

# CALIBRAÇÃO EM EFICIÊNCIA DE UM DETECTOR HPGe NA FAIXA DE ENERGIAS 50 - 1800 keV.

Luzia Venturini  
IPEN-CNEN/SP  
Serviço de monitoração Ambiental  
Caixa Postal 11049  
05422-970 Pinheiros, São Paulo, SP, Brasil

## RESUMO

Este trabalho descreve a calibração em energia de um detector HPGe na faixa de energia 50 - 1800 keV, para duas geometrias de medida de água: frasco Marinelli (850 mL) e frasco de polietileno (100 mL). Os dados experimentais foram corrigidos para levar em consideração o efeito soma e ajustados a uma curva contínua, diferenciável e dependente da energia descrita por:  $\ln(\varepsilon) = b_0 + b_1 \cdot \ln(E/E_0) + \beta \cdot \ln(E/E_0)^2$ , onde  $\beta = b_2$  se  $E > E_0$  e  $\beta = a_2$  se  $E \leq E_0$ ;  $\varepsilon$  = eficiência para o pico de absorção total;  $E$  = energia da transição gama e  $\{b_0, b_1, b_2, a_2, E_0\}$  é o conjunto de parâmetros a ser ajustado.

## INTRODUÇÃO

O objetivo da calibração em eficiência é relacionar a área sob o pico de absorção total e a intensidade da transição gama. O número de contagens,  $A_r$ , sob o pico de absorção total é dado por:

$$A_r(E, d) = A_0 \cdot f(E, d) \cdot \Omega(d) \cdot I_\gamma \cdot t \quad (1)$$

onde  $E$  é a energia da transição gama,  $d$  é a distância entre a fonte e o detector,  $A_0$  é a atividade da fonte,  $f$  é o fator de atenuação,  $\Omega(d)$  é o ângulo sólido subtendido pelo detector,  $I_\gamma$  é a intensidade da transição gama e  $t$  é o tempo de contagem.

Fixando a geometria de medida e a composição da amostra podemos substituir o produto  $f(E, d) \cdot \Omega(d)$  por  $\varepsilon(E)$  e reescrever a Eq. (1) como:

$$A_r(E) = A_0 \cdot \varepsilon(E) \cdot I_\gamma \cdot t \quad (2)$$

onde  $\varepsilon(E)$  é a eficiência do sistema de medidas, na energia  $E$ , para a medida de um determinado tipo de amostra em uma determinada geometria. Nestas condições a eficiência do sistema de medidas, para detecção dos raios gama no pico de absorção total, é dada por:

$$\varepsilon(E) = A_r / (A_0 \cdot I_\gamma \cdot t) \quad (3)$$

Na faixa de energias 50 - 1800 keV a curva de eficiência dos detectores HPGe mostra duas regiões onde predominam diferentes processos de atenuação dos raios gama. Inicialmente, a eficiência aumenta com a energia até atingir um valor máximo passando então a diminuir com o aumento da energia. A localização deste máximo depende das características da amostra e do detector. Na região de

baixas energias, a eficiência é determinada pela auto-absorção dos fótons na própria amostra e pela atenuação dos fótons no invólucro e zonas mortas do detector. Em energias mais altas a eficiência é limitada pela auto-absorção dos fótons na amostra e pelo caminho livre médio dos fótons no volume ativo do detector. Estas duas regiões devem ser representadas por uma função que descreva apropriadamente os dados calculados por meio da Eq. (3).

Os dados experimentais podem ser obtidos por meio da medida de padrões radioativos calibrados diluídos e/ou misturados a matrizes de modo a reproduzir a geometria de medida para a qual o detector é calibrado. As atividades dos radionuclídeos nos padrões devem ser altas o suficiente para permitir uma boa estatística de medida e devem ser suficientemente baixas para evitar problemas de empilhamento e espectros complexos.

Os dados experimentais devem ser corrigidos quando forem utilizados radionuclídeos que emitam raios gama em cascata [1]. Para tais radionuclídeos, a probabilidade de que os raios gama em cascata sejam registrados fora do pico de absorção total aumenta com o ângulo sólido. Este efeito é comum, por exemplo, em medidas amostras ambientais, as quais são geralmente medidas em frascos colocados próximo ao detector.

O sistema eletrônico deve ser previamente ajustado por meio da correção apropriada de polo zero e linha de base. A constante de tempo do amplificador deve ser escolhida de modo a se obter a melhor relação sinal/ruído. Finalmente, a curva de eficiência deve ser ajustada por meio de um formalismo matricial que permita a inclusão das covariâncias que possam existir entre os dados experimentais.

## MATERIAIS

O sistema de medidas utilizado consistiu de um detector HPGe Ortec, modelo GEM-15190, com volume ativo de aproximadamente 90 cm<sup>3</sup>. O sistema eletrônico incluiu um amplificador Ortec, modelo 572 com rejeição de empilhamento. A constante de tempo utilizada foi 3  $\mu$ seg. Os espectros gama foram medidos na faixa 50 a 2800 keV e foram analisados por meio do programa Analysis [2]. O tempo de contagem foi de 3000 segundos.

Os padrões de calibração foram confeccionados utilizando soluções radioativas calibradas, da Amersham, de <sup>57,60</sup>Co, <sup>88</sup>Y, <sup>109</sup>Cd, <sup>133</sup>Ba, <sup>134</sup>Cs, <sup>139</sup>Ce e <sup>241</sup>Am que

foram misturadas em uma solução de carregadores de todos os radionuclídeos e diluídas para as geometrias de medida. Este trabalho reporta a calibração de duas geometrias de medida de água: frasco de polietileno de 100 mL e frasco Marinelli de 1 L com 850 mL de água as quais serão daqui por diante identificadas por geometrias F100 e M850, respectivamente. A Tabela 1 mostra as atividades dos radionuclídeos utilizadas nestas duas geometrias. Os dados sobre o decaimento radioativo dos radionuclídeos são da Ref. [3].

TABELA 1. Energias (E), intensidades (I<sub>γ</sub>) e atividades dos padrões F100 (A<sub>100 mL</sub>) e M850 (A<sub>850 mL</sub>).

Fonte	E (keV)	I <sub>γ</sub> (%)	A <sub>100 mL</sub> (KBq)	A <sub>850 mL</sub> (KBq)
<sup>241</sup> Am	59,537 (1)	35,82 (12)	0,3082 (2,7%)	0,7091 (2,9%)
<sup>109</sup> Cd	88,0341 (11)	3,65 (6)	1,2502 (3,0%)	2,3140 (3,1%)
<sup>57</sup> Co	122,06135(30)	85,68 (13)	0,2367 (2,8%)	0,4359 (3,0%)
	136,4743 (5)	10,67 (13)		
<sup>139</sup> Ce	165,857 (6)	79,99 (10)	0,0670 (2,8%)	0,1219 (3,0%)
<sup>133</sup> Ba	80,997 (10)	36,94 (61)	0,4625 (3,7%)	0,8617 (3,9%)
	276,398 (2)	7,12 (7)		
	302,853 (1)	18,3 (2)		
	356,017 (2)	62,1 (7)		
	383,851 (3)	8,92 (9)		
<sup>134</sup> Cs	604,69 (9)	97,63 (3)	0,1383 (2,8%)	0,2567 (3,0%)
	795,84 (1)	85,52 (3)		
<sup>88</sup> Y	898,042 (4)	93,7 (4)	0,2220 (3,7%)	0,4007 (3,9%)
	1836,063 (13)	99,34 (7)		
<sup>60</sup> Co	1173,238 (4)	99,89 (2)	0,2189 (2,7%)	0,4073 (2,9%)
	1332,502 (5)	99,9816 (15)		

## CURVA DE EFICIÊNCIA

A curva de eficiência dos detectores HPGe, na faixa de energias 50 - 1800 keV, pode ser descrita pela seguinte função [4]:

$$\ln(\varepsilon) = b_0 + b_1 \cdot \ln(E/E_0) + \beta \cdot \ln^2(E/E_0)$$

$$\beta = a_2, \text{ se } E \leq E_0$$

$$\beta = b_2, \text{ se } E > E_0 \quad (4)$$

A função  $\ln(\varepsilon)$  é uma função contínua e diferenciável da energia. Os parâmetros  $b_0$ ,  $b_1$ ,  $b_2$  e  $a_2$  são os coeficientes de duas parábolas que se unem suavemente no ponto de junção  $E_0$ .

Identificando:  $Y = \ln(\varepsilon)$  e  $x = \ln(E/E_0)$  podemos reescrever a Eq. (4) como:

$$Y(x, \Phi) = b_0 + b_1 \cdot x + \beta \cdot x^2 \quad (5)$$

e determinar o vetor parâmetros  $\Phi = \{b_0, b_1, b_2, a_2, E_0\}$  pelo Método dos Mínimos Quadrados. Uma vez que a função  $Y(x, \Phi)$  não é linear nos parâmetros, o processo de determinação de  $\Phi$  é um processo iterativo. Se  $y_i$  é o valor experimental correspondente a  $x_i$  e  $y'$  é a função descrita

por um vetor estimativa  $\phi'$ , o processo iterativo busca minimizar a diferença  $\Delta\phi = \Phi - \phi'$ . Em termos matriciais,  $\Delta\phi$  é dado por:

$$\Delta\phi = (X^t V^{-1} X)^{-1} X^t V^{-1} y' \quad (6)$$

onde:  $X$  = matriz das derivadas da função  $Y$  em relação aos parâmetros, sendo as componentes  $X_{ik}$  dadas por:

$$X_{ik} = \partial Y(x_i, \phi') / \partial \phi_k |_{\phi'} \quad (k \text{ parâmetros})$$

$V$  = matriz de covariâncias dos dados experimentais, onde os elementos  $V_{ij}$  são dados por:

$$V_{ij} = \text{cov}(y_i, y_j)$$

As covariâncias entre os  $y = \ln(\varepsilon)$ , segundo a equação (3) são dadas por:

$$\text{cov}(y_i, y_i) = \sigma^2(y_i) = [\sigma(A_r)/A_r]^2 + [\sigma(A_0)/A_0]^2 + [\sigma(I_\gamma)/I_\gamma]^2 + d^2 \quad (7)$$

$$\text{cov}(y_i, y_j) = d^2 + [\sigma(A_0)/A_0]^2 \text{ quando as transições gama } i \text{ e } j \text{ forem emitidas pelo mesmo radionuclídeo;} \quad (8)$$

$$\text{cov}(y_i, y_j) = d^2 \text{ quando as transições gama } i \text{ e } j \text{ forem emitidas por radionuclídeos diferentes,} \quad (9)$$

## RESULTADOS EXPERIMENTAIS

onde  $d$  é o erro sistemático do procedimento de preparo dos padrões de calibração.

A Figura 1 mostra o espectro gama medido na calibração da geometria F100.

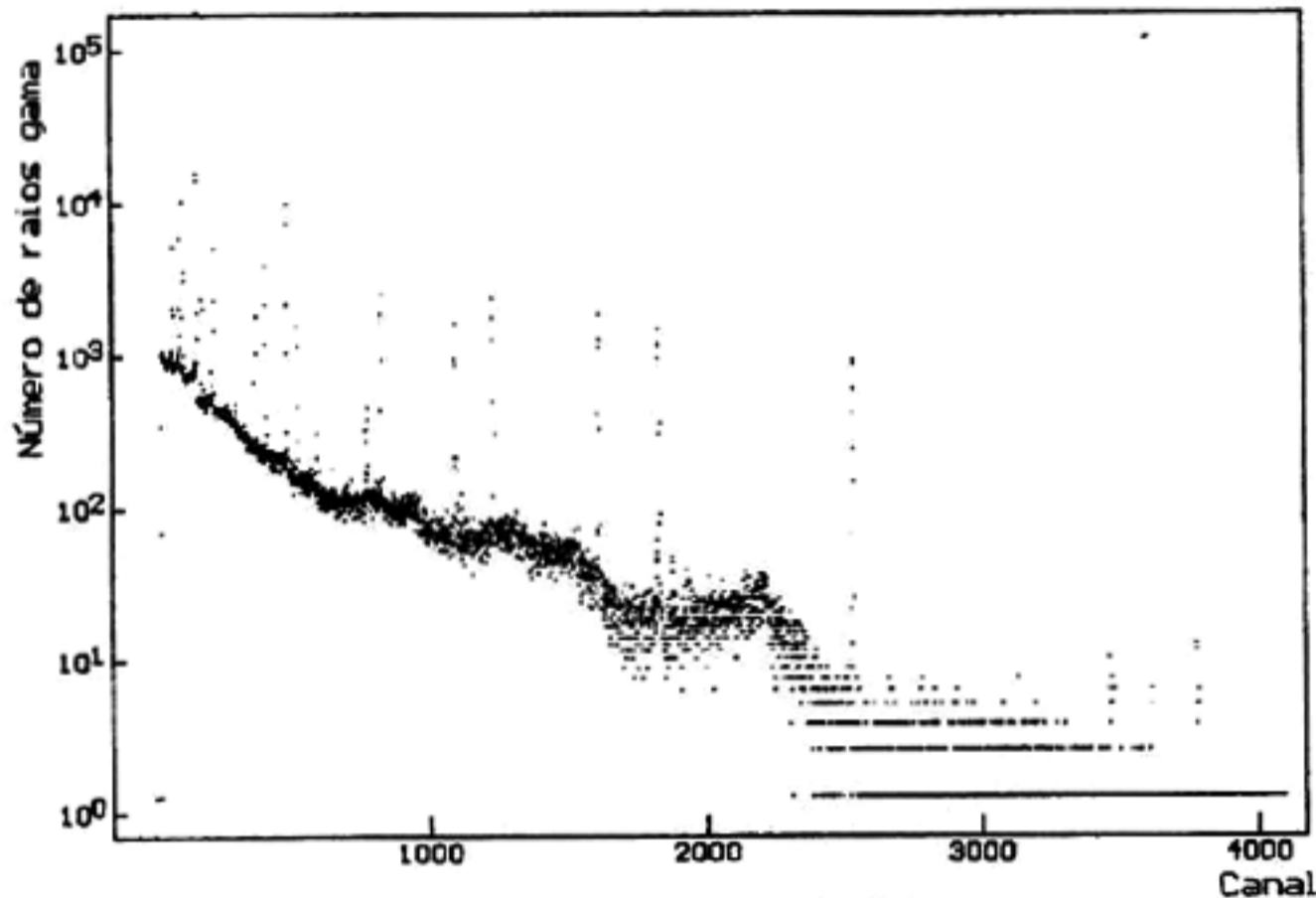
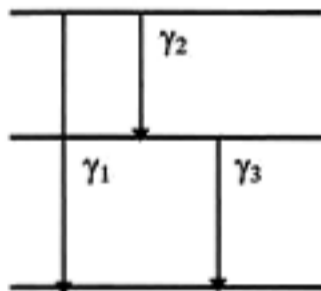


Figura 1. Espectro gama medido para a geometria F100.

Os dados experimentais da eficiência (Tabela 2) foram calculados segundo a Eq. (3) e corrigidos pelos fatores de correção de efeito soma dados na Tabela 3.

O efeito soma pode aumentar ou diminuir o número de contagens no pico de absorção total. Por exemplo, na cascata



a soma dos gamas  $\gamma_2$  e  $\gamma_3$  contribuem para o aumento da taxa de contagem no pico correspondente a  $\gamma_1$  enquanto que as somas  $\gamma_1 + \gamma_2$  e  $\gamma_1 + \gamma_3$  contribuem para a diminuição das taxas de contagens nos respectivos picos de absorção total.

O fator de correção do efeito soma é dado por:

$$f = 1 / (1 \pm p) \quad (10)$$

onde  $p$  é a probabilidade de registro da cascata e os sinais (+) e (-) correspondem às situações onde a cascata contribui para o aumento da taxa de contagem (+) ou para a sua diminuição (-).

TABELA 2. Valores experimentais da eficiência.

Energia	$\epsilon_{F100} \times 10^{-3}$	$\epsilon_{M850} \times 10^{-3}$
59,537	12,78 (42)	5,61 (26)
80,997	25,24 (108)	12,92 (36)
88,034	30,84 (130)	15,22 (44)
122,061	40,62 (125)	22,50 (68)
136,474	38,81 (162)	23,44 (69)
165,857	36,92 (115)	22,49 (73)
276,398	23,58 (108)	14,57 (40)
302,853	21,50 (89)	13,46 (36)
356,017	18,59 (74)	11,69 (31)
383,851	18,18 (93)	10,95 (29)
604,690	11,46 (39)	7,38 (20)
795,840	8,38 (29)	5,82 (16)
898,042	8,06 (32)	5,24 (14)
1173,238	6,25 (20)	4,16 (12)
1332,502	5,41 (17)	3,72 (11)
1836,063	4,19 (18)	2,82 (10)

A probabilidade  $p$  depende da eficiência total ( $\epsilon_T$ ) de detecção do sistema, isto é, da eficiência do sistema em registrar uma determinada transição gama em qualquer parte do espectro. Para se determinar estas eficiências foram medidas as razões  $\epsilon/\epsilon_T$  para o  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$  e  $^{137}\text{Cs}$ . A partir destes dados foram extrapoladas as razões  $\epsilon/\epsilon_T$  para as transições gama envolvidas nas cascatas medidas na calibração. Esta extrapolação foi feita por regressão linear

considerando as energias médias 129 keV para o  $^{57}\text{Co}$  e 1252 keV para o  $^{60}\text{Co}$ .

TABELA 3. Fatores de correção de efeito soma.

Energia(keV)	F100	M850
81	1,067	1,046
276	1,038	1,018
302	1,017	1,008
356	1,017	1,008
383	0,993	0,999
604	1,084	1,058
795	1,078	1,057
898	1,062	1,046
1173	1,058	1,044
1332	1,058	1,044
1836	1,060	1,044

As probabilidades  $p$  dependem do esquema de decaimento radioativo de cada radioisótopo e foram calculadas usando os dados nucleares das referências 5, 6, 7, e 8.

Os dados experimentais foram ajustados à curva de eficiência descrita pela Eq. (5) por meio do programa APOLO [9], cujo procedimento iterativo utiliza o algoritmo sugerido por Marquardt [10].

A Tabela 4 mostra os valores dos parâmetros ajustados e o chi-quadrado, para 11 graus de liberdade, para as geometrias F100 e M850.

TABELA 4. Parâmetros ajustados para as geometrias F100 e M850.

Parâmetro	F100	M850
$b_0$	-3,323 (33)	-3,851 (31)
$b_1$	-0,909 (48)	-0,872 (54)
$b_2$	-0,0065 (181)	0,0019 (210)
$a_2$	-1,765 (116)	-1,889 (130)
$E_0$	173,39 (765)	179,18 (838)
$\chi^2$	12,0	11,4

A Figura 2 mostra os gráficos dos pontos ajustados e experimentais para as duas geometrias de medida.

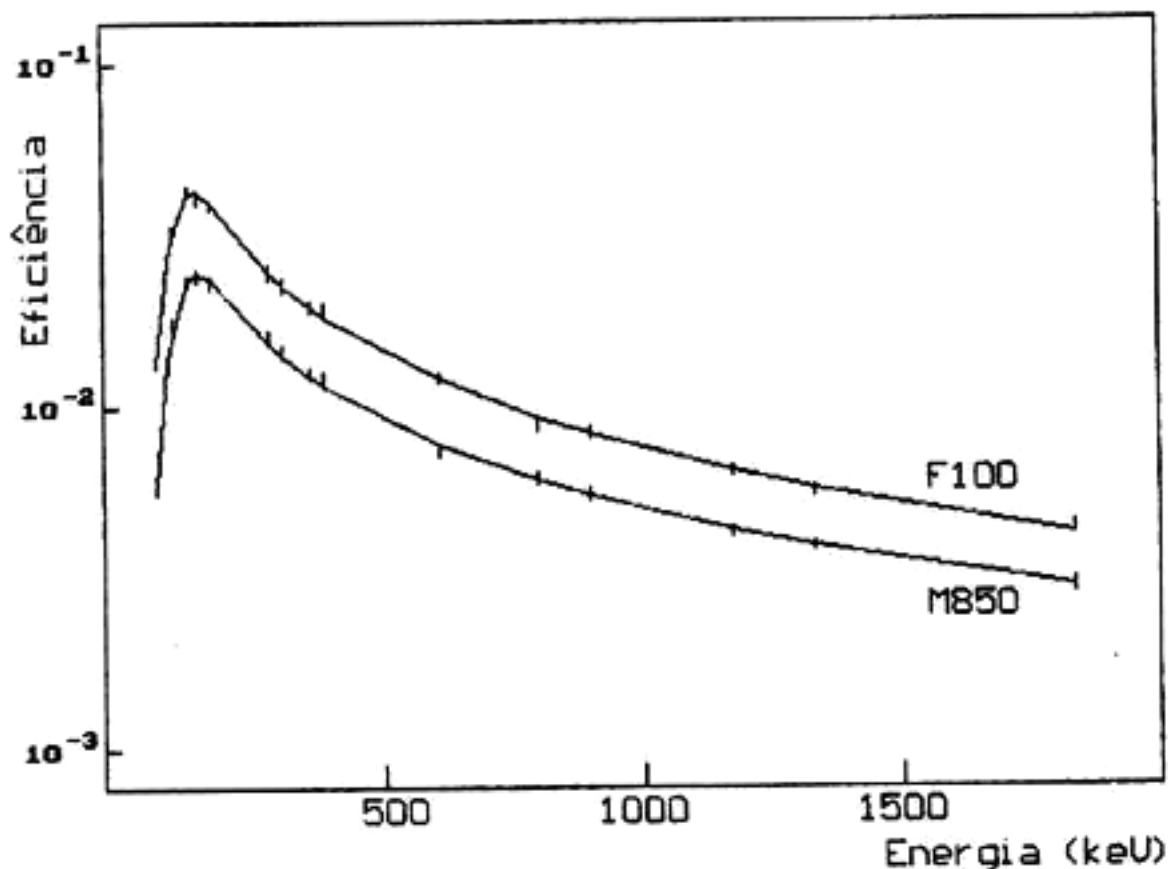


Figura 2. Dados experimentais e ajustados.

### COMENTÁRIOS FINAIS

As curvas de eficiência de absorção total obtidas mostram que o modelo proposto descreve adequadamente os pontos experimentais para as duas geometrias de medida consideradas. Entretanto, uma vez que os parâmetros ajustados não possuem significado físico, o modelo requer uma avaliação estatística antes de ser aceito apenas pelo fato de apresentar ótima aderência aos dados experimentais. Tal avaliação foi realizada e descrita

anteriormente [4] onde se mostrou, por simulação, que o modelo não é tendencioso e que para seus resultados podem ser considerados os intervalos de confiança Gaussianos. Outros autores [11,12,13] também utilizaram funções não lineares nos parâmetros para descrever a eficiência. Por outro lado, Gray e Ahamad [14] estudaram dados experimentais encontrados na literatura e propuseram o uso de funções lineares. Uma das restrições deste estudo, apontada pelos autores, é a falta de dados experimentais completos e publicados para que cada

classe de função pudesse ser adequadamente avaliada. Este trabalho contribui com dados experimentais para esta discussão. A faixa de energias estudada é de grande interesse pois inclui praticamente toda a radiação gama ambiental.

## REFERÊNCIAS

- [1]. DEBERTIN, K.; SCHOTZIG, U. **Coincidence summing effect in Ge(Li) spectrometry at low source-to-detector distances.** Nucl. Inst. and Meth. 158 p 471 - 477, 1979.
- [2]. VENTURINI, L.; VANDENTPUT, G. C. **ANALYSIS, Programa para microcomputador escrito em Pascal, para análise de espectros gama.** 1995. Não publicado.
- [3]. LORENZ, A. **Decay Data for radionuclides used as calibration standards.** Technical Report Series 227. IAEA, Vienna, 1983.
- [4]. VENTURINI, L.; VANIN, V. R. **HPGe detector efficiency calibration for extended sources in the 50-1400 keV energy range.** Appl. Radiat. and Isot. 44 p 999-1002, 1993.
- [5]. ANDERSON, P.; EKSTROM, L.P.; LYTTKENS, J. **Nuclear Data Sheets for A =60.** Nuclear Data Sheets 48 p 51, 1986.
- [6]. SERGEENKOV YU V.; SIGALOV, V. M. **Nuclear Data Sheets for A = 134.** Nuclear Data Sheets 34 p 475, 1981.
- [7]. SERGEENKOV YU V.; SIGALOV, V. M. **Nuclear Data Sheets for A = 133.** Nuclear Data Sheets 49 p 639, 1986.
- [8]. BUNTING, R. L.; KRAUSHAAR, J. J. **Nuclear Data Sheets for A = 88.** Nuclear Data Sheets 18 p 93, 1976.
- [9]. VENTURINI, L. **APOLO, programa para ajuste de funções não lineares, escrito em Pascal.** 1993. Não publicado.
- [10]. MARQUARDT, D.W. **An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters.** J. Soc. Indust. Appl. Math. 11 p 431 - 441, 1963.
- [11]. ROUTTI, J. T. **Sampo, a FORTRAN IV program for computer analysis of gamma spectra from Ge(Li) detectors, and for other spectra with peaks.** UCRL-19452. Lawrence Radiation Laboratory, California, USA, 1969.
- [12]. SINGH, R. **Vality of various semi-empirical formulae and analytical functions for the efficiency of Ge(Li) detectors.** Nucl. Inst. and Meth. 136 p 543 - 549, 1976.
- [13]. YOSHIZAWA, Y.; IWATA, Y. KAKU, T.; KATOK, T.; RUAN, J.; KOJIMA, T. AND KAWADA, Y. **Precision measurements of gamma-ray intensities I.  $^{56}\text{Co}$ ,  $^{88}\text{Y}$ ,  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{207}\text{Bi}$ .** Nucl. Inst. and Meth. 174 p 109 - 131, 1980.
- [14]. GRAY, P. W.; AHMAD, A. **Linear classes of Ge(Li) detector efficiency functions.** Nucl. Inst. and Meth. A237 p 577 - 589, 1985.

## ABSTRACT

This paper describes the efficiency calibration of an HPGe detector in the 50 - 1800 keV energy range, for two geometries for water measurement: Marinelli beaker (850 ml) and a polyethylene flask (100 ml). The experimental data were corrected for the summing effect and fitted to a continuous, differentiable and energy dependent function given by  $\ln(\epsilon) = b_0 + b_1 \cdot \ln(E/E_0) + \beta \cdot \ln(E/E_0)^2$ , where  $\beta = b_2$  if  $E > E_0$  and  $\beta = a_2$  if  $E \leq E_0$ ;  $\epsilon$  = the full absorption peak efficiency;  $E$  is the gamma-ray energy and  $\{b_0, b_1, b_2, a_2, E_0\}$  is the parameter set to be fitted.