figura 3.29 – Esquema do circuito do atraso digital.

### 3.4.7.4 Circuito de Posicionamento para Detectores

O circuito de posicionamento dos detectores [33] foi construído de modo a manter a taxa de coincidências aproximadamente constante quando fossem utilizados núcleos de prova com meias-vidas curtas por meio de aproximação de detectores. O sistema pode ser compreendido por meio do esquema em blocos da figura 3.30. Cada conjunto de detectores é montado em um dispositivo móvel controlado por um motor de passo. O posicionamento do conjunto em relação à amostra radioativa pode ser alterado de forma manual ou automática. No modo automático, o circuito conversor de frequência em tensão produz um sinal cuja amplitude é proporcional à taxa dos pulsos provenientes dos TSCAs. Este sinal controla o deslocamento dos motores de passo. A cada período de tempo convenientemente escolhido dependendo da meia vida do núcleo é feita uma verificação da taxa de contagens (com variação do tempo escolhido). Havendo diminuição da taxa, os detectores se aproximam da amostra. Dessa forma a taxa de coincidências se mantém aproximadamente constante durante as medidas. Dois conjuntos com “reed-relés” limitam o máximo deslocamento dos detectores.

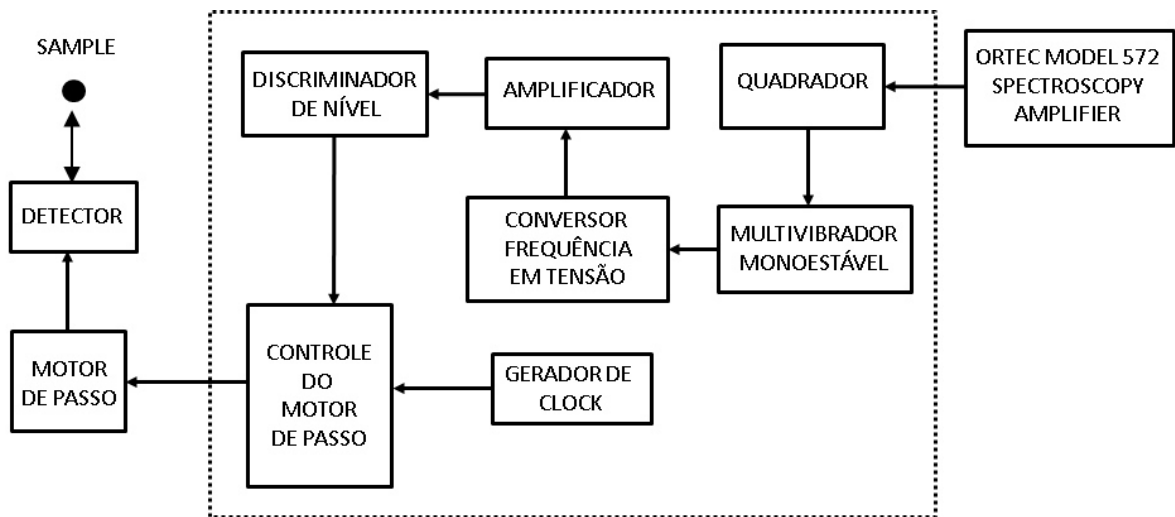


Figura 3.30 – Diagrama em blocos do circuito de posicionamento dos detectores.

### 3.4.7.5 Fonte de Alimentação para os CFDs

Os Discriminadores de Fração Constante utilizados no espectrômetro de CAP de seis detectores não possuem fonte de alimentação incorporada. Portanto, foi necessário construir módulos de +12 V e - 12 V [34, 35] para serem adaptados aos CFDs. Os circuitos utilizados podem ser vistos na figura 3.31 e têm como base os tradicionais reguladores de tensão 7812 e 7912 em configuração típica, com corrente máxima de 1 A.

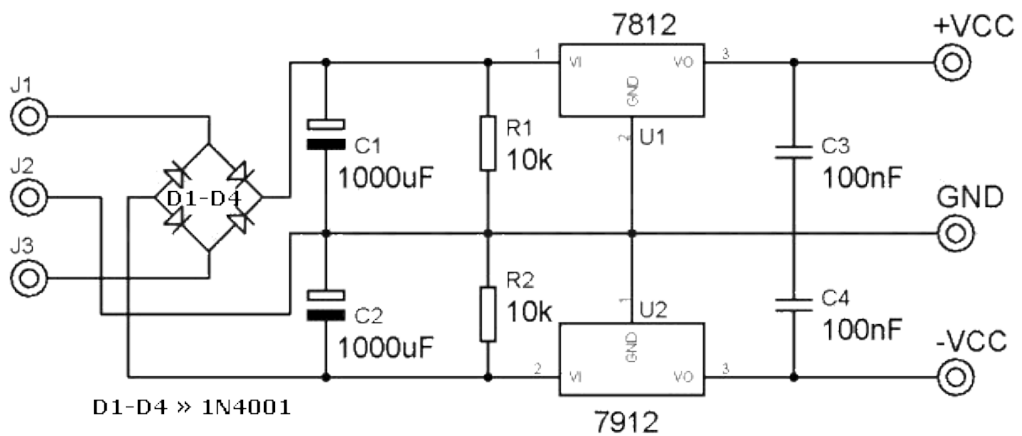


Figura 3.31 – Circuito da fonte de alimentação dos CFDs.

A figura 3.32 apresenta a foto das fontes de alimentação para CFDs em conjunto com as demais unidades desenvolvidas e apresentadas nas seções anteriores.

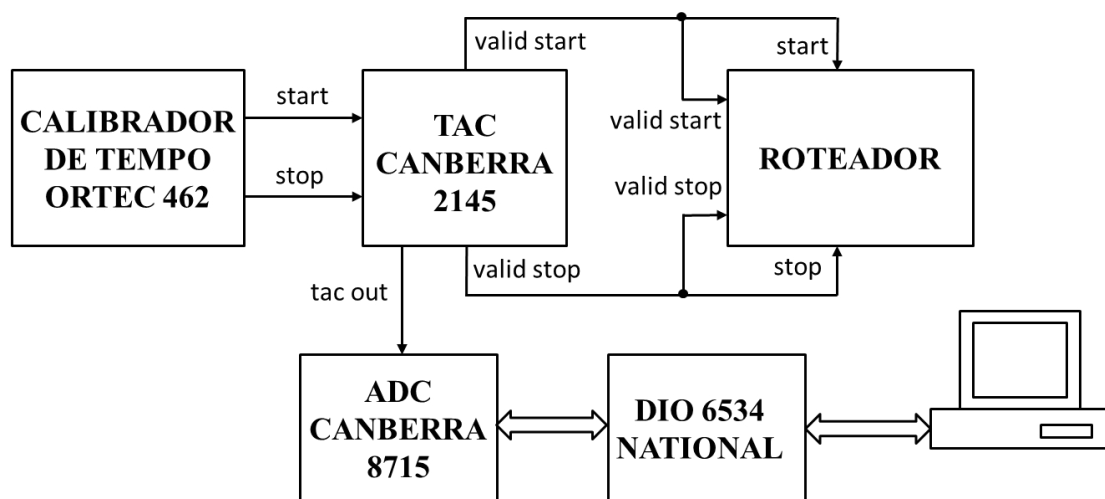


**Figura 3.32** – Unidades complementares desenvolvidas no LIH para o espectrômetro de CAP seis detectores: (1) módulo de atraso digital; (2) circuito de posicionamento para detectores; (3) fontes de alimentação para CFDs; (4) divisor de tensão para válvula fotomultiplicadora; (5) roteador; (6) multiplexador analógico. As cores das fitas representam os detectores e seus ramos: vermelha (A), azul (B), amarelo (C), verde (D), cinza (E) e branco (F).

## 4. METODOLOGIA EXPERIMENTAL

### 4.1 Calibração em Tempo

A calibração em tempo do sistema de aquisição foi o primeiro teste efetivo realizado no espectrômetro desenvolvido. Para realização dessa medida foi utilizado um calibrador de tempo (“Time Calibrator”) Ortec modelo 462 conectado na entrada do TAC do sistema de aquisição, conforme pode ser observado na figura 4.1. Nesse teste inicial não foi utilizado núcleo radioativo. Os espectros foram gerados por meio dos sinais “valid start” e “valid stop” conectados nas entradas “start” e “stop” do roteador, simulando os pulsos lógicos de coincidência. Nesse arranjo, é adquirido apenas um espectro por vez. Não é possível aplicar todos os sinais de saída do TAC simultaneamente nas entradas do roteador devido a atenuação causada pela diminuição da impedância total uma vez que todas as entradas ficariam associadas em “paralelo”.



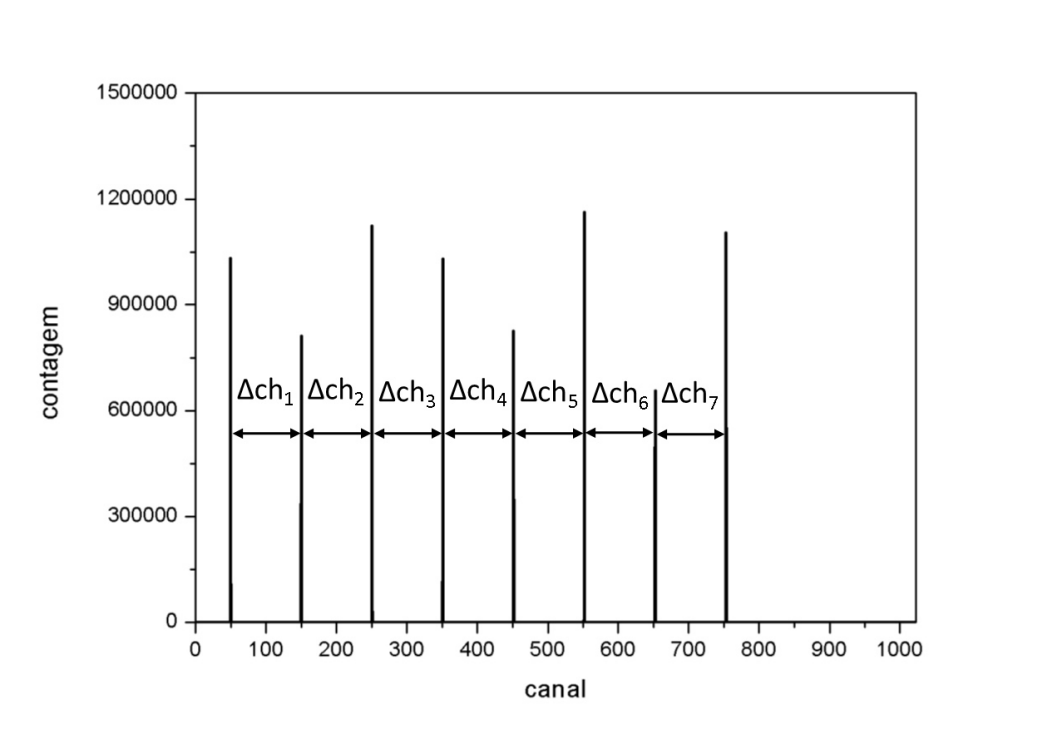
**Figura 4.1** – Diagrama em blocos do arranjo de calibração em tempo sem utilização de núcleo radioativo.

O calibrador de tempo gera pares de pulsos “start”-“stop” precisos com diferença de tempo  $\Delta t$  (“period”) durante um alcance de tempo T (“range”). Os valores de “period” e “range” são selecionáveis no painel do calibrador. Os pulsos de “start” e “stop” são aplicados nas respectivas entradas do TAC. Cada par “start”-“stop” produz um pico individual no espectro de tempo. A diferença entre dois picos sucessivos durante o período



de tempo selecionado do TAC (“time range”) é dada por  $\Delta ch$  (figura 4.2). Observa-se que o “range” do calibrador deve ser menor que o “time range” do TAC. Os tempos de “range” e “time range” devem ser compatíveis com a meia vida do estado intermediário de cada núcleo. Calcula-se então a média ( $\bar{X}$ ) e o desvio padrão ( $\sigma$ ) do conjunto de  $\Delta ch_n$  para cada espectro. A calibração em tempo ( $tcal$ ) é dada pela equação:

$$tcal = \frac{\Delta t}{\bar{X}} \quad (\text{s/canal}) \quad (4.1)$$



**Figura 4.2** – Exemplo de espectro obtido na calibração em tempo do espectrômetro de CAP. Neste caso: “range” = 160 ns e “period” = 20 ns (calibrador de tempo) e “time range” = 200 ns (TAC).

Outro modo de realizar a calibração em tempo do espectrômetro é por meio da utilização de núcleos radioativos, selecionando-se os parâmetros de tempo do TAC e do calibrador, como pode ser observado na tabela 4.1. Neste modo, todos os sinais dos TSCAs são aplicados no TAC, mantendo-se o arranjo da figura 3.9. São gerados 30 espectros de

tempo simultâneos. O tempo de aquisição necessário a uma estatística adequada depende da atividade da fonte radioativa e da taxa de coincidências.

**Tabela 4.1** – Valores típicos para os parâmetros de calibração em tempo do espectrômetro de CAP.

núcleo	TAC	calibrador de tempo	
	"time range" (ns)	"range" (ns)	"period" (ns)
$^{140}\text{La} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$	100	80	10
$^{181}\text{Hf} \rightarrow ^{181}\text{Ta}$	200	160	20
$^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$	1000	640	60

## 4.2 Não Linearidade em Tempo

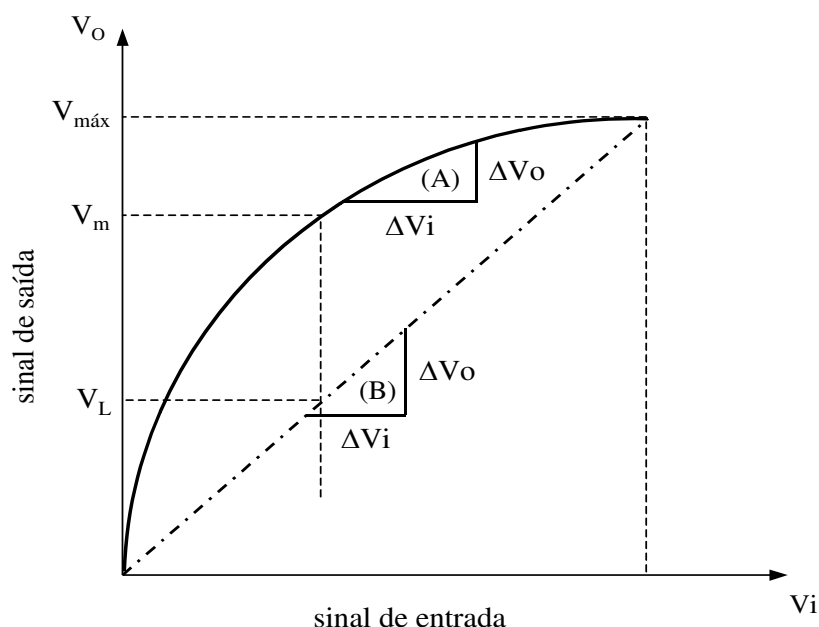
A não linearidade em tempo é um tipo de distorção que corresponde às variações de largura (dispersão) de cada um dos 1024 canais dos espectros de coincidências. Esse parâmetro agrega as não linearidades integral e diferencial dos conversores TAC e ADC.

- Não Linearidade Diferencial (NLD): é a medida da variação da amplitude do sinal de saída em função da amplitude do sinal de entrada. De acordo com a figura 4.3, a não linearidade diferencial, em porcentagem, é dada por:

$$NLD = \left\{ 1 - \left[ \frac{(\Delta V_o / \Delta V_i)_A}{(\Delta V_o / \Delta V_i)_B} \right] \right\} * 100 \quad (4.2)$$

- Não Linearidade Integral (NLI): é a medida do máximo desvio apresentado pela curva real de  $V_o = f(V_i)$  em relação à curva teórica. De acordo com a figura 4.3, a não linearidade integral, em porcentagem, é dada por:

$$NLI = \frac{V_m - V_L}{V_{m\acute{a}x}} * 100 \quad (4.3)$$



**Figura 4.3** – Diagrama utilizado para definição de linearidade diferencial e integral. A curva (A) mostra a resposta medida para um determinado sinal de entrada. A reta (B) corresponde à resposta ideal.

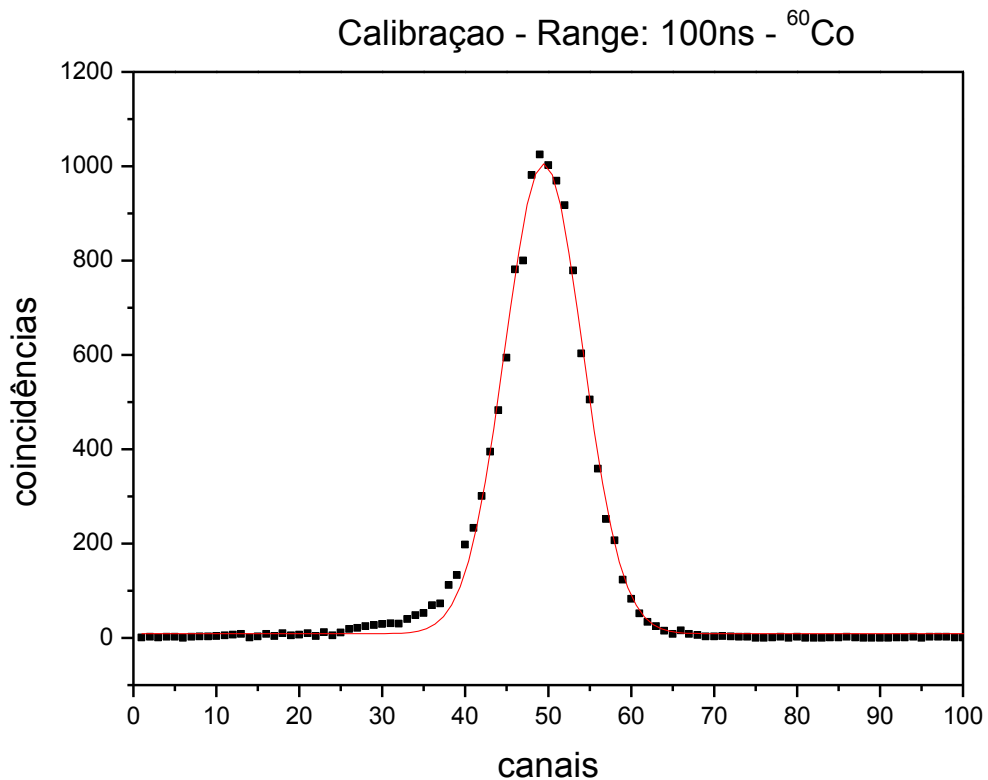
Os valores de não linearidade integral e diferencial contribuem para as incertezas dos resultados das medidas CAP. A medida de não linearidade (%lin) em tempo é definida na equação 4.4 (coeficiente de variação - CV), onde  $\sigma$  é desvio padrão e  $\bar{X}$  é a média de  $\Delta Ch_n$ . O arranjo utilizado para o experimento é o mesmo da figura 4.1.

$$\%lin = CV = \frac{\sigma}{\bar{X}} \cdot 100 \quad (4.4)$$

### 4.3 Resolução em Tempo

A resolução em tempo do espectrômetro é determinada através da largura a meia altura (“Full Width at Half Maximum” - FWHM) do espectro de coincidências de núcleos que emitem duas radiações gama praticamente ao mesmo tempo (“prompt”) como, por exemplo, o  $^{60}\text{Co}$  (figura 4.4), onde  $\text{FWHM} = 1,06(2)$  ns para uma calibração de  $0,102(1)$  ns/canal. As energias de  $\gamma_1$  (“start”) e  $\gamma_2$  (“stop”) são ajustadas através de uma amostra de um dos núcleos utilizados neste trabalho:  $^{140}\text{La}$ ,  $^{181}\text{Hf}$  ou  $^{111}\text{In}$ . No caso do  $^{140}\text{La}$  as energias foram ajustadas em 328 keV e 487 keV, respectivamente. O “range” para este

núcleo é de 100 ns, o menor entre os núcleos radioativos utilizados. Posteriormente, a fonte de  $^{140}\text{La}$  é substituída por uma fonte de  $^{60}\text{Co}$  e inicia-se a contagem. Ao final do período de contagem, determina-se o valor da resolução em tempo através da média de FWHM para os 30 espectros. O procedimento foi repetido para as fontes de  $^{181}\text{Hf}$  e  $^{111}\text{In}$  e os resultados obtidos foram semelhantes.



**Figura 4.4** – Espectro de “prompt” obtido com fonte de  $^{60}\text{Co}$ . FWHM = 1,06(2) ns para calibração de 0,102(1) ns/canal.

#### 4.4 Determinação do Tempo Morto do Analisador Multicanal

O arranjo utilizado para determinar o tempo morto do analisador multicanal (MCA) do sistema de aquisição é o mesmo apresentado na figura 4.1. O Calibrador de Tempo Ortec 462 possui um ajuste da frequência do par de pulsos “start-stop” até o limite de cerca de 50.000 contagens/segundo. As medidas devem ser feitas em diversas frequências em tempo suficiente para atingir um mínimo de 60.000 contagens no pico.

Os pulsos de coincidências da saída do TAC ( $T_{REAL}$ ) são aplicados no ADC Canberra 8715 e em um contador de pulsos (“counter”) Ortec 997. Este valor é comparado com o número de contagens registrado pelo programa de aquisição ( $T_{MCA}$ ). A taxa de tempo morto (%TM) é determinada através da expressão:

$$\%TM = \frac{T_{REAL} - T_{MCA}}{T_{REAL}} * 100 \quad (4.5)$$

#### 4.5 Medidas de Interações Hiperfinas em $^{181}\text{Ta}$ (Hf), $^{111}\text{Cd}$ (Cd), $^{181}\text{Ta}$ (Ni) e $^{111}\text{Cd}$ (Ni)

Para comprovar de forma eficiente o funcionamento do novo espectrômetro foram realizadas medidas de parâmetros hiperfinos, em temperatura ambiente (298 K), em diversos materiais cujos resultados finais são bem conhecidos da literatura.

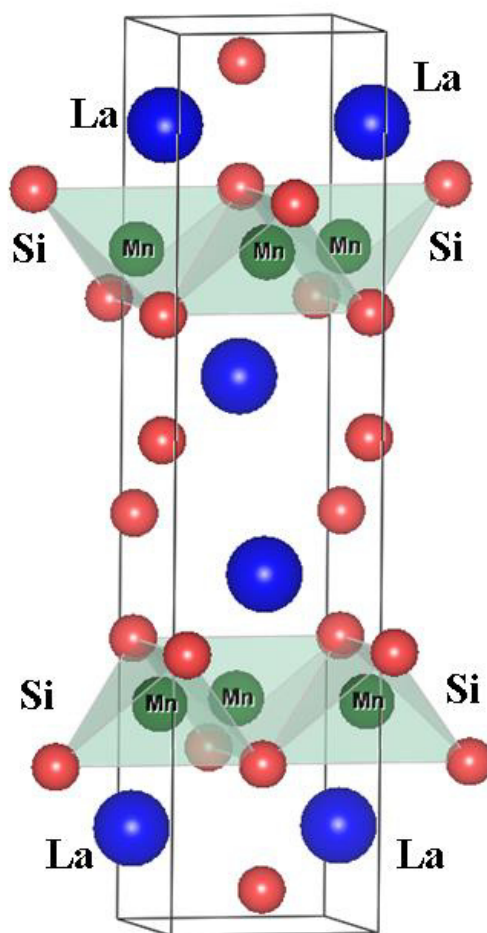
- Interação elétrica:  $^{181}\text{Hf}$ ( $^{181}\text{Ta}$ ) em háfnio e  $^{111}\text{In}$ ( $^{111}\text{Cd}$ ) em cádmio.
- Interação magnética:  $^{181}\text{Hf}$ ( $^{181}\text{Ta}$ ) em níquel e  $^{111}\text{In}$ ( $^{111}\text{Cd}$ ) em níquel.

A escolha dos núcleos de prova  $^{181}\text{Hf}$ ( $^{181}\text{Ta}$ ) e  $^{111}\text{In}$ ( $^{111}\text{Cd}$ ) se deve à facilidade de obtenção do  $^{181}\text{Hf}$  por meio da irradiação do Hf metálico com nêutrons no reator nuclear IEA-R1 e pelo fornecimento do  $^{111}\text{In}$  pelo Centro de Radiofarmácia do IPEN que importa este radioisótopo regularmente do Canadá através da empresa MS Nordion.

A escolha dos elementos háfnio, cádmio e níquel na composição dos materiais deve-se à facilidade no preparo da amostra e por ter uma interação bem característica com o núcleo de prova. O háfnio metálico e o cádmio metálico não são ferromagnéticos, possuem estrutura cristalina hexagonal (quando puros) e apresentam um GCE com assimetria axial [5], devendo, portanto, apresentar apenas interação elétrica bem definida com os núcleos utilizados, principalmente no caso do háfnio que possui um momento quadrupolo (Q) alto. O níquel, por sua vez, é ferromagnético e possui estrutura cristalina cúbica com face centrada (GCE nulo).

Adicionalmente, e de forma inédita, foram realizadas medidas de interações hiperfinas e um estudo inicial do comportamento magnético do composto  $\text{LaMnSi}_2$ , utilizando  $^{111}\text{In}$ ( $^{111}\text{Cd}$ ) e  $^{140}\text{La}$ ( $^{140}\text{Ce}$ ) como núcleos de prova. O  $\text{LaMnSi}_2$  pertence à série de compostos intermetálicos  $\text{RFeSi}_2$  em que R é um elemento de terra rara. Possui uma estrutura cristalina ortorrômbica pertencente ao grupo espacial “Cmcm” (figura 4.5).

O comportamento ferromagnético do composto  $\text{LaMnSi}_2$  é basicamente devido ao manganês, mais especificamente pelas interações Mn – Mn de longo alcance [36]. A utilização do  $^{111}\text{In}(^{111}\text{Cd})$  como núcleo de prova mostra uma interação elétrica e também magnética. O  $^{140}\text{La}(^{140}\text{Ce})$ , por sua vez, contribui apenas com interação magnética pois o valor de seu momento quadrupolo (Q) é muito baixo. A motivação para realização dos estudos iniciais neste composto se deve aos recentes trabalhos do grupo do LIH com estruturas cristalinas semelhantes [36] e também pelo interesse em observar o comportamento do espectrômetro com a sonda  $^{140}\text{La}(^{140}\text{Ce})$ . Como esse núcleo possui uma meia-vida muito curta e possui um pico de “prompt” no início dos espectros, os resultados necessitam de altas estatísticas de contagem e boa resolução em tempo. Para realização das medidas na faixa de temperatura entre 10 K e 430 K necessitou-se da utilização de um criostato de gás hélio de circuito fechado e do mini-forno descrito na seção 3.4.7.1.



*Figura 4.5 – Estrutura cristalina do  $\text{LaMnSi}_2$ .*

## 4.6 Preparo das Amostras

### 4.6.1 Amostras de $^{181}\text{Ta}$ (Hf), $^{111}\text{Cd}$ (Cd), $^{181}\text{Ta}$ (Ni) e $^{111}\text{Cd}$ (Ni)

As amostras de  $^{181}\text{Ta}$  (Hf),  $^{111}\text{Cd}$ (Cd),  $^{181}\text{Ta}$ (Ni) e  $^{111}\text{Cd}$ (Ni) foram confeccionadas com o seguinte procedimento:

- $^{181}\text{Hf}$ ( $^{181}\text{Ta}$ ) em háfnio: amostra contendo cerca de 1 mg de háfnio metálico irradiada durante 40 horas no núcleo do reator IEA-R1.
- $^{111}\text{In}$ ( $^{111}\text{Cd}$ ) em níquel: amostra contendo cerca 200 mg de níquel (99,99% de pureza) em 2 lâminas de 5 mm x 5 mm de largura e 0,5 mm de espessura com adição de 2  $\mu\text{L}$  de solução de  $^{111}\text{InCl}$  ( $\approx 25 \mu\text{Ci}$ ). Após seca, a amostra é fundida rapidamente em forno de arco em atmosfera de argônio.
- $^{181}\text{Hf}$ ( $^{181}\text{Ta}$ ) em níquel: amostra produzida por fusão em forno de arco contendo cerca 200 mg de níquel (99,99% de pureza) em 2 lâminas de 5 mm x 5 mm de largura e 0,5 mm de espessura e 1 mg de háfnio metálico irradiado durante 40 horas no núcleo do reator IEA-R1.
- $^{111}\text{In}$ ( $^{111}\text{Cd}$ ) em cádmio: amostra contendo cerca 200 mg de cádmio (99,97% de pureza) em 2 lâminas de 5 mm x 5 mm de largura e 0,5 mm de espessura com adição de 2  $\mu\text{L}$  de solução de  $^{111}\text{InCl}$  ( $\approx 25 \mu\text{Ci}$ ). Após seca, a amostra é fundida rapidamente em forno de arco em atmosfera de argônio.

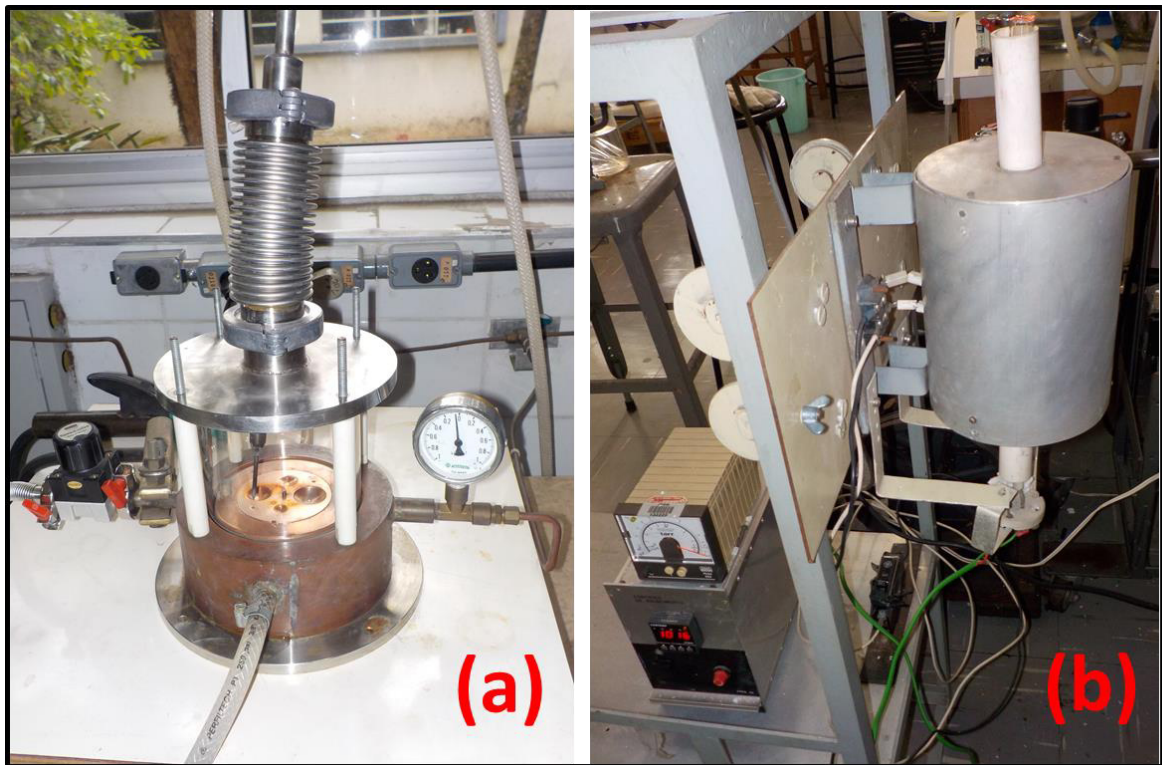
### 4.6.2 Amostras de $^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$ e $^{140}\text{La} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$ em $\text{LaMnSi}_2$

O composto  $\text{LaMnSi}_2$  foi preparado com os elementos metálicos lantânio, manganês e silício com alto grau de pureza (La = 99,9%, Mn = 99,99% and Si = 99,999%) em proporções estequiométricas, mas com excesso de 5% de Mn. O átomo de Mn em excesso é necessário devido ao Mn possuir o ponto de ebulição bem menor e uma pressão de vapor maior, em uma temperatura menor, do que dos outros elementos contidos na amostra (ver tabela 4.2). Desta forma, o Mn evapora mais do que os outros elementos no momento da fusão utilizando o forno de arco.

**Tabela 4.2** – Ponto de ebulição dos elementos utilizados na confecção das amostras [37].

Elemento	Ponto de Ebulição ( K)	Pressão do Vapor (Pa)
La	3737	1 (2005 K)
Si	3538	1 (1908 K)
Mn	2334	100 (1493 K)

A fusão destes elementos foi realizada em forno de arco voltaico (figura 4.6), submetidas à pressão de 0,2 Kgf/cm<sup>2</sup> de argônio e sob uma temperatura de mais de 1200 °C. Em seguida a amostra foi selada em vácuo em tubos de quartzo, para que fosse feito um tratamento térmico a 800 °C durante 24 horas em forno de resistência.

**Figura 4.6** – Forno de arco voltaico (a) utilizado para confecção das amostras e o forno de resistência utilizado para o tratamento térmico das amostras após fusão (b).

Após confecção, a amostra foi caracterizada por difração de raios-x. O difratograma de raios-x foi obtido à temperatura ambiente e realizado no Laboratório de Caracterização Tecnológica do Departamento de Engenharia de Minas e Petróleo da Escola Politécnica da Universidade de São Paulo. O resultado é apresentado na seção 5.6.



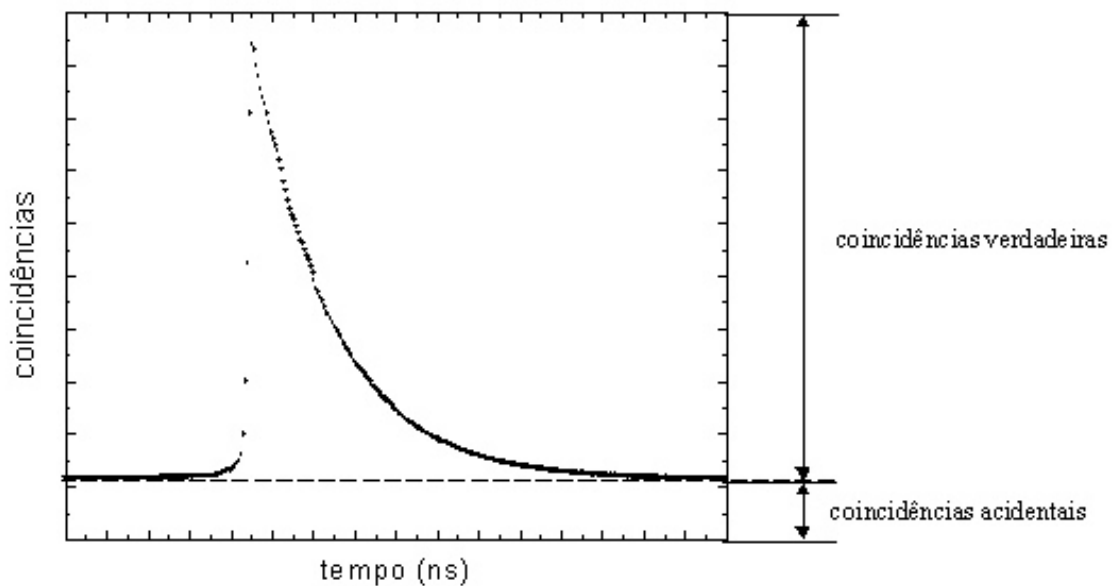
Depois de caracterizada, a amostra foi cortada com disco de diamante em forma de três discos. Em uma delas, foi adicionado 2  $\mu\text{L}$  de solução de  $^{111}\text{InCl}$  ( $\approx 25 \mu\text{Ci}$ ). Após seca, a amostra foi fundida rapidamente no forno de arco com o mesmo procedimento relatado anteriormente. Após o preparo, a amostra foi levada ao espectrômetro de seis detectores para medidas de CAP em diversas temperaturas.

Ao fim de todas as medidas com  $^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$  em  $\text{LaMnSi}_2$  e não mais apresentando atividade significativa do  $^{111}\text{In}$  (após tempo de decaimento da ordem de 30 dias), a mesma amostra foi irradiada com nêutrons no reator IEA-R1 (fluxo de cerca de  $10^{13} \text{ n.cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ) por aproximadamente 5 minutos para produzir  $^{140}\text{La}$ . Após irradiação, a amostra foi submetida um tratamento térmico a  $800 \text{ }^\circ\text{C}$  durante 24 horas para eliminar os eventuais danos sofridos na sua estrutura cristalina pelos nêutrons rápidos durante a irradiação. O tempo de espera de 24 horas também permitiu decaimento do  $^{56}\text{Mn}$  com meia vida de 2,6 horas que também é produzido na amostra após irradiação desta com nêutrons. Em seguida, a amostra foi levada ao espectrômetro de seis detectores para medida. O procedimento de irradiação da amostra foi repetido diversas vezes de forma a permitir todas as medidas em várias temperaturas.

#### 4.7 Tratamento de Dados Experimentais Obtidos nas Medidas de CAP

Para cada uma das amostras foram efetuadas aquisições simultâneas de 30 espectros de coincidências gama-gama atrasadas (24 espectros de  $90^\circ$  e 6 de  $180^\circ$  entre os detectores) durante um tempo de aproximadamente 12 horas. Como forma ilustrativa, a figura 4.7 apresenta um dos espectros obtido. As medidas de CAP em ambos os casos foram realizadas em temperaturas na faixa entre 10 K e 400 K.

Cada espectro apresenta no eixo das ordenadas o número de coincidências entre  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$  e no eixo das abcissas o tempo decorrido entre a detecção destas radiações. Na prática, o tempo total considerado de cada espectro é de cerca de dez meias-vidas do estado intermediário do núcleo de prova utilizado no experimento (tabela 4.1). O início do espectro (tempo zero) é deslocado à direita por meio de um cabo de atraso adicionado entre a saída do circuito de coincidência do sinal “stop” e a entrada correspondente do TAC. Este pequeno atraso é de cerca de 10% do valor do “time range”.



**Figura 4.7** – Espectro típico de coincidências entre  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$ .

Cada espectro apresenta no eixo das ordenadas o número de coincidências entre  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$  e no eixo das abscissas o tempo decorrido entre a detecção destas radiações. Na prática, o tempo total considerado de cada espectro é de cerca de dez meias-vidas do estado intermediário do núcleo de prova utilizado no experimento (tabela 4.1). O início do espectro (tempo zero) é deslocado à direita por meio de um cabo de atraso adicionado entre a saída do circuito de coincidência do sinal “stop” e a entrada correspondente do TAC. Este pequeno atraso é de cerca de 10% do valor do “time range”.

Além das coincidências “verdadeiras” originadas do mesmo núcleo, o espectro apresenta também as coincidências “acidentais” que correspondem aos pares de raios gama “start” e “stop” não pertencentes ao mesmo núcleo. As coincidências acidentais têm em média o mesmo número de eventos para todos os canais de espectro e estão inseridos na base destes espectros (linha horizontal). O número de coincidências acidentais é calculado pela média aritmética das contagens armazenadas nos canais de uma região escolhida antes do “prompt” e a região final do espectro que apresente contagem próxima. Excluindo-se as coincidências acidentais do espectro, determina-se a função de perturbação experimental através da expressão 4.6.

$$R(t) = A_{22}G_{22}(t) = 2 \cdot \left[ \frac{W(180^\circ, t) - W(90^\circ, t)}{W(180^\circ, t) + 2W(90^\circ, t)} \right] \quad (4.6)$$

Os termos  $W(180^\circ, t)$  e  $W(90^\circ, t)$  são definidos pelas equações 4.7 e 4.8 e são calculados pela média geométrica [1] dos valores acumulados das contagens no canal calibrado no tempo  $t$  para os pares de detectores em  $180^\circ$  e  $90^\circ$ , respectivamente.

$$W(180^\circ, t) = \sqrt[6]{C_1(180^\circ) * \dots * C_6(180^\circ)} \quad (4.7)$$

$$W(90^\circ, t) = \sqrt[24]{C_1(90^\circ) * \dots * C_{24}(90^\circ)} \quad (4.8)$$

Onde  $C_n (180^\circ, 90^\circ)$  representa o número de coincidências verdadeiras nos respectivos ângulos. Os espectros de coincidência foram reduzidos utilizando-se o programa TDPAC, desenvolvido no LIH. A partir da curva  $R(t)$  é possível obter os parâmetros hiperfinos através de um ajuste por mínimos quadrados não lineares dos dados experimentais através do programa PACFIT, desenvolvido na Universidade de Bonn, Alemanha. Os parâmetros obtidos são: a frequência de Larmor ( $\omega_L$ ) que permite determinar o campo hiperfino magnético (interação magnética), e a frequência quadrupolar ( $\nu_Q$ ) e o parâmetro de assimetria ( $\eta$ ) que permitem determinar o valor de  $V_{ZZ}$  (interação elétrica).

## 5. RESULTADOS EXPERIMENTAIS E DISCUSSÕES

### 5.1 Calibração em Tempo

Inicialmente foi realizada a calibração em tempo do espectrômetro de CAP seguindo os procedimentos descritos na sessão 4.1. Os valores obtidos, conforme o núcleo de prova e o correspondente “range” do TAC, são apresentados na tabela 5.1.

*Tabela 5.1 – Valores obtidos para a calibração em tempo do espectrômetro de CAP.*

Núcleo de Prova	Range - TAC	Calibração
$^{140}\text{La} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$	100 ns	0,102(1) ns/canal
$^{181}\text{Hf} \rightarrow ^{181}\text{Ta}$	200 ns	0,1987(5) ns/canal
$^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$	1000 ns	1,000(2) ns/canal

O erro apresentado pelo calibrador de tempo Ortec modelo 462 é de 0,005% (ref. manual do fabricante) para a faixa de “range” selecionada. Entretanto, este valor é desprezível em comparação com a incerteza dos valores experimentais.

### 5.2 Não Linearidade em Tempo

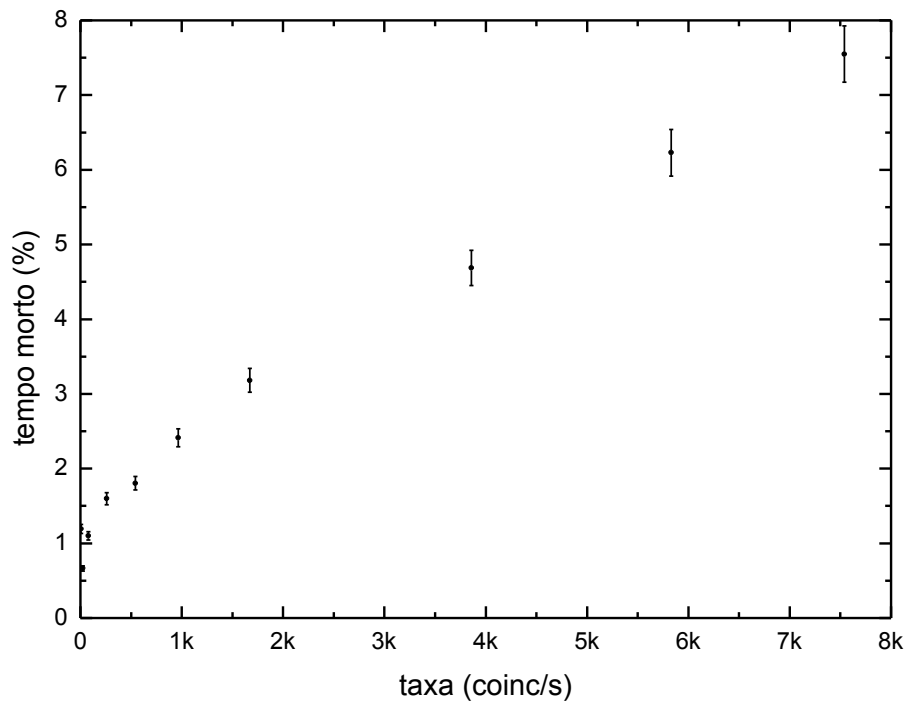
Os valores determinados de linearidade em tempo do espectrômetro de CAP utilizando os procedimentos descritos na sessão 4.2 são apresentados na tabela 5.2. O resultado mostra a média das medidas que foram feitas para todos os trinta espectros. Nestes resultados estão considerados os valores da linearidade integral e diferencial dados pelos fabricantes do TAC ( $<\pm 0,1\%$  e  $<\pm 1\%$ , respectivamente) e do ADC ( $<\pm 0,025\%$  e  $<\pm 0,9\%$ , respectivamente).

*Tabela 5.2 – Valores obtidos para linearidade em tempo do espectrômetro de CAP.*

Núcleo de Prova	Range - TAC	Linearidade (%)
$^{140}\text{La} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$	100 ns	1,067(2)
$^{181}\text{Hf} \rightarrow ^{181}\text{Ta}$	200 ns	0,240(1)
$^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$	1000 ns	0,258(3)

### 5.3 Tempo Morto

O tempo morto do MCA do espectrômetro de seis detectores foi determinado utilizando-se o procedimento descrito na seção 4.4., e os resultados são apresentados no gráfico da figura 5.1.



**Figura 5.1** – Variação do tempo morto do MCA do espectrômetro de seis detectores em relação à taxa de coincidências  $\gamma$ - $\gamma$ .

Os resultados mostram uma variação praticamente linear do tempo morto em relação ao aumento da taxa de coincidências  $\gamma$ - $\gamma$ , permanecendo abaixo de 10% para o valor máximo de contagens.

### 5.4 Resolução em Tempo

A resolução em tempo, utilizando “range” de 100 ns, calculada para a média dos trinta espectros de coincidências é de  $1,057 \pm 0,091$  ns. A tabela 5.3 mostra os valores individuais de resolução em tempo obtidos para cada um dos espectros. As energias de  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$  foram ajustadas através da fonte de  $^{140}\text{La} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$ , conforme descrito na seção 4.3.

**Tabela 5.3** – Valores obtidos para as medidas de resolução em tempo dos espectros individuais para “range” de 100 ns e núcleo de  $^{60}\text{Co}$  com energias de  $\gamma_1$  e  $\gamma_2$  ajustadas em 328 keV e 487 keV, correspondentes a cascata-gama no decaimento do  $^{140}\text{La}$ - $^{140}\text{Ce}$ .

<b>Espectro</b>	<b>Detectores</b>	<b>Canais</b>	<b>Resolução (ns)</b>
1	Ab	11,05	1,14
2	Ac	11,11	1,14
3	Ad	10,35	1,07
4	Ae	10,73	1,10
5	Af	10,76	1,11
6	Ba	10,67	1,10
7	Bc	11,82	1,22
8	Bd	10,57	1,09
9	Be	11,63	1,20
10	Bf	11,05	1,14
11	Ca	8,21	0,85
12	Cb	9,79	1,01
13	Cd	10,14	1,04
14	Ce	10,37	1,07
15	Cf	9,83	1,01
16	Da	10,15	1,05
17	Db	10,28	1,06
18	Dc	10,91	1,12
19	De	11,16	1,15
20	Df	10,64	1,10
21	Ea	9,70	1,00
22	Eb	10,74	1,11
23	Ec	10,85	1,12
24	Ed	10,34	1,06
25	Ef	10,33	1,06
26	Fa	8,50	0,88
27	Fb	9,43	0,97
28	Fc	9,87	1,02
29	Fd	8,89	0,92
30	Fe	8,27	0,85

Observamos que a resolução em tempo dos espectros individuais é ligeiramente diferente de um para outro. Isto ocorre devido a vários fatores:

- a) Os conjuntos detector-fotomultiplicadora apresentam características um pouco distintas entre si.
- b) As bases das fotomultiplicadoras utilizadas, embora sejam similares para todos os conjuntos detector-fotomultiplicadora, podem apresentar diferenças que correspondem, principalmente, às tolerâncias dos componentes eletrônicos utilizados.
- c) A tensão de polarização é diferente para cada fotomultiplicadora.
- d) Os discriminadores de fração constante (CFD), utilizados para os pulsos rápidos dos detectores, apresentam valores individuais de ajuste de discriminação.

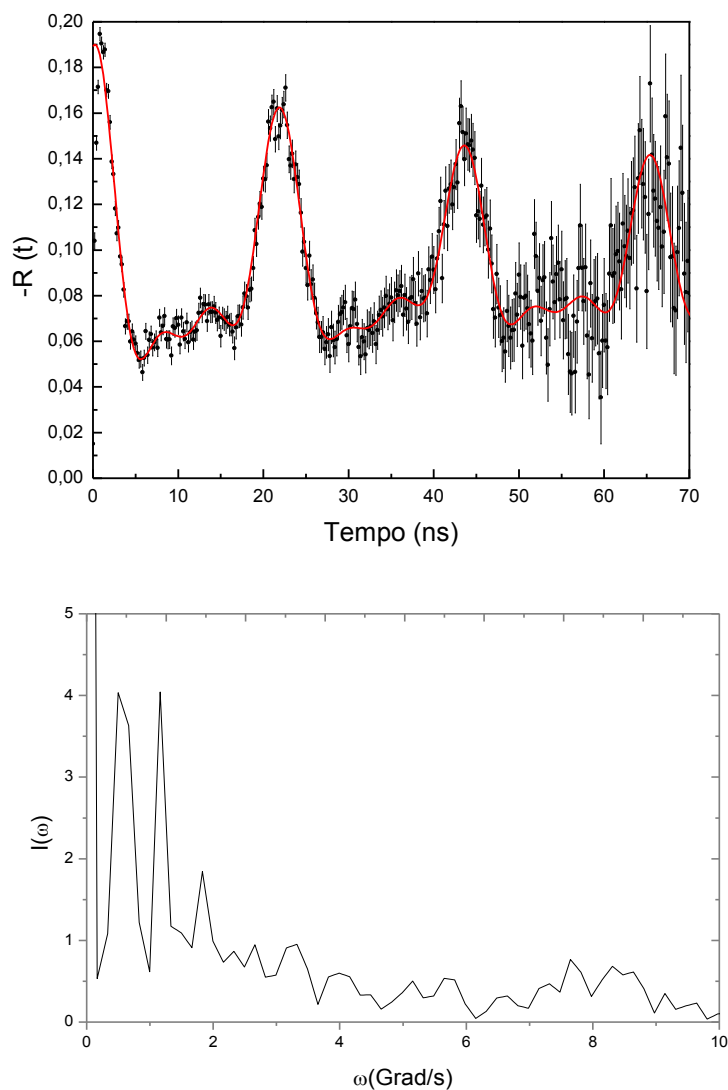
## 5.5 Medidas de CAP Para Teste do Espectrômetro

Algumas medidas de CAP foram realizadas para comprovar bom funcionamento do espectrômetro de seis detectores. As medidas se referem aos sistemas físicos  $^{181}\text{Ta}(\text{Hf})$ ,  $^{111}\text{Cd}(\text{Cd})$ ,  $^{181}\text{Ta}(\text{Ni})$  e  $^{111}\text{Cd}(\text{Ni})$ , nos quais os parâmetros hiperfinos são muito bem conhecidos da literatura.

### 5.5.1 Interação Quadrupolar do $^{181}\text{Ta}$ em Háfênio

Os resultados encontrados para a amostra de  $^{181}\text{Ta}$  em háfênio metálico mostram que este material possui gradiente de campo elétrico com parâmetro de simetria axial, diferente de zero. A estrutura cristalina do Hf na forma metálica é hexagonal e, portanto  $\eta$  deve ser igual à zero. Esta assimetria observada é devido à impureza de zircônio presente na amostra de cerca de 2-3% pois o Zr possui grande afinidade química com o háfênio [39]. Atribuímos a diferença entre os valores de  $\nu_Q$  e  $\eta$  obtidos neste trabalho e os apresentados na literatura, à concentração diferente da impureza de Zr nas amostras utilizadas. A figura 5.2 mostra o espectro de CAP obtido a temperatura ambiente e sua correspondente transformada de Fourier. Os parâmetros determinados de frequência quadrupolar ( $\nu_Q$ ) e anisotropia ( $\eta$ ) foram:

$$\begin{aligned} \nu_Q &= 306,9(2) \text{ MHz e } \eta = 0,13(1) && \text{(presente trabalho)} \\ \nu_Q &= 311,5(5) \text{ MHz e } \eta = 0,26(1) && \text{([39])} \end{aligned}$$



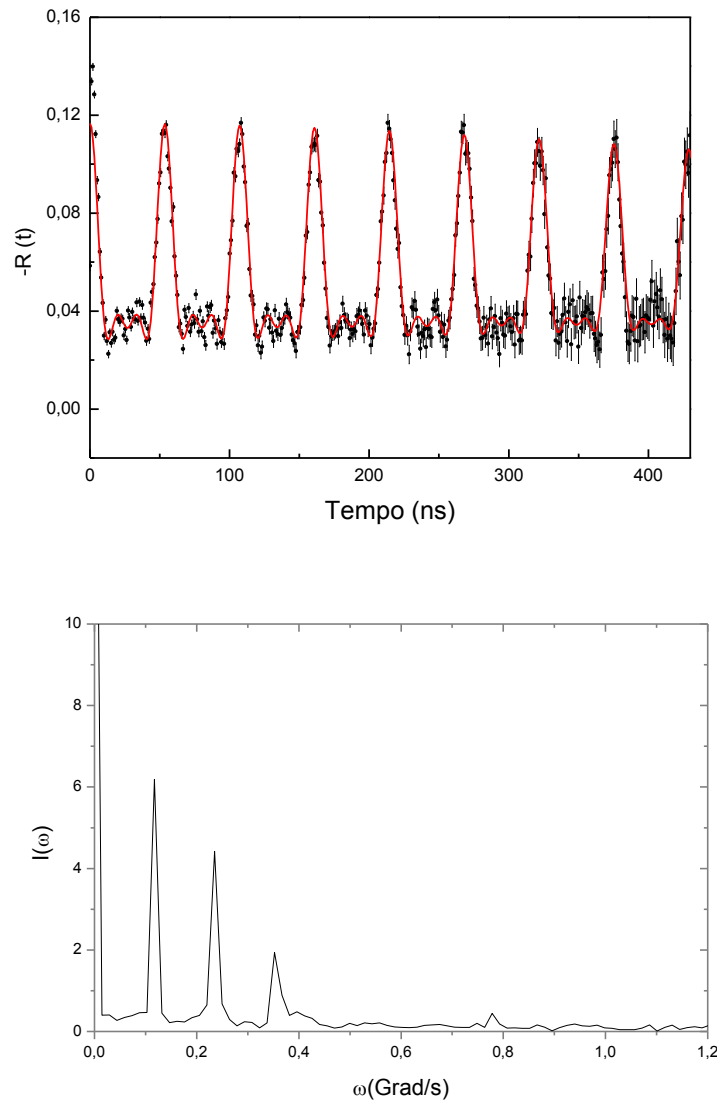
**Figura 5.2** – Espectro de CAP do núcleo de prova  $^{181}\text{Ta}$  no háfnio a 293 K e sua respectiva transformada de Fourier.

### 5.5.2 Interação Quadrupolar do $^{111}\text{Cd}$ em Cádmi

A figura 5.3 mostra o espectro de CAP da amostra  $^{111}\text{Cd}(\text{Cd})$  e sua respectiva transformada de Fourier. Os parâmetros hiperfinos obtidos a partir da análise deste espectro foram:

$$\begin{aligned} v_Q &= 124,3(2) \text{ MHz e } \eta = 0 && \text{(presente trabalho)} \\ v_Q &= 124,7(5) \text{ MHz e } \eta = 0 && \text{([40])} \end{aligned}$$





**Figura 5.3** – Espectro de CAP do núcleo de prova  $^{111}\text{Cd}$  em cádmio a 293 K e sua respectiva transformada de Fourier.

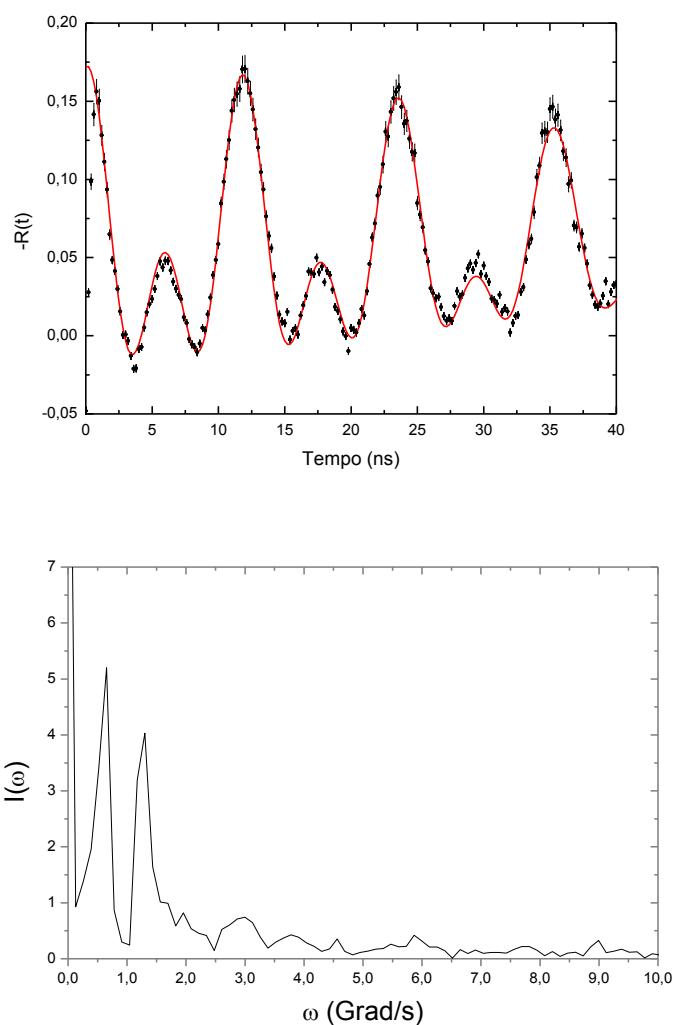
O presente resultado está de acordo a ref. [40]. O cádmio metálico possui uma estrutura cristalina hexagonal que apresenta um GCE axialmente simétrico com  $\eta = 0$ . De forma esperada, as frequências  $\omega_1$ ,  $\omega_2$ , e  $\omega_3$  estão relacionadas entre si em uma razão de 1 : 2 : 3 [1]. O resultado deve-se, sobretudo, ao alto teor de pureza do cádmio (99.99%) e à adequada distribuição do  $^{111}\text{In}$  no cádmio.

### 5.5.3 Interação Magnética do $^{181}\text{Ta}$ em Níquel

A figura 5.4 mostra o espectro de CAP da amostra  $^{181}\text{Ta}(\text{Ni})$  e sua respectiva transformada de Fourier. Os parâmetros hiperfinos obtidos a partir da análise deste espectro foram:

$$\omega_L = 535,1(2) \text{ Mrad/s}, B_{\text{hf}} = -88,6(1) \text{ kG} \quad (\text{presente trabalho})$$

$$\omega_L = 542,8(9) \text{ Mrad/s}, B_{\text{hf}} = -89,9(1,0) \text{ kG} \quad ([41])$$



**Figura 5.4** – Espectro de CAP do núcleo de prova  $^{181}\text{Ta}$  no níquel a 293 K e sua respectiva transformada de Fourier.

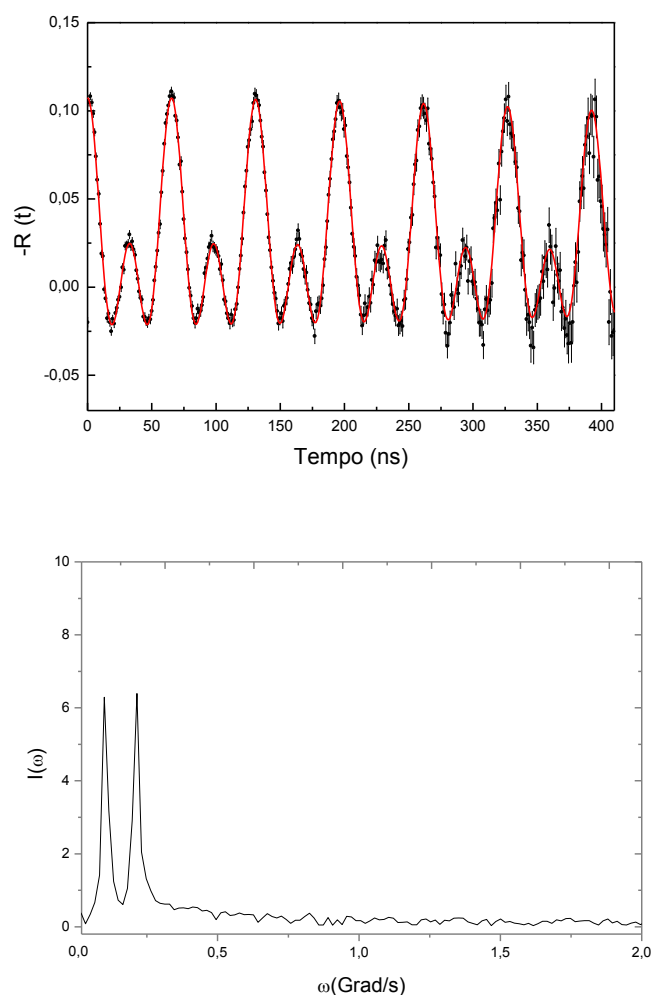
Os resultados encontrados indicam, através das frequências  $\omega_L$  e  $2\omega_L$ , que o campo hiperfino magnético no interior da amostra de  $^{181}\text{Hf}(\text{Ni})$  é aleatoriamente orientado.

#### 5.5.4 Interação Magnética do $^{111}\text{Cd}$ em Níquel

A figura 5.5 mostra o espectro de CAP da amostra  $^{111}\text{Cd}(\text{Ni})$  e sua respectiva transformada de Fourier. Os parâmetros hiperfinos obtidos a partir da análise deste espectro foram:

$$\omega_L = 97,90(2) \text{ Mrad/s}, B_{\text{hf}} = 65,5(5) \text{ kG} \quad (\text{presente trabalho})$$

$$\omega_L = 98,05(10) \text{ Mrad/s}, B_{\text{hf}} = 66,9(3) \text{ kG} \quad ([42])$$



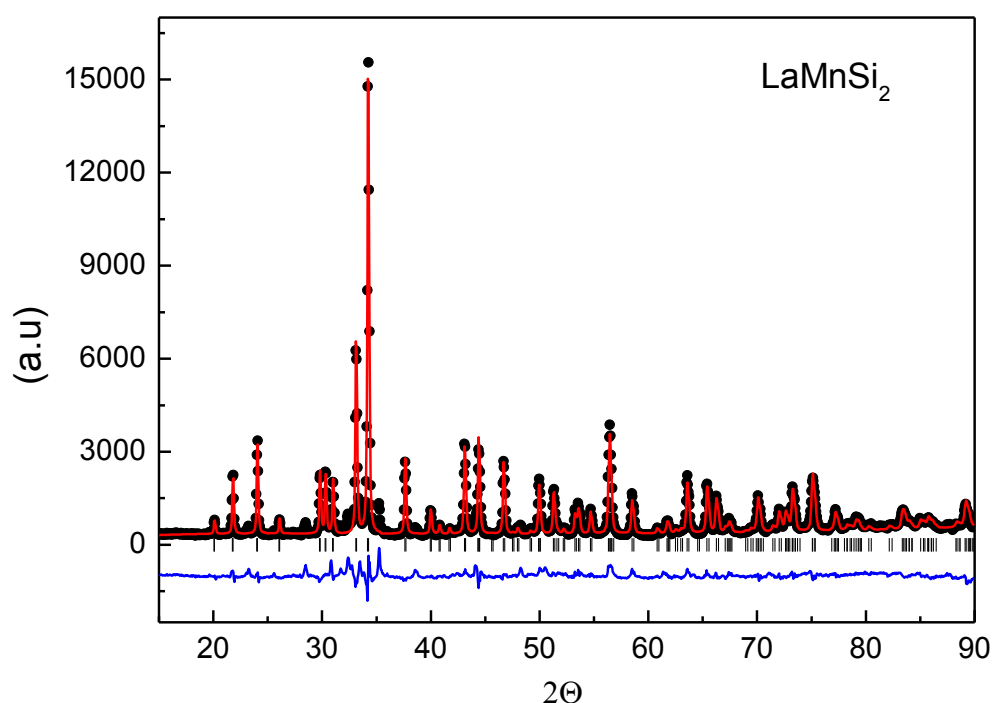
**Figura 5.5** – Espectro de CAP do núcleo de prova  $^{111}\text{Cd}$  em níquel a 293 K e sua respectiva transformada de Fourier.

Os resultados dos experimentos descritos acima mostram bom funcionamento do espectrômetro. Além das medidas realizadas nos sistemas físicos conhecidos da literatura, também foram realizadas medidas na liga  $\text{LaMnSi}_2$  com núcleos de prova  $^{111}\text{Cd}$

e  $^{140}\text{Ce}$  para estudar interações magnéticas neste composto intermetálico. Os resultados são apresentados na seção 5.6.

### 5.6 Medidas de CAP no Composto Intermetálico $\text{LaMnSi}_2$ .

Foram realizadas medidas de campo hiperfino magnético ( $B_{\text{hf}}$ ) no composto intermetálico  $\text{LaMnSi}_2$  utilizando a técnica CAP e os núcleos de prova  $^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$  e  $^{140}\text{La} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$ . Após o processo de confecção, conforme descrito na seção 4.6.2, a amostra foi caracterizada por difração de raios-x. Os dados obtidos foram analisados pelo método Rietveld por meio do programa Rietica [38]. A figura 5.6 mostra o difratograma de raios-x do composto  $\text{LaMnSi}_2$ . Pela análise pode ser observada apenas uma fase correspondente à estrutura tetragonal, estando de acordo com valores obtidos da referência [46].



**Figura 5.6** – Padrão de difração de raios X para o composto  $\text{LaMnSi}_2$ . A linha vermelha representa o padrão calculado com o método Rietveld, a linha azul representa a diferença entre o resultado experimental e o ajustado, e os traços em preto representam a posição dos picos de acordo com a literatura [46].

### 5.6.1 Interação Hiperfina do $^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$ no Composto Intermetálico $\text{LaMnSi}_2$ .

Foram realizadas medidas de campo hiperfino magnético ( $B_{\text{hf}}$ ) no composto intermetálico  $\text{LaMnSi}_2$  utilizando a técnica CAP e o núcleo de prova  $^{111}\text{In}$ - $^{111}\text{Cd}$ . As medidas de CAP foram feitas em uma faixa de temperatura entre 50 K e 410 K. Os resultados das medidas de CAP foram analisados por meio de um modelo que inclui interação combinada, quadrupolo elétrica e dipólo magnético. Foi observada apenas uma frequência quadrupolar em toda faixa de temperatura com pouca variação. Também foi observada uma única interação magnética abaixo da temperatura de Curie ( $T_c$ ). Alguns dos espectros de CAP para o  $^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$  no composto  $\text{LaMnSi}_2$  medido em diferentes temperaturas são apresentados na figura 5.7.

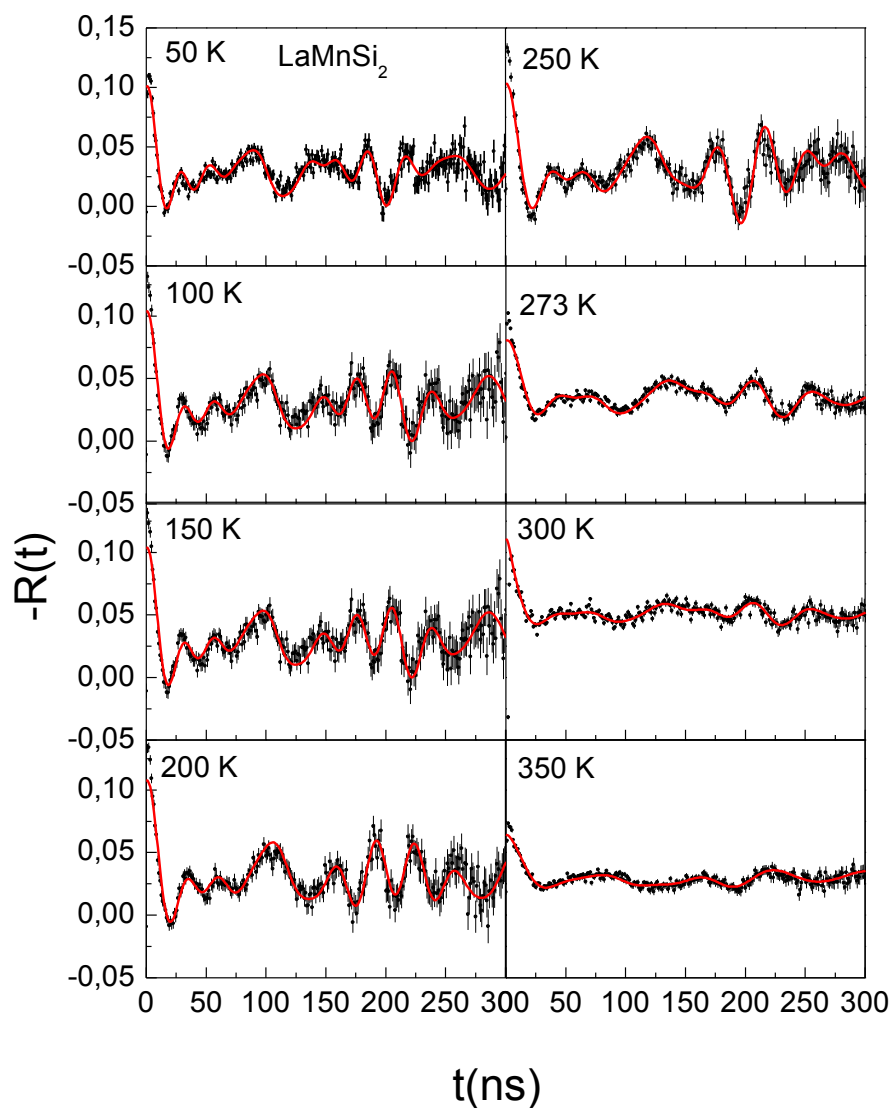
Na análise dos espectros de CAP supõe-se que a sonda  $^{111}\text{Cd}$  substitui os átomos de manganês. Justifica-se pelos seguintes argumentos:

- Os recentes resultados de CAP para os compostos  $\text{LaMn}_2(\text{Si,Ge})_2$  e  $\text{CeMn}_2(\text{Si,Ge})_2$  [43-45] mostram que a fração majoritária de  $^{111}\text{Cd}$  substitui os átomos de manganês.
- No caso do composto  $\text{CeMn}_2(\text{Si,Ge})_2$ , cálculos confirmam esta teoria [47].

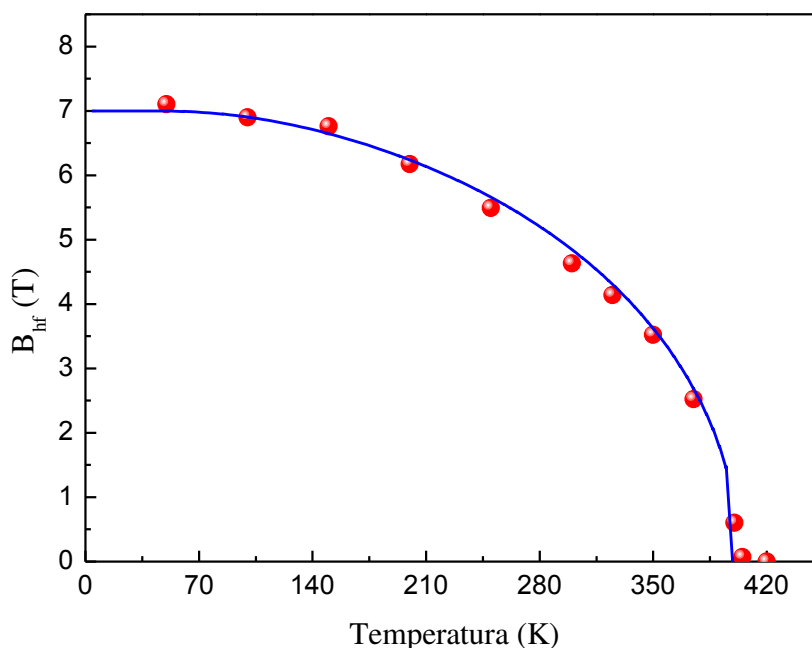
Considerando que a estrutura cristalina do composto  $\text{LaMnSi}_2$  é muito similar à estrutura do  $\text{LaMn}_2\text{Si}_2$ , é razoável assumir que o  $^{111}\text{Cd}$  substitui os átomos de Mn no  $\text{LaMnSi}_2$  ao invés dos átomos de La ou Si. A curva de variação do campo hiperfino magnético em função da temperatura pode ser vista na figura 5.8. Os dados experimentais são bem ajustados pela função de Brillouin para a magnetização do hospedeiro com spin 5/2. A fim de determinar o valor preciso da temperatura de Curie ( $T_c$ ), os valores experimentais do campo hiperfino próximo à temperatura de transição foram ajustados pela bem conhecida função  $B_{\text{hf}} = B(0) \cdot (1 - T/T_c)^\beta$  para materiais magnéticos. Nesta expressão,  $\beta$  é o expoente crítico e  $B(0)$  é o campo hiperfino a 0 K. O campo hiperfino magnético medido a 50 K foi determinado em  $B_{\text{hf}} = 7.1(1)$  T. Os valores resultantes para  $\beta$  e  $T_c$  são 0.43(1) e 401(1) K, respectivamente.

O valor de  $T_c$  determinado é consideravelmente alto se comparado ao valor anterior de 386 K, determinado por meio de medida de magnetização [46]. O valor do expoente  $\beta$  é próximo ao dos compostos  $\text{LaMn}_2(\text{Si,Ge})_2$  e  $\text{CeMn}_2(\text{Si,Ge})_2$  e indica, portanto, que a natureza de ordem magnética é muito similar nos dois casos. Como o núcleo de prova  $^{111}\text{Cd}$  é um elemento-s-p e não magnético, este apenas sente interação

magnética devido aos átomos de Mn vizinhos através de interação Mn-Mn de longo alcance.



**Figura 5.7** – Funções de perturbação para  $\text{LaMnSi}_2$  com o núcleo de prova  $^{111}\text{Cd}$  em várias temperaturas. As linhas sólidas correspondem ao ajuste de mínimos quadrados dos dados experimentais às funções teóricas.



**Figura 5.8** – Dependência do campo hiperfino magnético em função da temperatura do  $^{111}\text{Cd}$  em  $\text{LaMnSi}_2$ . A curva sólida representa o ajuste à função de Brillouin.

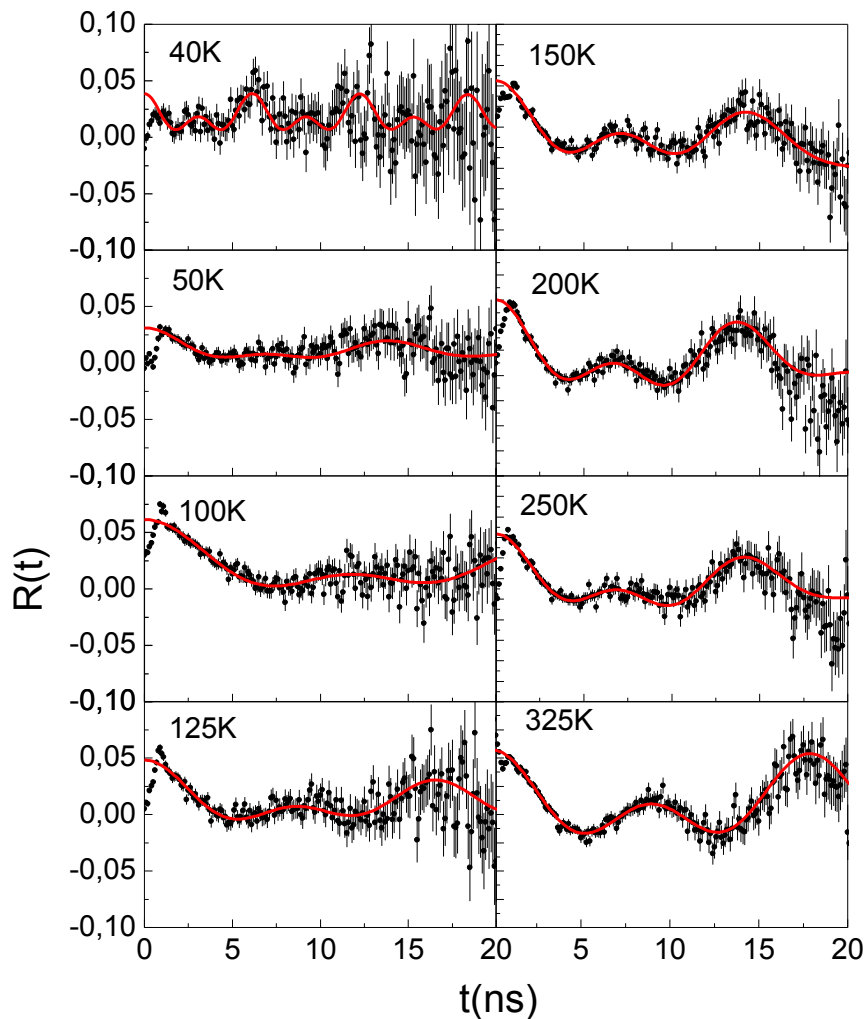
(Os resultados destas medidas foram publicados: *Hiperfine Field at Mn in the Intermetallic Compound  $\text{LaMnSi}_2$  Measured by PAC Using  $^{111}\text{Cd}$  Nuclear Probe. *Hyperfine Interactions*, 231: 95-99, 2015).*

### 5.6.2 Interação Hiperfina do $^{140}\text{La} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$ no Composto Intermetálico $\text{LaMnSi}_2$ .

Os resultados das medidas de CAP após análise mostraram apenas interação de dipolo magnético em virtude do pequeno momento de quadrupolo elétrico nuclear (Q) que a sonda  $^{140}\text{La} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$  possui para o estado nuclear intermediário. O espectro de CAP mostra uma única e bem definida interação magnética. Os espectros de CAP para  $^{140}\text{La} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$  no composto de  $\text{LaMnSi}_2$  medido a diversas temperaturas são mostrados na figura 5.9.

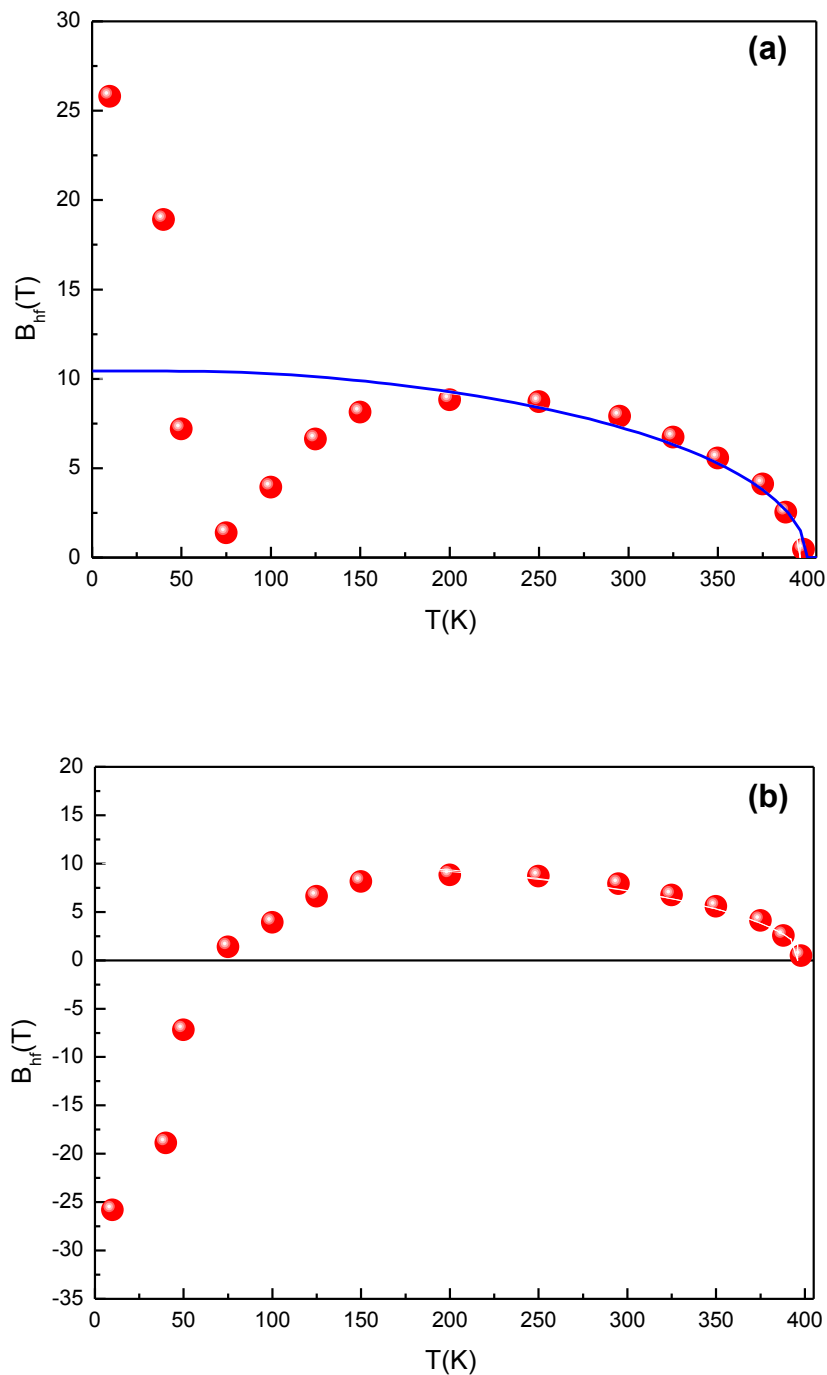
Como o núcleo de prova  $^{140}\text{Ce}$  é produzido por decaimento  $\beta^-$  a partir do  $^{140}\text{La}$  na irradiação da própria amostra, é esperado que ele venha a ocupar os sítios dos átomos do lantânio no  $\text{LaMnSi}_2$ . O comportamento do campo hiperfino magnético  $B_{hf}$  em função da temperatura é apresentado na figura 5.10. Pode-se observar que o campo hiperfino

magnético tem um comportamento anômalo e não segue a função normal de Brillouin para magnetização do material hospedeiro com spin 5/2. O campo magnético aumenta com a diminuição da temperatura até 200 K, diminui até 75 K e depois volta a aumentar novamente em módulo. Hipoteticamente, este aumento pode ser negativo devido ao acoplamento do  $^{140}\text{Ce}$ . Assim, o campo hiperfino magnético sofre inversão de polaridade saturando-se próximo a 0K. A temperatura de transição ferromagnética ( $T_c$ ) do  $\text{LaMnSi}_2$  foi determinada em 402(1) K e está em acordo com o valor determinado pelas medidas de CAP com núcleo de prova  $^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$ .



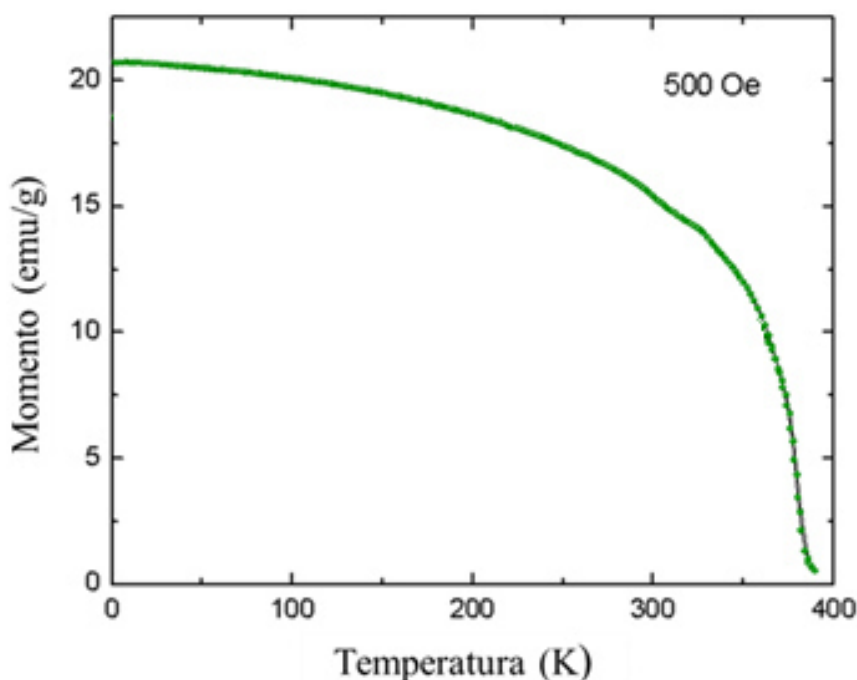
**Figura 5.9** – Funções de perturbação para  $\text{LaMnSi}_2$  com o núcleo de prova  $^{140}\text{Ce}$  em várias temperaturas. As linhas sólidas correspondem ao ajuste de mínimos quadrados dos dados experimentais às funções teóricas.





**Figura 5.10** – Dependência do campo hiperfino magnético em função da temperatura do  $^{140}\text{Ce}$  em  $\text{LaMnSi}_2$ . Em (a) o gráfico mostra medida do campo hiperfino magnético a baixas temperaturas com valores do campo em módulo. A curva sólida representa o ajuste à função de Brillouin. Em (b) gráfico mostra a hipótese da contribuição do campo hiperfino magnético devido ao acoplamento do Ce a baixas temperaturas. As medidas foram feitas com um magnetômetro MPSM – SQUID.

Os resultados das medidas de magnetização realizadas com um magnetômetro MPSM – SQUID são mostrados na figura 5.11. Os resultados obtidos da magnetização não mostram as anormalidades observadas a baixas temperaturas do campo hiperfino verificadas nas medidas de CAP. Pode-se observar que o campo hiperfino magnético tem um comportamento anômalo e não segue a função normal de Brillouin para magnetização do material hospedeiro com spin 5/2. O comportamento anômalo da curva do campo hiperfino em função da temperatura contrasta com as medidas feitas no mesmo composto utilizando a sonda  $^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$  [42], em que o campo hiperfino apresenta um comportamento normal de magnetização do material hospedeiro com spin 5/2.



**Figura 5.11** – Resultado da medida de magnetização com campo externo de 500 Oe.

A primeira evidência de campo hiperfino anômalo causado pela impureza Ce em Gd foi obtida por Thiel et.al. [47] em uma medida de CAP com sonda  $^{140}\text{La}-^{140}\text{Ce}$ . Estes autores atribuíram esta anomalia ao estado de valência flutuante do Ce. Desde então, um grande número de compostos intermetálicos binários e ternários magnéticos contendo elementos de terras raras têm sido investigados com utilização da sonda  $^{140}\text{La}-^{140}\text{Ce}$  [47 - 50]. Em poucos casos o comportamento anômalo do campo hiperfino tem sido observado em baixas temperaturas. Estas anomalias do campo hiperfino têm sido atribuídas a

contribuição da camada eletrônica 4f do Ce. O fenômeno está intimamente relacionado com o fato da energia do nível 4f do Ce ser bastante próxima das energias dos níveis 5d e 6s de valência e, conseqüentemente, apenas pequenas trocas de energia são necessárias para alterar a relativa ocupação destes estados eletrônicos. Este fato faz com que os sistemas com a impureza Ce sejam altamente sensíveis aos efeitos externos, tais como temperatura, pressão e campos eletromagnéticos.

Em  $\text{LaMnSi}_2$ , o comportamento anômalo do campo hiperfino em função da temperatura pode ser atribuído a uma interação dos elétrons-f do átomo da sonda Ce cujo spin é polarizado pelo campo magnético da sub-rede de Mn e contribui para o efetivo campo hiperfino. Abaixo da temperatura de transição ferromagnética  $T_c = 402$  K e até 200 K, o campo hiperfino observado em  $^{140}\text{Ce}$  substituindo os átomos de La é principalmente devido a interação magnética de longo alcance com momento local de Mn, como uma interação do tipo RKKY, e segue a função Brillouin normal.

Entre 200 K e 75 K a polarização dos elétrons-f de Ce pela sub-rede do Mn aparentemente resulta em alinhamento dos spins dos elétrons-f de forma antiparalela com os spins dos átomos de manganês, reduzindo de forma gradual o campo magnético efetivo em função da temperatura de  $\sim 8.8$  T a 200 K para  $\sim 1.4$  T em  $\sim 75$  K.

Abaixo de 75 K até 10 K, a temperatura mais baixa em que as medições foram feitas, a polarização dos elétrons-f do Ce muda de sinal e os spins agora se alinham paralelamente ao Mn, resultando em um aumento do campo hiperfino com a diminuição da temperatura. Como o sinal do campo hiperfino não foi medido em nosso experimento, outra interpretação é que o valor do campo hiperfino seja negativo e continua diminuindo a baixas temperaturas a partir de 200 K, como foi mostrado na figura 5.10 (b). Uma descrição mais detalhada das interações magnéticas que resultam neste fenômeno exigiria cálculos teóricos. Tais cálculos estão em fase de desenvolvimento no LIH.

*(Os resultados do trabalho: “Hyperfine Field at La in the Intermetallic Compound  $\text{LaMnSi}_2$  Measured by PAC Using  $^{140}\text{Ce}$  Nuclear Probe” foram apresentados na International Conference on Hyperfine Interactions and Their Applications, Leuven, Belgium, July 3-8, 2016).*

## 6. CONCLUSÕES

Neste trabalho foi projetado e construído um espectrômetro de correlação angular gama-gama perturbada diferencial em tempo (CAP) do tipo “lento-rápido” composto por seis detectores cintiladores de BaF<sub>2</sub>. Este espectrômetro foi instalado no Laboratório de Interações Hiperfinas (LIH) do CRPq/IPEN e possui a capacidade de gerar 30 espectros simultâneos de coincidências  $\gamma$ - $\gamma$ , 18 espectros a mais que o espectrômetro de quatro detectores anteriormente instalado. Apesar de ambos possuírem os mesmos tipos de detectores e uma configuração do tipo “lento-rápido” semelhante, o espectrômetro de 6 detectores possui um sistema de aquisição dos dados das coincidências  $\gamma$ - $\gamma$  diferenciado. O espectrômetro de quatro detectores do LIH utiliza, como a maioria dos equipamentos instalados nos principais centros de referência em pesquisas CAP, analisador multicanal (MCA) e programa de aquisição de dados comerciais para realizar a aquisição e tratamento dos dados experimentais. No presente trabalho, e como uma das motivações, optou-se pela confecção de um MCA modular próprio composto por um Conversor Análogo Digital Ultra Rápido (“fast” ADC), uma placa de entradas e saídas digitais (I/O board) e uma unidade de seleção de coincidência (roteador ou “router”), também desenvolvida no LIH. O programa para gerenciar o funcionamento do conjunto foi desenvolvido através do tradicional ambiente gráfico de desenvolvimento de sistemas de instrumentação LabVIEW 8.5 da National Instruments. As principais características observadas nesta estrutura de aquisição são: versatilidade, funcionalidade e capacidade de processar altas taxas de coincidência  $\gamma$ - $\gamma$  (fator de dois em comparação ao espectrômetro de quatro detectores), qualidade desejável para utilização de núcleos de prova de meias-vidas curtas como, por exemplo, o  $^{140}\text{La} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$ . Adicionalmente, este espectrômetro pode ser facilmente atualizado pela substituição do ADC e da placa de I/O, além do próprio computador e do programa do MCA, mantendo a eficiência do sistema. Estas são qualidades muito interessantes, levando-se em conta os aspectos políticos e econômicos brasileiros que, muitas vezes, implicam em dificuldades de aquisição e manutenção de equipamentos para pesquisas científicas.

Os resultados dos testes do espectrômetro demonstram que os valores de resolução, linearidade em tempo e tempo morto estão dentro dos padrões esperados. Não foram observadas distorções, limitações ou interferências externas nos espectros gerados. Os valores experimentais obtidos a partir das medidas CAP bem conhecidas foram comparados com resultados correspondentes da literatura, apresentando boa concordância.

As medidas CAP realizadas com o núcleo de prova  $^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$  consolidaram a qualidade da amostra de  $\text{LaMnSi}_2$  preparada em nosso laboratório. A partir da análise dos dados CAP ficou nítido que no sítio principal o  $^{111}\text{Cd}$  substitui a posição do átomo de Mn. O composto apresentou comportamento do campo hiperfino magnético em função da temperatura de acordo com a curva de Brillouin para a magnetização do material hospedeiro com spin  $5/2$ . Desta forma foi definido o  $B_{\text{hf}}(0) = 7.1(1)\text{T}$  na rede magnética do Mn e  $T_C = 401(1)\text{K}$  com boa precisão para este composto.

A análise das medições realizadas com o núcleo de prova  $^{140}\text{La} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$  mostrou apenas um sítio magnético associado ao  $^{140}\text{Ce}$  substituindo o átomo de La na rede cristalina, já que o núcleo de prova  $^{140}\text{Ce}$  é sensível apenas a interação magnética. As medidas CAP permitiram a determinação da temperatura da transição ferromagnética com precisão, sendo o valor do  $T_C = 402(1)\text{K}$  em concordância com o valor obtido com o núcleo de prova  $^{111}\text{In} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$ . As medidas com o núcleo de prova  $^{140}\text{La} \rightarrow ^{140}\text{Ce}$  apresentaram um comportamento anômalo. Este comportamento anômalo do campo hiperfino em função da temperatura pode ser atribuído a interação dos elétrons-4f do átomo da sonda  $^{140}\text{Ce}$  cujo spin é polarizado pelo campo magnético da subrede do Mn e contribui para o campo hiperfino efetivo.

Além do próprio espectrômetro, cujos resultados mostram funcionamento satisfatório, outras unidades eletrônicas foram construídas para facilitar e contribuir com as medidas CAP, tais como: mini-forno de grafite, divisores de tensão para as válvulas fotomultiplicadores, multiplexadores analógicos, fontes de alimentação e atrasos eletrônicos.

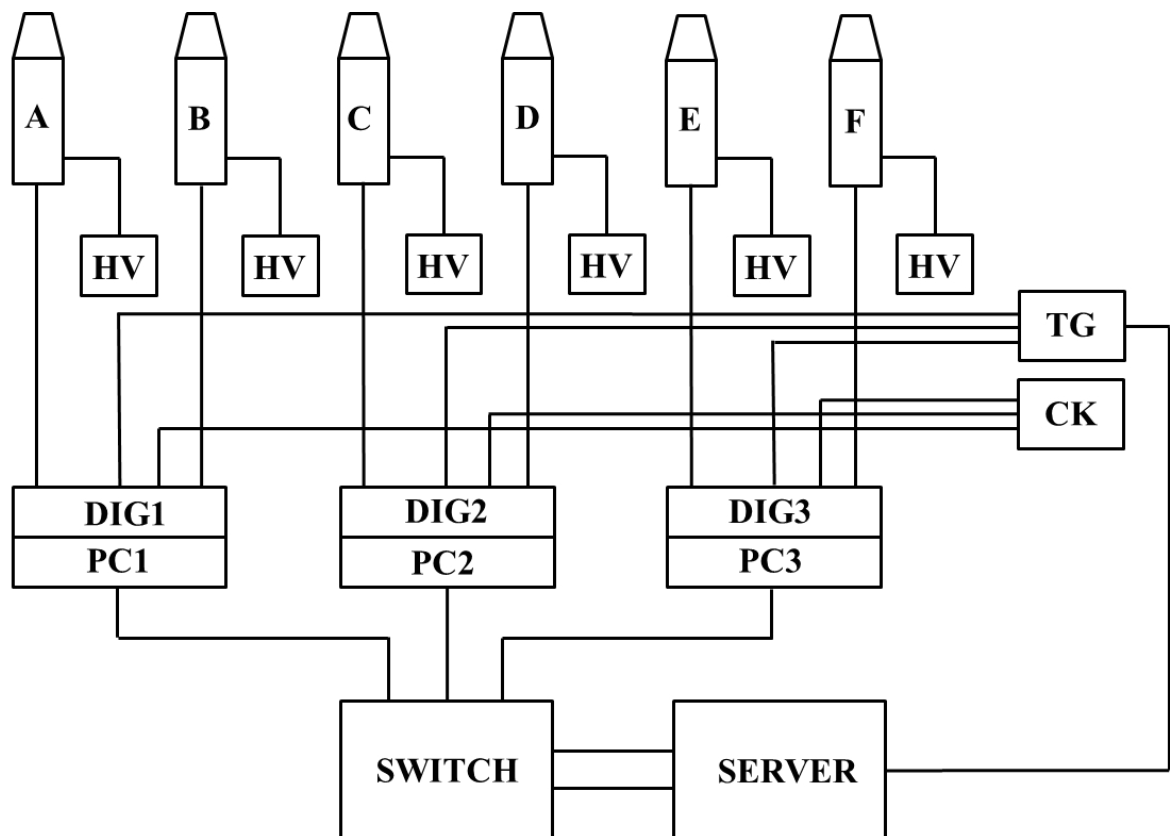
### 6.1 Expectativas Futuras

Atualmente está sendo projetado e construído no LIH um novo espectrômetro em configuração digital constituído por seis detectores de  $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ , cuja estrutura mecânica e diagrama em blocos podem ser observados nas figuras 6.1 e 6.2, respectivamente. Optou-se pelos detectores de  $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$  por sua maior eficiência para detecção gama e uma resolução em tempo comparável aos detectores de  $\text{BaF}_2$ . O desenvolvimento de espectrômetros gama com uso da tecnologia digital demonstra o “estado da arte” destes equipamentos de medidas [51]. O espectrômetro digital dispensa o sistema eletrônico complexo para processamento dos sinais analógicos, tem um custo consideravelmente menor, uma estrutura compacta e aceita uma taxa de contagens mais alta. A expectativa é de operar com uma taxa de coincidências maior que 100.000 c/s. O espectrômetro desenvolvido neste trabalho suporta no máximo 15.000 c/s.



**Figura 6.1** – Foto da estrutura mecânica do novo espectrômetro de seis detectores digital.

O espectrômetro digital que está sendo construído no IPEN será composto por placas digitalizadoras com FPGA modelo N6751 da empresa CAEN. Estas placas são constituídas por um módulo FPGA Altera Cyclone EP3C16 por par de canais e podem operar com 2 ou 4 canais com taxa de amostragem de 2GS/s ou 1 GS/s, respectivamente, e 10 bits de resolução. O digitalizador N6751 possui também uma conexão USB e um “optical link” com taxa de transferência de dados de até 80 MB/s para conexão com uma unidade controladora modelo A2818 para até oito digitalizadores. A figura 6.2 mostra um diagrama de blocos deste digitalizador.

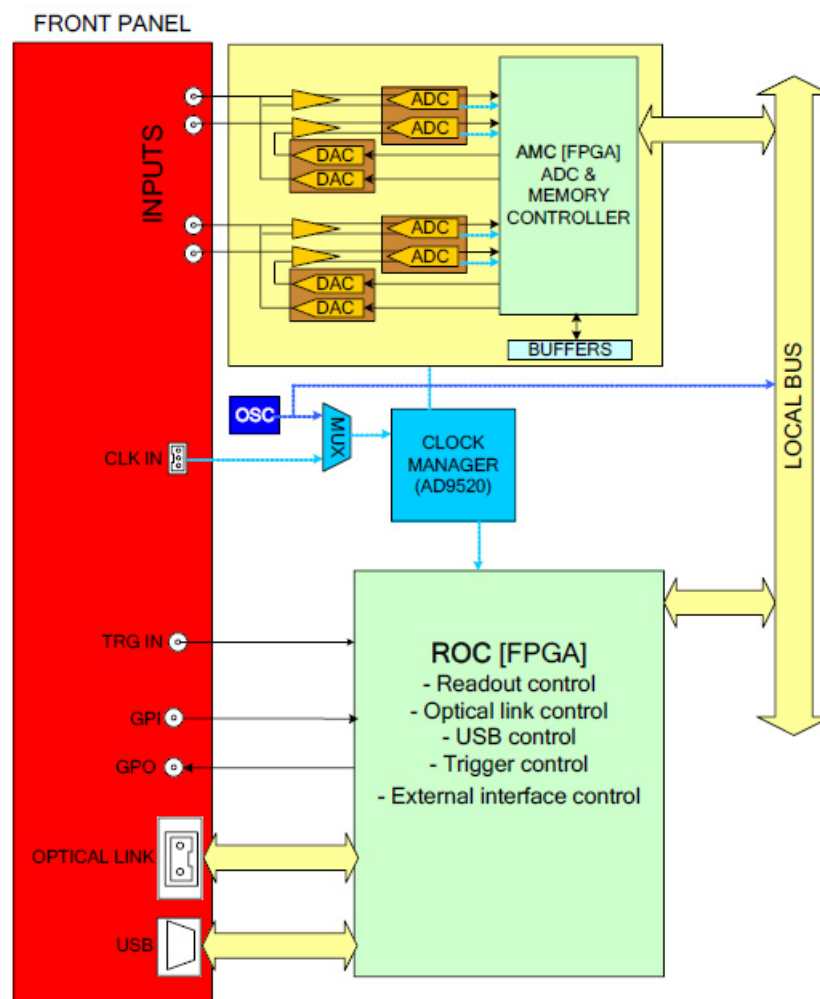


**Figura 6.2** – Diagrama em blocos do novo espectrômetro de seis detectores digital.

Serão utilizadas três placas digitalizadoras (DIG), uma para cada dois detectores. A estrutura mecânica permite um arranjo de quatro ou seis detectores (A, B, C, D, E, F) fixos. O sinal de anodo de cada detector é aplicado aos digitalizadores de alta velocidade. Cada digitalizador é conectado a um computador dedicado (PC) responsável pelo pré-processamento do sinal. Os sinais pré-processados são encaminhados (SWITCH) para um servidor (SERVER) que seleciona e salva os eventos  $\gamma$  relevantes. O servidor também é

responsável pelo controle do sincronismo (TG) entre os digitalizadores. O “clock” dos digitalizadores é gerado externamente (CK).

Este novo espectrômetro deve contribuir com a crescente demanda de medidas de CAP por parte dos pesquisadores e estudantes do LIH, e deve proporcionar ensaios com núcleos de prova com meia vida curta como, por exemplo, o  $^{111m}\text{Cd} \rightarrow ^{111}\text{Cd}$ , que necessita de estatísticas de contagem mais altas do que o espectrômetro descrito neste trabalho pode permitir.



**Figura 6.3** – Diagrama de blocos do digitalizador N6751 da CAEN.



## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] MAHNKE, H. E. Introduction to PAC / PAD. **Hyperfine Interactions**, v. 49, p. 77-102, 1989.
- [2] BAUDRY, A.; BOYER, P.; CHOULET, S.; GAMRAT, C.; PERETTO, P.; PERRIN, D. AND VAN ZURK, R. A Six-Detector High-Resolution PAC Spectrometer. **Nucl. Instr. and Meth.**, A260, p. 160 – 164, 1987.
- [3] JÄGER, M.; IWIG, K.; BUTZ, T.; A User-Friendly Fully Digital TDPAC-Spectrometer. **Hyperfine Interactions**, v. 198, p. 167 – 172, 2010.
- [4] DOMIENIKAN, C.; **Uma Interface Eletrônica para Aquisição de 12 Espectros de Coincidências Gama-Gama Atrasadas**. 2000. Dissertação (Mestrado), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.
- [5] FRAUENFELDER, H.; STEFFEN, R. M. Angular Distribution of Nuclear Radiation: an Angular Correlation. In: SIEGBAHN, K. (Ed.) **Alpha-, Beta-, and Gamma-ray Spectroscopy**. North-Holland Publishing, Amsterdam, N. Y., 1965, v. 2, p. 997 – 1198.
- [6] RAGHAVAN, R. S.; KAUFMANN, E. N.; RAGHAVAN, P.; Universal correlation of electronic and ionic gradients in noncubic metals. **Phys. Rev. Lett.**, v. 34, n. 20, p. 1280 – 1283, 1975.
- [7] SCHATZ, G. and WEIDINGER, A. **Nuclear Condensed Matter Physics**. Cap. 5. Stuttgart, Germany, 1992.
- [8] KRÓLAS, K. and WODNIECKA, B.; The Quadrupole Moment of the 2083 keV State of  $^{140}\text{Ce}$  Derived from **PAC Measurements**. **Report n° 1644/PS**, Institute of Nuclear Physics, Kraków, Poland, 1993.
- [9] FIRESTONE, R. B.; **Table of Isotopes**, v. I, 8<sup>a</sup> Edition, New York, 1996.
- [10] SAXENA, R. N. and SHARMA H. D.; Directional Correlation of the Gamma Transitions in  $^{140}\text{Ce}$ . **Physical Review C**, v.7, n. 1, p. 395 – 403, 1973.
- [11] MERCÚRIO, M.E.; CARBONARI, A. W.; CORDEIRO, M. R.; SAXENA, R. N.; D'AGOSTINO, L. Z.; Local investigation of hyperfine interactions in pure and Co-doped ZnO. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**. v. 322, Issues 9 - 12, p. 1195–1197, 2010.
- [12] SCHATZ, G., DING, X. L., FINK, R., KRAUSCH, G., LUCKSCHEITER, B., PLATZER, R., VOIGT, J., WÖHRMANN, U. and WESCHE, R.; Hyperfine-interactions studies of surfaces. **Hyperfine Interactions**, v. 60, p. 975, 1990.

[13] HEMMINGSEN, L.; SAS, K. N. And DANIELSEN., R. B.; Biological Applications of Perturbed Angular Correlations of g-Ray Spectroscopy. **Chem. Rev.**, v. 104(9), p. 4027 – 4062, 2004.

[14] CARBONARI, A. W.; **Estudo do Campo Hiperfino Magnético no  $^{181}\text{Ta}$  no Sítio Y das Ligas de Heusler  $\text{CO}_2\text{YZ}$  (Y=Ti, Nb,V e Z=Si, Ge, Sn e Ga)**. Dissertação de Doutorado, São Paulo, 1992.

[15] LOHMANN, E.; FREITAG, K.; SCHAEFER, TH.; VIANDEN, R.; The magnetic hyperfine field at Cu in Fe, Co and Ni, and the magnetic moment of the 41 keV,  $2^+$  state of  $^{62}\text{Cu}$ . Tese de Doutorado, Bonn, 1992. **Hyperfine Interactions**, v. 77, p. 103 - 110, 1993.

[16] JAEGER, H.; GARDNER, J. A.; SU, H. T. and RASERA, R. L.; Microcomputer-Controlled Perturbed Angular Correlation Spectrometer. **Rev. Sci. Instrum.**, vol. 58, nº 9, 1694-1698, 1987.

[17] CAUTEREN, V. J.; RAO, G. N.; ROTS, M.; High Resolution TDPAC Work Using CsF and BaF Fast Detectors. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research**. A243, 445-452, 1986.

[18] SHAH, K. S.; GLODO, J.; KLUGERMAN, M.; MOSES, W. W.; DERENZO, S. E.; WEBER, M. J.;  $\text{LaBr}_3\text{:Ce}$  Scintillators for Gamma Ray Spectroscopy. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research**. A594, 56-60, 2008.

[19] MARQUES, J. J. G.; **Interacções Hiperfinas em Monocristais de Cobalto e Niobato de Lítio Usando  $^{111}\text{Cd}$ ,  $^{181}\text{Ta}$ ,  $^{197}\text{Hg}$  e  $^{199}\text{Hg}$ : Desenvolvimento Experimental e Determinação Precisa de Constantes de Interação**. 1996. Tese (Doutorado). Faculdade de Ciências da Universidade de Lisboa, Lisboa, Portugal.

[20] BUTZ, T.; SAIBENE, S.; FRAENZKE, T. H. and WEBER. M.; A “TDPAC Camera”. **Nucl. Instr. and Meth.**, A284, p. 417-421, 1989.

[21] BARTOS, A.; SCHEMMERLING, K.; WENZEL, T. and UHRMACHER, M.; A Compact TDPAC Spectrometer. **Nucl. Instr. and Meth.**, A330, p. 132-139, 1993.

[22] RENTERÍA, M.; BIBILONI, A. G.; DARRIBA, G. N.; ERRICO, L. A.; MUÑOZ, E. L.; RICHARD, D.; RUNCA, J.; Efficiency-optimized low-cost TDPAC spectrometer using a versatile routing/coincidence unit, v. 181, p. 145 - 155, 2008.

[23] HERDEN, C.; RÖDER, J.; GARDNER, J. A.; BECKER, K. D.; Fully digital time differential perturbed angular correlation (TDPAC) spectrometer., **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A**. A594, 155-161, 2008.

[24] WEBB, T. A., NIKKINEN, L., GALLEGO, J., RYAN, D. H.; C.; A simple digital TDPAC spectrometer. **Hyperfine Interactions**, v. 222, p. 103 - 108, 2013.

- [25] HOHENEMSER, C. and SCHUHMANN, R.B.; Simultaneous Energy and Timing Decisions in Time Differential Perturbed Angular Correlation Experiments Using BaF<sub>2</sub> Scintillators. **Hyperfine Interactions**, v. 30, p. 109-119, 1986.
- [26] PHOTOMULTIPLIER TUBES – BASICS AND APPLICATIONS. Third Edition. 2007. Produced by Hamamatsu. Disponível em:  
< [https://www.hamamatsu.com/resources/pdf/etd/PMT\\_handbook\\_v3aE.pdf](https://www.hamamatsu.com/resources/pdf/etd/PMT_handbook_v3aE.pdf) > Acesso em 03 fev. 2016.
- [27] TAC/SCA model 2145, Camberra Industries. Connecticut, USA, 1990.
- [28] ADC model 8715, Camberra Industries. Connecticut, USA, 1999
- [29] LEO, W. R. **Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments: A How-to Approach**. 2<sup>a</sup> Edition. New York, N. Y. 1994.
- [30] ABDEL-AAL, R. E.; **LabVIEW-based MCA Emulation Software for Ortec Multi-Channel Buffers**. *Meas. Technol.* 3 (1992) 959-968.
- [31] SCHOUERI R. M.; DOMIENIKAN, C., CARBONARI, A. W.; SAXENA, R. N.; **Small Furnace for Perturbed Angular Correlation Spectrometer**. V Latinamerican Symposium on Nuclear Physics – Santos, Brazil 1-5 September, 2003.
- [32] MERCÚRIO, M.; DOMIENIKAN, C.; **An Electronic Delay for Perturbed Gamma-Gamma Angular Correlation Spectrometer**. International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2007. Santos, SP, Brazil, September 30 to October 5, 2007.
- [33] DOMIENIKAN, C.; LAPOLLI, A. L.; ZANINI, A. Y. K.; TRINDADE, G. S.; DE TOLEDO, F.; **Electronic Module for 6-BaF<sub>2</sub>-Detectors Positioning Control**. International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2011. Rio de Janeiro, RJ, Brazil, September 24 to October 28, 2011.
- [34] “LM78XX / LM78XXA 3-Terminal 1 A Positive Voltage Regulator - Fairchild Semiconductor”. Disponível em : < <http://www.fairchildsemi.com/ds/LM/LM7805.pdf> > Acesso em 05 mar. 2012.
- [35] TOLEDO, F.; DOMIENIKAN, C.; ZAHN, G.; **A New Electronic Circuit for Nim Power Supply**. International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2013. Recife, PE, Brazil, November 24 to October 29, 2013.
- [36] BOSCH-SANTOS, B.; **Investigação das Interações Hiperfinas nos Compostos Ternários RMn<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> (R = La, Nd, Pr) pela Espectroscopia de Correlação Angular  $\gamma$ - $\gamma$  Perturbada**. 2015. Tese (Doutorado), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.
- [37] WIKIPÉDIA – A enciclopédia livre: banco de dados disponível em:  
< [https://pt.wikipedia.org/wiki/Tabela\\_peri%C3%B3dica](https://pt.wikipedia.org/wiki/Tabela_peri%C3%B3dica) >. Último acesso em 25/06/16.

- [38] HOWARD, c. J.; HUNTER, B. A.; **Australian Nuclear Science and Technology Organization Lucas Heights Research Laboratories A Computer Program for Rietveld Analysis of X-Ray and Neutron Powder Diffraction Patterns – RIETICA.** Australia, N. S. W., 1997.
- [39] RASERA, R. L.; BUTZ, T.; VASQUEZ, A.; ERNEST, H.; SHENOY, G.; DUNLAP, B.; RENO, R. C. and SCHIMIDT, G.; Symmetry and Distribution of Electric Quadrupole Interactions at  $^{181}\text{Ta}$  Impurities in Hafnium-Zirconium Alloys. **J. Phys. F.; Metal Phys.**, v.8, n.7, p.1579-1589, 1978.
- [40] SCHATZ, G. and WEIDINGER, A.; **Nuclear Condensed Matter Physics**; pg. 86. Stuttgart, Germany, 1992.
- [41] CAMERON, J. A.; GARDNER, P.R.; PRESTWICH, W. V.; ZAMORI, Z. and SANTRY, D. C.; Hyperfine Field at  $^{181}\text{Ta}$  Nuclei in a Nickel Lattice. **Canadian Journal of Physics**, v.48, 2725, 1970.
- [42] LINDGREN, B.; KALSSON, E. and JOHNSON, B.; Magnitude and Direction of Hyperfine Fields for a Cd Impurity in Ni at Low and High Magnetizing Fields. **Hyperfine Interactions**, v.1, p.505, 1976.
- [43] DI NAPOLI, S., LHOIS, A.M., BIHLMAYER, G., BLUGEL, S., ALOUANI, M., DREYSSE, H.; Magnetic structure and transport properties of noncollinear  $\text{LaMn}_2 \times 2$  (X = Ge, Si) systems. **Physical Review B**, v.70 (17), p. 175518 (2004).
- [44] BOSCH-SANTOS, B.; CARBONARI, A.; CABRERA-PASCA, G.; CARBONARI, A.W.; COSTA, M. S. ; SAXENA, R. N.; Investigation of the magnetic hyperfine field at R and Zn sites in  $\text{RZn}$  (R = Gd, Tb, Dy) compounds using perturbed gamma-gamma angular correlation spectroscopy with  $^{140}\text{Ce}$  and  $^{111}\text{Cd}$  as probe nuclei. **Hyperfine Interactions**, Vol.197(1), pp.105-109, 2010.
- [45] CARBONARI, A.W.; MESTNIK-FILHO, J.; SAXENA, R. N.; LALIC, M. V.; Magnetic hyperfine interaction in  $\text{CeMn}_2\text{Ge}_2$  and  $\text{CeMn}_2\text{Si}_2$  measured by perturbed angular correlation spectroscopy. **Physical Review**, 69, 144425, 2004.
- [46] INOUE, H.; MOTOSHIMIZU, Y.; ZACH, R.; KANOMATA, T.; ENDO, S.; ONO, F.; Magnetization curves around the Curie temperature in  $\text{LaMnSi}_2$ . **Journal of Alloys and Compounds**, 442, 162–164, 2007.

[47] THIEL, T. A.; GERDAU, E.; BOTTCHER, M.; NETZ, G.; Temperature dependence of the hyperfine field of Cerium in Gadolinium. **Hyperfine Interactions**, Vol. 9(1), 459-464, 1981.

[48] CAVALCANTE, F.H.M.; PEREIRA, L.F.D.; CARBONARI, A. W.; MESTNIK-FILHO, J.; SAXENA, R. N.; A method to determine contributions to the hyperfine field at Ce probes in magnetic hosts: Application to Ce impurities at RE sites in REAg (RE = Gd, Tb, Dy, Ho) compounds. **Journal of Alloys and Compounds**, Vol.660, pp.148-158, 2016.

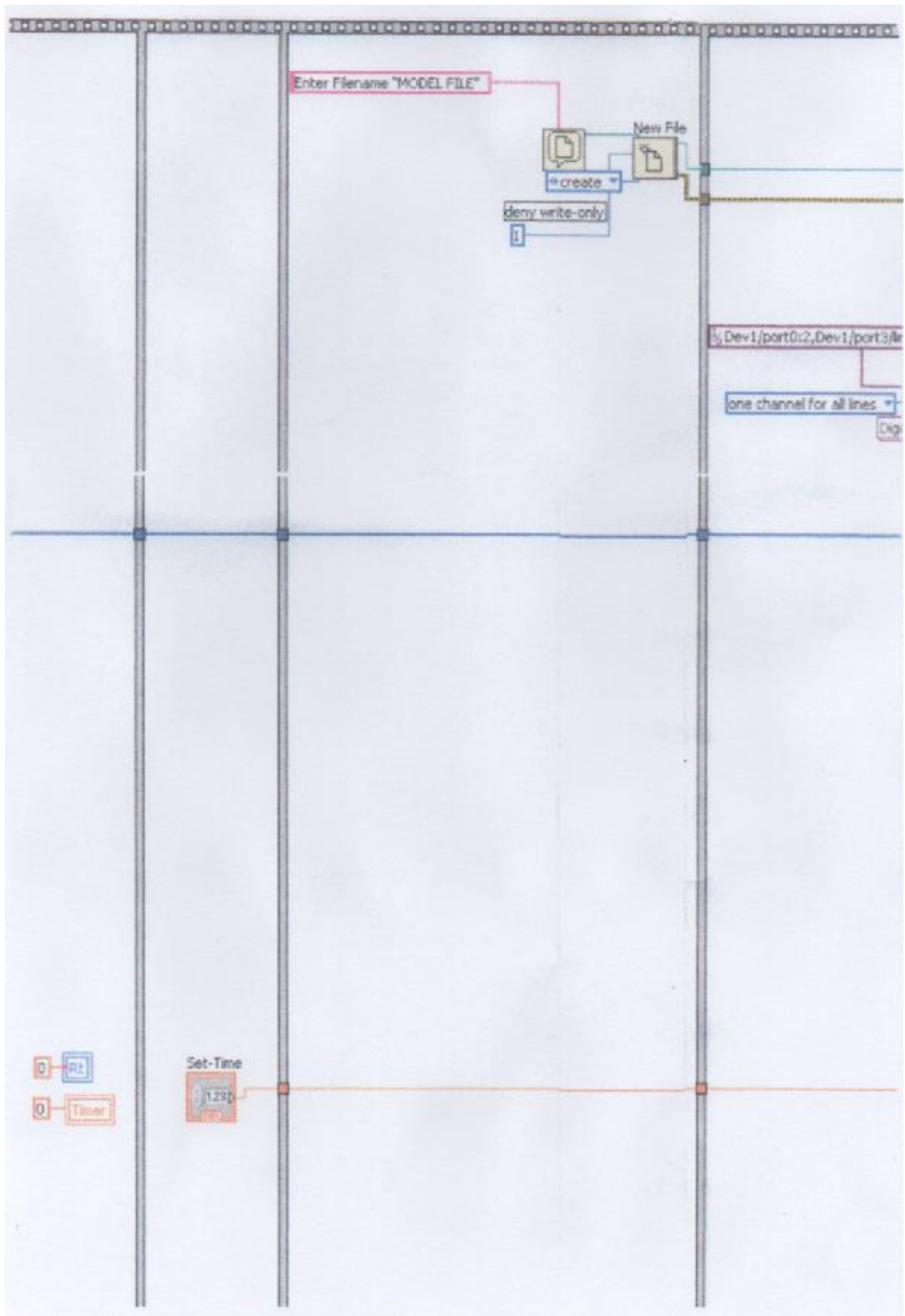
[49] BOSCH-SANTOS, B.; CARBONARI, A. W.; CABRERA-PASCA, G. A.; SAXENA, R. N.; FREITAS, R. S.; The magnetic behavior of the intermetallic compound NdMn<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> studied by magnetization and hyperfine interactions measurements. **Journal of Applied Physics**, Vol.117(17), 2015.

[50] CABRERA-PASCA, G. A.; CARBONARI, A. W.; SAXENA, R. N.; BOSCH-SANTOS, B.; COAQUIRA, J. A. H.; MESTNIK-FILHO, J.; Magnetic hyperfine field at highly diluted Ce impurities in the antiferromagnetic compound GdRh.sub.2Si.sub.2 studied by perturbed gamma-gamma angular correlation spectroscopy. **Journal of Alloys and Compounds**, Feb 25, Vol.515, p.44(5), 2012.

[51] NAGL, A. M. M.; **Next-Generation Perturbed Angular Correlation Spectroscopy**; Göttingen, Germany, 2014.



## ANEXO II - DIAGRAMA DE TELA DO MCA – LABVIEW 8.5 – PARTE 2/4



## ANEXO III - DIAGRAMA DE TELA DO MCA – LABVIEW 8.5 – PARTE 3/4

