



CNEN/SP

ipen Instituto de Pesquisas
Energéticas e Nucleares

AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE
DE SÃO PAULO

**DESENVOLVIMENTO E CARACTERIZAÇÃO DO CRISTAL
CINTILADOR DE CsI(Tl) UTILIZADO COMO
DETECTOR DE RADIAÇÃO**

MARIA DA CONCEIÇÃO COSTA PEREIRA

**Dissertação apresentada como parte
dos requisitos para obtenção do
Grau de Mestre em Ciências na Área
de Tecnologia Nuclear.**

**Orientador:
Dr. Carlos Henrique de Mesquita**

São Paulo

1997

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

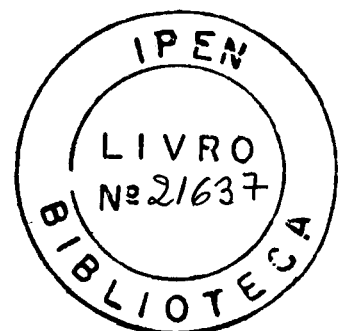
**DESENVOLVIMENTO E CARACTERIZAÇÃO DO CRISTAL
CINTILADOR DE CsI(Tl) UTILIZADO COMO
DETECTOR DE RADIAÇÃO**

MARIA DA CONCEIÇÃO COSTA PEREIRA

Dissertação apresentada como parte dos requisitos
para obtenção do grau de Mestre em Ciências na
Área de Tecnologia Nuclear.

Orientador:
Dr. Carlos Henrique de Mesquita

São Paulo
1997



À Carolina Pereira Prado

AGRADECIMENTOS

Ao Dr. Carlos Henrique de Mesquita , pela orientação, incentivo e dedicação.

À Dra. Margarida Mizue Hamada pelo incentivo e apoio no desenvolvimento deste trabalho.

Ao Eng. José Mauro Vieira, responsável pela Supervisão de Desenvolvimento Experimental, pelo apoio na execução deste trabalho.

Ao MSc. Tufic Madi Filho pelo total apoio e ajuda indispensável na calibração da instrumentação utilizada.

Ao Eng. Wilson Aparecido Parejo Calvo pela ajuda nos ensaios de crescimento de cristais

À Coordenadoria de Caracterização de Materiais, pelas análises realizadas.

Ao Wilson Aparecido Bruzinga, pela assistência na operação dos sistemas de vácuo.

À MSc. Célia Marina Napolitano pelo auxílio na revisão deste trabalho.

Ao Dr. Eddy Segura Pino e ao MSc. Reinaldo Pérez Sánchez pela colaboração e incentivo.

Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares de São Paulo, na pessoa do Superintendente Dr. Cláudio Rodrigues, pela oportunidade de realizar este trabalho.

SUMÁRIO

	Página
RESUMO	iv
ABSTRACT	v
1. INTRODUÇÃO	1
1.1 Aspectos básicos da teoria de crescimento de cristais	3
1.1.1 Nucleação	3
1.1.2 Mecanismos de crescimento de cristais	5
1.1.3 Coeficiente de segregação de impurezas	6
1.2 Técnica de Bridgman	10
1.3 Interação da radiação gama com a matéria	11
1.3.1 Efeito fotoelétrico	13
1.3.2 Efeito Compton	14
1.3.3 Produção de pares	16
1.3.4 Competição entre as interações de fótons gama e X com a matéria	17
1.4 Detectores de cintilação	19
1.4.1 Cintiladores inorgânicos	20
1.4.2 O mecanismo do processo de cintilação em materiais inorgânicos	21
1.4.3 Análise do tempo de emissão do fóton	25
1.4.4 Propriedades importantes de alguns cintiladores inorgânicos	26
1.4.4.1 Cristal de NaI(Tl)	26
1.4.4.2 Cristal de CsI(Tl)	27
1.4.4.3 Cristal de CsI(Na)	27
1.4.4.4 Cristal de CaF ₂ (Eu)	28
1.4.4.5 Cristal de LiI(Eu)	28

	Página	
1.5	Tubo fotomultiplicador	28
1.6	Fotodiodo	30
1.7	Pré-amplificadores	36
1.8	Propósito do trabalho	36
2.	MATERIAIS E MÉTODOS	38
2.1	Materiais e reagentes	38
2.1.1	Equipamentos utilizados	39
2.2	Procedimento experimental para realização de crescimento de cristais de CsI(Tl)	41
2.2.1	Construção do forno para o crescimento de cristais	42
2.2.2	Tratamento químico e térmico do tubo de quartzo	43
2.2.3	Purificação do sal de CsI	44
2.2.4	Crescimento dos cristais de CsI(Tl)	45
2.2.5	Tratamento do cristal	46
2.3	Usinagem e polimento dos cristais	47
2.4	Espectrografia de emissão óptica	48
2.5	Fluorescência de raios-X	48
2.6	Absorção atômica	49
2.7	Difração de raios-X	50
2.8	Ensaio ópticos	50
2.9	Emissão de luminescência	50
2.10	Tempo de decaimento de luminescência	51
2.11	Caracterização do cristal como sensor de radiação	52
2.11.1	Resolução do detector	54
2.11.2	Eficiência do detector	55
3.	RESULTADOS	56

	Página	
3.1	Cristal de iodeto de cézio ativado com tálio CsI(Tl) obtido pela técnica de Bridgman	56
3.2	Análise por espectrografia de emissão óptica	58
3.3	Análise por fluorescência de raios-X	59
3.4	Distribuição do dopante tálio no volume cristalino de CsI(Tl)	60
3.5	Análise por difração de raios-X	62
3.6	Transmitância e emissão de luminescência do cristal de CsI(Tl) desenvolvido pela técnica de Bridgman	63
3.7	Determinação do tempo de decaimento de luminescência	64
3.8	Medição da resolução energética do detector CsI(Tl) acoplado à fotomultiplicadora	65
3.9	Medição da eficiência global de detecção	69
3.10	Medição da resolução energética do sistema detector CsI(Tl) acoplado ao fotodiodo PIN	71
4.	DISCUSSÃO	75
5.	CONCLUSÕES	83
	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	85

**DESENVOLVIMENTO E CARACTERIZAÇÃO DO CRISTAL
CINTILADOR DE CsI(Tl) UTILIZADO COMO
DETECTOR DE RADIAÇÃO**

Maria da Conceição Costa Pereira

RESUMO

O cristal de iodeto de cézio ativado com tálio [CsI(Tl)] apresenta uma alta eficiência de detecção gama por unidade de volume. O recente desenvolvimento dos fotodiodos de silício com baixa capacitância, área de sensibilidade grande e distribuição espectral coincidente com o espectro de emissão luminosa do CsI(Tl), estimulou o uso deste cristal como cintilador. Neste trabalho descrevem-se as características dos cristais de CsI(Tl) crescidos pela técnica de Bridgman, com a finalidade de serem utilizados como detectores de radiação. Para avaliar o cintilador desenvolvido foram efetuadas medidas do espectro de emissão luminosa, espectro de transmissão óptica, duração do tempo de decaimento de luminescência, eficiência global de contagem e resolução energética para a radiação gama. As medidas de resolução energética foram efetuadas com o cristal cintilador de CsI(Tl) acoplado ao fotodiodo tipo PIN, utilizando radiação gama proveniente de fontes de ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{22}Na , ^{54}Mn e ^{131}I . Medidas similares foram efetuadas com fotomultiplicadora bi-alcalina para fins comparativos. Os resultados obtidos permitem concluir pela validade da utilização do cristal de CsI(Tl) acoplado ao fotodiodo em diversas aplicações da área de detectores de radiação.

DEVELOPMENT AND CHARACTERIZATION OF THE CsI(Tl) SCINTILLATOR TO BE USED AS RADIATION DETECTOR

Maria da Conceição Costa Pereira

ABSTRACT

Scintillator detectors using CsI(Tl) show high gamma ray detection efficiency for unit volume. New developments of Si-photodiode with low capacitance, large sensitivity area and with an emission spectra distribution matching the CsI(Tl) luminescence spectra have stimulated the use of this CsI(Tl) crystal as scintillator. In this work, the CsI(Tl) crystal grown by the Bridgman technique and its characterization and evaluation as scintillator were described. To evaluate the developed scintillator, measurements of luminescence emission spectra, optical transmission spectra, luminescence decay time, global counting rate efficiency and energy resolution for gamma rays were carried out. The measurements of energy resolution were performed with a CsI(Tl) scintillator coupled to a PIN photodiode and using the following gamma ray sources ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{22}Na , ^{54}Mn and ^{131}I . For comparison, the same evaluation measurements using a bi-alkaline photomultiplier were also carried out. From the experimental results of this work, we can conclude for the effectiveness of the scintillator CsI(Tl) coupled to a PIN photodiode for applications in the area of radiation detectors.

1. INTRODUÇÃO

O cristal de iodeto de cério ativado com tálio [CsI(Tl)] é utilizado como sensor de radiação devido às suas características favoráveis como cintilador.^[12] Possui boa resistência mecânica, é pouco higroscópico e o seu espectro de emissão luminosa coincide com a região de sensibilidade dos fotodiodos tipo PIN.^[10,14,17,]

Até a década passada o uso do cristal de CsI(Tl) acoplado à fotomultiplicadora foi desestimulado pelo cristal de iodeto de sódio [NaI(Tl)] devido a este apresentar melhor sobreposição do espectro de luminescência em função da eficiência quântica das fotomultiplicadoras^[16,17], conforme é mostrado na Figura 1.

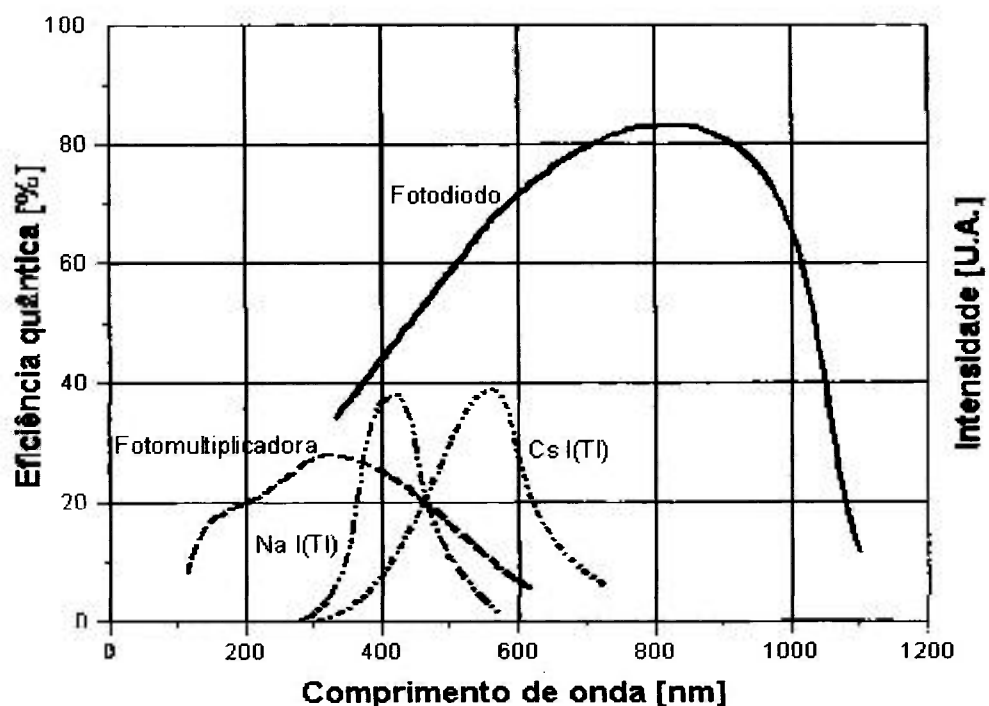


Figura 1: Curvas de emissão luminosa dos cristais NaI(Tl) e CsI(Tl) e perfis de sensibilidade de um fotodiodo e uma fotomultiplicadora.

O recente desenvolvimento e disponibilidade no mercado de fotodiodos de silício com baixa capacitância e grande área de sensibilidade têm estimulado os projetos de detectores com o CsI(Tl) substituindo as fotomultiplicadoras pelos fotodiodos.^[14,24,29]

Os fotodiodos apresentam vantagens sobre as fotomultiplicadoras em virtude de seu tamanho, peso, resistência mecânica e principalmente por operarem com tensões da ordem de 30V comparados aos 1000 a 2000V de tensão de operação das fotomultiplicadoras^[14,19,20]. Adiciona-se a este fato a possibilidade de desenvolver os cristais de CsI(Tl) sem os problemas de higroscopicidade própria do cristal de NaI(Tl).

O cristal de CsI(Tl) é considerado um dos cintiladores mais adequados para ser acoplado aos fotodiodos tipo PIN devido ao seu espectro de emissão luminosa coincidir com a distribuição espectral do fotodiodo (Figura 1).^[21,25,35] A combinação do fotodiodo com o cristal de CsI(Tl) reúne as qualidades de alta sensibilidade, eficiência e boa resolução energética nas medidas de radiação X e gama e para identificação de partículas.^[13,17] Permite configurações instrumentais compactas, leves, estáveis, praticamente insensíveis aos campos magnéticos e opera em baixa tensão.^[11] Estas características conduzem à simplificação eletrônica, redução de custos de projeto e possibilitam a sua utilização em ambientes adversos ou na presença de campos magnéticos.

1.1 ASPECTOS BÁSICOS DA TEORIA DE CRESCIMENTO DE CRISTAIS

1.1.1 Nucleação

O processo de crescimento de cristais consiste basicamente na formação de uma fase sólida a partir da fase líquida ou de vapor. A cristalização de um material fundido pode ser dividida em duas etapas. Primeiramente, ocorre a nucleação que consiste na formação de núcleos cristalinos e posteriormente, o crescimento desses núcleos.

No processo de cristalização os componentes químicos do cristal são levados à temperatura de fusão (T_F). A seguir a temperatura é diminuída lentamente implicando que a probabilidade de formação de núcleos cristalinos aumenta com o decorrer do tempo. A Figura 2 mostra como a taxa de nucleação e de crescimento variam com a temperatura.^[38] Temperaturas pouco abaixo do ponto de fusão T_F possuem taxa de nucleação praticamente nula (região AB). O intervalo de temperatura AB corresponde à região metaestável e sua extensão varia de acordo com a complexidade molecular da substância e do ponto de fusão. Em temperaturas ainda mais baixas, a taxa de nucleação vai aumentando até chegar a um máximo em T_M e então diminui até tornar-se novamente nula em T_N . A curva AF representa a taxa de crescimento de núcleos já formados e mostra que o crescimento de monocristais é possível, desde que se diminua a temperatura do líquido logo abaixo do ponto de fusão. Nesse intervalo de temperatura, a taxa de crescimento dos núcleos já formados, é mais alta que a taxa de formação de novos núcleos.

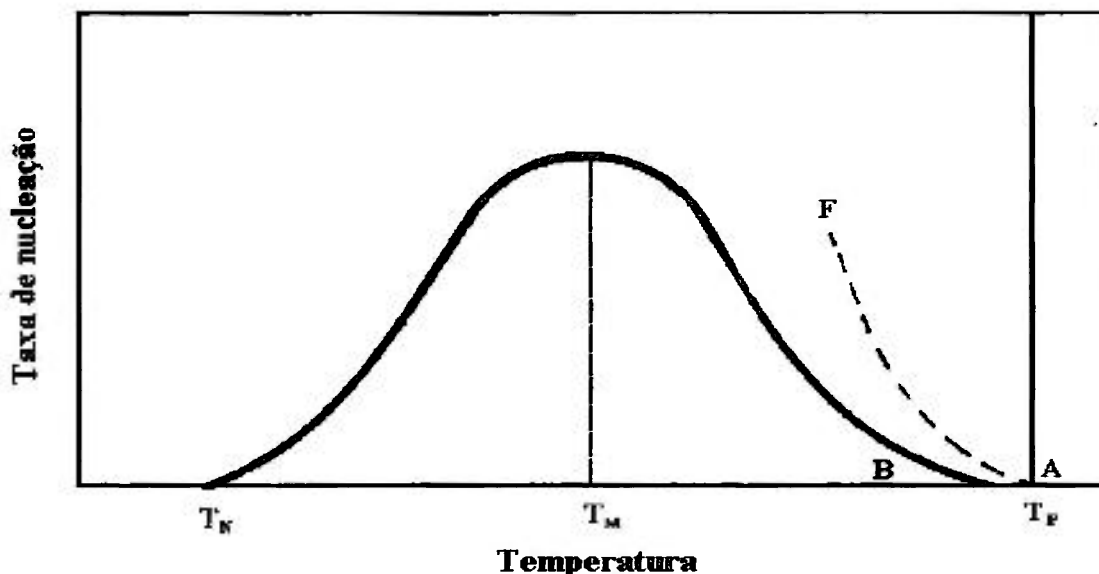


Figura 2: Taxas de nucleação e crescimento em função da temperatura: a taxa de nucleação está representada pela curva contínua e a taxa de crescimento pela curva tracejada. Figura modificada de Tamman^[38].

A nucleação pode ser homogênea ou heterogênea. Para que ocorra a nucleação homogênea, em um sistema em fusão, é necessário que o líquido esteja em equilíbrio metaestável, isto é, seja um líquido puro e em repouso de modo que possa ser resfriado bem abaixo do seu ponto de fusão sem que haja solidificação.^[8] Para chegar ao estado de metaestabilidade, o sistema tem que vencer uma barreira de energia, que surge devido à contribuição relativamente grande da energia superficial para a energia livre total das partículas muito pequenas. Para vencer esta barreira, o sistema deve sofrer a ação de uma força motriz termodinâmica, tal como o super-resfriamento ou a super saturação. A nucleação homogênea ocorre na ausência de um substrato.^[8,31]

A nucleação heterogênea é o nome dado para a formação de núcleos sobre interfaces tais como: impurezas indesejáveis, superfícies existentes no cristal ou nas paredes de um cadinho. A presença destas interfaces fará com que o mecanismo de nucleação seja um pouco diferente do caso homogêneo. A altura da

barreira de potencial para nucleação sobre um substrato é menor que aquela da nucleação homogênea no interior do líquido. Do ponto de vista energético, a formação de núcleos sobre superfícies estranhas é mais vantajosa, do que a nucleação homogênea no interior do líquido.^[38]

1.1.2 Mecanismos de crescimento de cristais

Na tentativa de explicar o mecanismo de crescimento, diversas teorias relacionam a velocidade de crescimento da superfície à estrutura da interface sólido-líquido. A teoria de Volmer^[43], explica a cinética do crescimento com base na existência de sítios energeticamente favoráveis na estrutura da superfície cristalina. Deslocamentos, degraus, aglomerados de átomos e lacunas influenciam na natureza dos sítios e conseqüentemente na taxa de crescimento. A seguir é descrito de maneira geral, os principais mecanismos de crescimento.

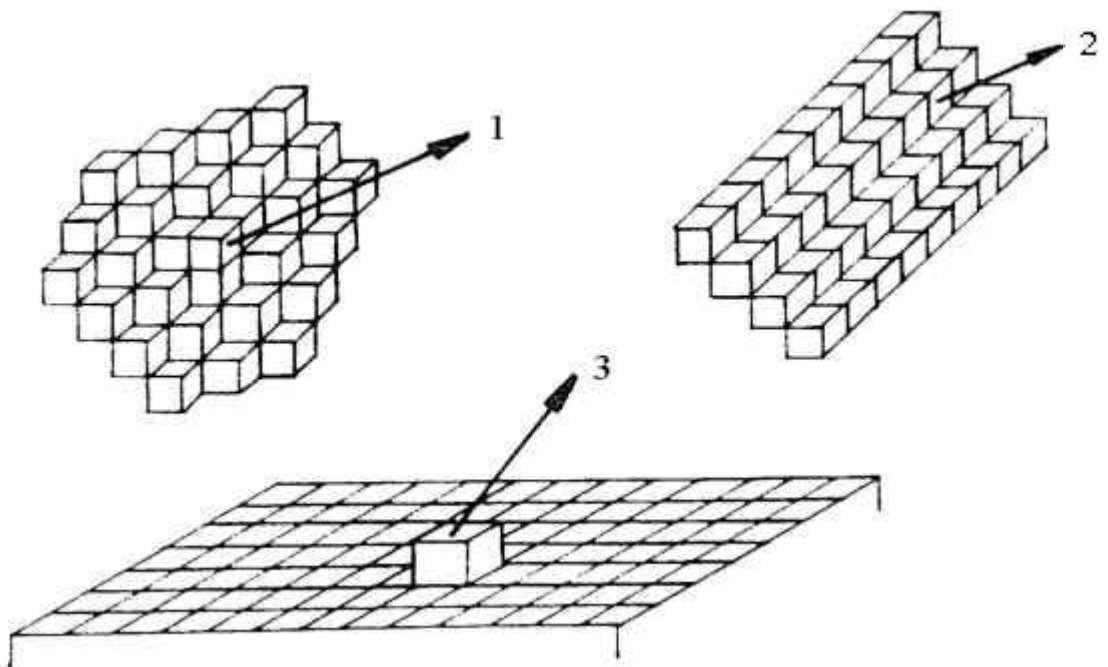


Figura 3: Tipos de sítios existentes numa interface sólido-líquido.

O mecanismo de crescimento conhecido como mecanismo normal, possui sítios do tipo 1 mostrados na Figura 3 os quais são os mais favoráveis à incorporação de uma unidade de crescimento, pois ocorre uma ligação direta com os três primeiros vizinhos. Faces do tipo $(111)^{[a]}$ da estrutura cúbica simples só possuem sítios do tipo 1. Neste caso, o mecanismo de difusão superficial é desprezível, uma vez que os átomos podem ser diretamente incorporados.

As faces (110) crescem por incorporações nos sítios tipo 2, ou seja, necessitam da presença de degraus na interface. Um degrau fornecerá posições energeticamente favoráveis para posterior incorporação de unidades de crescimento. A partir do degrau inicial surgirão novas camadas, formando assim, um deslocamento contínuo em hélice. Movimentos em hélice emergentes na interface sólido-líquido são fontes contínuas de degraus e este mecanismo é conhecido como mecanismo de crescimento por deslocamento em hélice.

A nucleação bidimensional é uma fonte de aglomerados estáveis, compostos de unidades de crescimento numa interface atômica plana, ou com baixos índices de Miller. Estes aglomerados bidimensionais se propagarão, até a formação de uma superfície plana. As faces (100) crescem por nucleação bidimensional, com a incorporação em um sítio do tipo 3.

1.1.3 Coeficiente de segregação de impurezas

A incorporação e a rejeição de impurezas durante um processo de solidificação estão baseadas no fenômeno de segregação, o qual consiste na migração de impurezas de uma fase (sólida ou líquida) para outra (líquida ou sólida) devido à diferença na solubilidade da impureza nas duas fases.

^[a] Índices de Miller

A segregação de impurezas foi demonstrada em 1925, quando Bridgman mostrou que durante a solidificação de um lingote de material, as impurezas são rejeitadas pelo sólido em crescimento e acumuladas no líquido. A segregação efetuada de uma forma controlada pode ser utilizada vantajosamente para purificação de materiais e para redistribuição de dopantes.

Devido à ocorrência de segregação na interface sólido-líquido, um processo de solidificação normal pode resultar numa distribuição de impurezas ao longo do material cristalizado. O processo no qual um material é completamente fundido e a seguir gradualmente cristalizado é conhecido como cristalização normal

A técnica de fusão por zona permite a purificação de uma variedade de materiais, e se baseia no fenômeno da segregação. Esta técnica consiste no deslocamento de uma zona estreita no material com temperatura correspondente ao ponto de fusão ao longo de seu comprimento. A zona sob fusão pode ser deslocada repetidamente pelo material, ocorrendo rejeição ou incorporação das impurezas a cada passagem.^[33]

Com a finalidade de descrever o fenômeno de segregação, define-se os coeficientes de segregação. De acordo com Rosemberg^[34] existem três diferentes definições para o coeficiente de segregação de impurezas.

- coeficiente de segregação interfacial K_0
- coeficiente de segregação no equilíbrio K^*
- coeficiente de segregação efetivo K

O coeficiente de segregação interfacial, K_0 , descreve a transferência interfacial de um componente quando não existe equilíbrio local entre o sólido e o líquido na interface, assim K_0 é calculado por:

$$K_o = \frac{X_o(s)}{X_o(L)} = \frac{C_o(s)}{C_o(L)} \cdot \frac{C_o(L) + [\text{concentração da matriz no líquido}]}{C_o(s) + [\text{concentração da matriz no sólido}]} \quad (1.1)$$

no qual as concentrações molares nas fases sólida e líquida (X_o) são determinadas diretamente na interface.

Quando as densidades do sólido e do líquido têm valores próximos e a concentração de soluto é baixa ($C_o \ll$ concentração da matriz), a equação (1.1) pode ser aproximada por:

$$K_o = \frac{C_o(s)}{C_o(l)} \quad (1.2)$$

Os estudos sobre segregação geralmente estão relacionados às impurezas em processos de crescimento a partir da fusão, sendo muito comum o uso da equação (1.2) como definição de K_o , o qual é também denominado de coeficiente de distribuição de impurezas.

Se líquido e sólido estão em equilíbrio em relação à transferência de massa na interface, então K_o torna-se igual ao coeficiente de segregação no equilíbrio, K^* , que depende somente das propriedades termodinâmicas do sistema, sendo influenciado pela cinética de transferência de massa na interface.

Para concentrações acima de 1%, pode-se obter o valor de K^* a partir do diagrama de fase do material. A Figura 4(a) mostra que para $K^* < 1$ as impurezas produzem uma diminuição da temperatura de fusão do material. Ao contrário, Figura 4(b), em sistemas, onde ocorre o processo inverso, ou seja $K^* > 1$, então as impurezas provocam um aumento da temperatura de fusão do material.

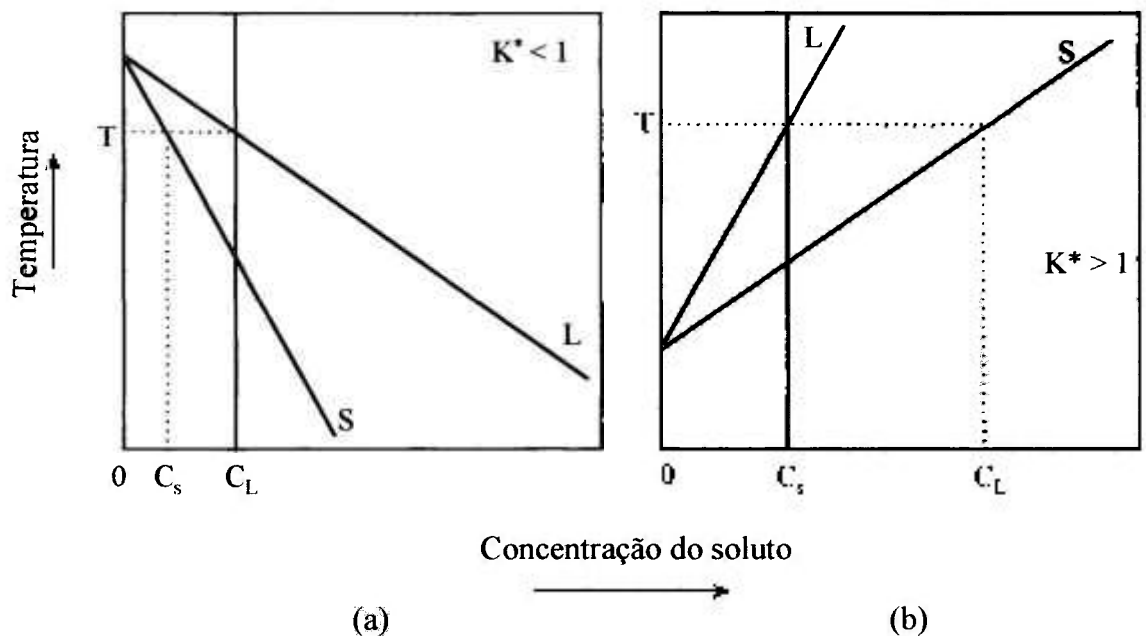


Figura 4: Diagrama de fase. (a) A impureza diminui o ponto de fusão do material.
(b) A impureza eleva o ponto de fusão do material.

A definição de coeficiente de segregação, decorre do fato de que na prática, quando se estuda a segregação entre fases, considera-se normalmente a concentração de soluto (ou impureza) no volume total do líquido e não a concentração interfacial. Um processo de cristalização real raramente é conduzido a taxas suficientemente lentas que permitam ao sistema reajustar sua composição homoganeamente ao volume total de suas fases. A rejeição do soluto pelo sólido em formação, é mais rápida do que a difusão do mesmo no líquido, ocorrendo a formação de uma camada enriquecida na interface. A taxa limitada de transferência de massa através do volume total da fase resulta tipicamente em gradientes de concentrações. Portanto, o coeficiente de segregação efetivo, K , é definido por:

$$K = \frac{C_o(s)}{C_o(L)} \quad (1.3)$$

no qual,

C_{∞} significa uma concentração elevada em relação à concentração C_0 da interface.

1.2 TÉCNICA DE BRIDGMAN

Por ser um processo diretamente controlável, o método por equilíbrio sólido-líquido de um monocomponente é o mais empregado para o crescimento de cristais iônicos. Este método é aplicável a materiais que apresentam as seguintes características:

- o material não sublima antes da fusão;
- sua pressão de vapor não é muito alta no ponto de fusão;
- o material não sofre decomposição antes da fusão;
- o material não apresenta uma transição de fase estrutural.

Para aplicação desse método existem três técnicas básicas que apresentam bons resultados: (i) fusão por zona,^[26,33] (ii) técnica de Czochralski^[39] e (iii) técnica de Bridgman^[26,39]. Esta última é a que apresenta a vantagem de ser mais econômica e simples.^[22,30]

Neste trabalho o crescimento de monocristais de iodeto de cério ativados com tálio [CsI(Tl)] foi efetuado pela técnica de Bridgman.^[1,26,39]

A técnica de Bridgman está baseada no processo de cristalização normal e permite o controle do regime de super-resfriamento tal que seja possível a obtenção de um monocristal. Este método de crescimento de monocristais foi desenvolvido por P. W. Bridgman.

Nesse método, o material a ser crescido é no início completamente fundido em um cadinho com configuração geométrica de base afinada, e deslocado ao longo de um gradiente de temperatura apropriado. Quando a parte inferior do cadinho atingir a região do forno na temperatura do ponto de fusão T_F do material, ocorre a nucleação.

Devido à base do cadinho ser afinada, há formação de um único núcleo crítico, e apenas um pequeno volume do líquido é super-resfriado. O fenômeno de super-resfriamento, na ausência de uma semente cristalina, ocorre quando o líquido é levado a uma temperatura a alguns graus abaixo do ponto de fusão sem que haja cristalização. Com o contínuo deslocamento do cadinho ao longo do gradiente de temperatura, a interface sólido-líquido move-se através do líquido, obtendo-se no final do processo o monocristal desejado. Vários núcleos podem ser formados em lugar de apenas um.^[31,34] Em geral, o crescimento para certas orientações é favorecido para um dos núcleos formados, dominando a interface de crescimento e resultando num monocristal, ou em uma grande região monocristalina.

1.3 INTERAÇÃO DA RADIAÇÃO GAMA COM A MATÉRIA

No projeto e construção de um sistema de detecção é necessário conhecer os processos de interação da radiação com a matéria a fim de compreender o seu funcionamento e projetá-lo de modo otimizado.

Um feixe de fótons é atenuado na matéria pelos seguintes processos:

a) Absorção, na qual a energia do fóton é parcial ou completamente convertida em energia cinética dos elétrons e partículas carregadas.

b) Espalhamento, no qual o fóton é espalhado fora do feixe incidente com a correspondente perda de energia.

Um feixe colimado contendo n [fótons/cm²] com energia $h\nu$ [keV] possui intensidade I em [keV/cm²] estimada por:

$$I = nh\nu \quad (1.4)$$

Ao atravessar um absorvedor, um feixe de raios gama sofre redução em sua intensidade I . A variação dI da intensidade do feixe, ao incidir sobre um absorvedor de espessura dx , define o coeficiente de atenuação μ linear [cm⁻¹] nesse caso:

$$dI = -I\mu dx \quad (1.5)$$

Integrando a função diferencial (1.5) obtém-se:

$$I = I_0 e^{-\mu x} \quad (1.6)$$

na qual,

I = Intensidade do feixe após atravessar o alvo (keV/cm²)

I_0 = Intensidade inicial do feixe (keV/cm²)

O coeficiente μ , considera todos os efeitos que contribuem para a diminuição do número de fótons do feixe incidente durante a passagem pelo material. Ele é dado pela soma dos coeficientes de atenuação linear dos efeitos

(i) Compton (μ_c), (ii) fotoelétrico (μ_f) e (iii) produção de pares (μ_p), os quais são obtidos multiplicando-se as seções de choque atômicas ($\text{cm}^2/\text{átomo}$) desses efeitos pelo número de átomos por cm^3 .^[40]

Assim, N_0 fótons de um feixe após passar por uma espessura x do absorvedor, será reduzido à

$$N = N_0 e^{-\mu x} \quad (1.7)$$

Os processos dominantes presentes na interação dos fótons com a matéria são:

- Efeito Fotoelétrico
- Efeito Compton
- Produção de Pares.

1.3.1 Efeito Fotoelétrico

No processo de absorção fotoelétrico, um fóton de energia $h\nu$ interage com o átomo, transferindo toda sua energia a um dos elétrons orbitais e desaparecendo completamente. No seu lugar, um fotoelétron é ejetado de uma das camadas do átomo, geralmente da camada K, com energia cinética E_c dada por:^[23,40]

$$E_c(\text{eV}) = h\nu - E_b \quad (1.8)$$

na qual,

$h\nu$ representa a energia do fóton incidente,

E_b a energia de ligação do elétron ao seu orbital (energia que foi dispendida para desfazer a ligação do elétron ao átomo).

Como segunda etapa ocorre um processo secundário consistindo no preenchimento da vacância eletrônica formada, acompanhada da emissão de um ou vários raios- X ou elétrons Auger. A probabilidade de ocorrência (seção de choque) do efeito fotoelétrico é proporcional a Z^5 onde Z é o número atômico do absorvedor. Para energias $h\nu$ levemente superiores à E_b , para um dado átomo, a seção de choque é máxima e depois decresce rapidamente com o incremento de $h\nu$.

O efeito fotoelétrico é o mecanismo predominante de absorção para fótons de energia baixa. Nos cintiladores cristalinos inorgânicos, para energias superiores a 400keV a probabilidade de ocorrência é praticamente nula.^[27] A Figura 5 apresenta esquematicamente o efeito fotoelétrico.



Figura 5: Representação esquemática do efeito fotoelétrico.

1.3.2 Efeito Compton

O processo de interação de espalhamento Compton ocorre entre o fóton incidente e um elétron da orbita externa do material absorvedor. É frequentemente o mecanismo de interação predominante para energias $h\nu$ médias, e pode ser tratado como um choque elástico entre o fóton e o elétron.^[7,23,40]

No espalhamento Compton, o fóton é desviado segundo um ângulo θ em relação a direção original. O fóton transfere parte de sua energia para o elétron

(assumindo que este esteja em repouso inicialmente), que é então ejetado (elétron de recuo). A Figura 6 apresenta esquematicamente o efeito Compton.

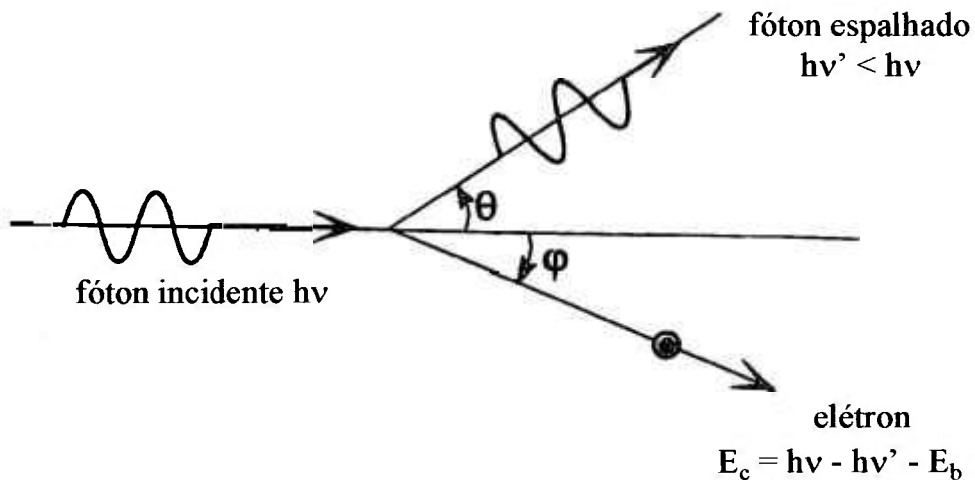


Figura 6: Representação esquemática do efeito Compton.

Todos os ângulos de espalhamento são possíveis, a energia transferida para o elétron pode variar de zero até uma grande fração da energia do fóton.

A expressão da transferência de energia e o ângulo de espalhamento para uma interação pode ser obtida pela equação de conservação de energia e movimento.^[23]

$$h\nu' = \frac{h\nu}{1 + \frac{h\nu}{m_0c^2} (1 - \cos \theta)} \quad (1.9)$$

na qual,

$h\nu$ é a energia do fóton incidente

$h\nu'$ é a energia do fóton espalhado

θ é o ângulo do fóton espalhado em relação à direção incidente

m_0c^2 é a energia do elétron em repouso (0,511MeV)

Para ângulos θ pequenos, implica que muita energia é transferida. Alguma energia inicial é sempre conservada pelo fóton incidente, até mesmo no caso extremo de $\theta = 180^\circ$.

O efeito Compton é predominante com fótons de energias intermediárias, faixa em que a energia de ligação E_b é desprezível quando comparada com a energia do fóton.^[27] A probabilidade do espalhamento Compton por átomo do absorvedor depende do número de elétrons livres como alvo de espalhamento e portanto aumenta linearmente com Z .

1.3.3 Produção de pares

O processo de produção de pares consiste na conversão da energia de um fóton que ao passar próximo do núcleo atômico sofre interação com o campo coulombiano verificando-se o processo de conversão energia-matéria produzindo um elétron e um pósitron. Para que a produção de pares seja energeticamente possível, a energia do fóton deve exceder em duas vezes o equivalente em energia da massa de repouso do elétron (1,02MeV).^[23,40]

Na interação, que ocorre entre o fóton e o campo coulombiano do núcleo, o fóton desaparece e é substituído por um par elétron-pósitron. Todo o excesso de energia do fóton acima de 1,02MeV, requerida para formar o par, se transforma em energia cinética do pósitron e do elétron.

Em média, o pósitron possui energia cinética maior que a do elétron devido a ação coulombiana exercida pela carga positiva do núcleo atômico e as cargas do par elétron (-) e pósitron (+). Nessa interação o núcleo acelera o pósitron e desacelera o elétron.

O pósitron e o elétron perderão energia por ionização ao percorrer a matéria. Há uma probabilidade finita de que eles percam parte da energia por radiação Bremsstrahlung. Quando as partículas atingem o repouso, o elétron permanece na matéria coexistindo com os outros elétrons passando a pertencer a algum orbital disponível. Quanto ao pósitron, após transmitir por colisões sua energia cinética ao meio ambiente, interage com um elétron produzindo dois fótons de aniquilação, diametralmente opostos, cada um com energia de 0,511MeV correspondente a energia da massa de repouso do elétron (m_e) relacionada pela fórmula clássica.^[23]

$$E = m_e c^2 = 0,511\text{MeV} \quad (1.10)$$

A produção de pares é predominante para energias elevadas e mais favorável para elementos com número atômico elevado (proporcional a Z^2).

Devido à aniquilação do pósitron (com um elétron), após ser moderado no meio, dois fótons de aniquilação são produzidos como produto secundário desta interação, cada um com energia igual à 0,511MeV.

1.3.4 Competição entre as interações de fótons gama e X com a matéria

A Figura 7 relaciona a probabilidade de interação em função da energia dos fótons no cristal CsI(Tl), representada pelo coeficiente de atenuação total.

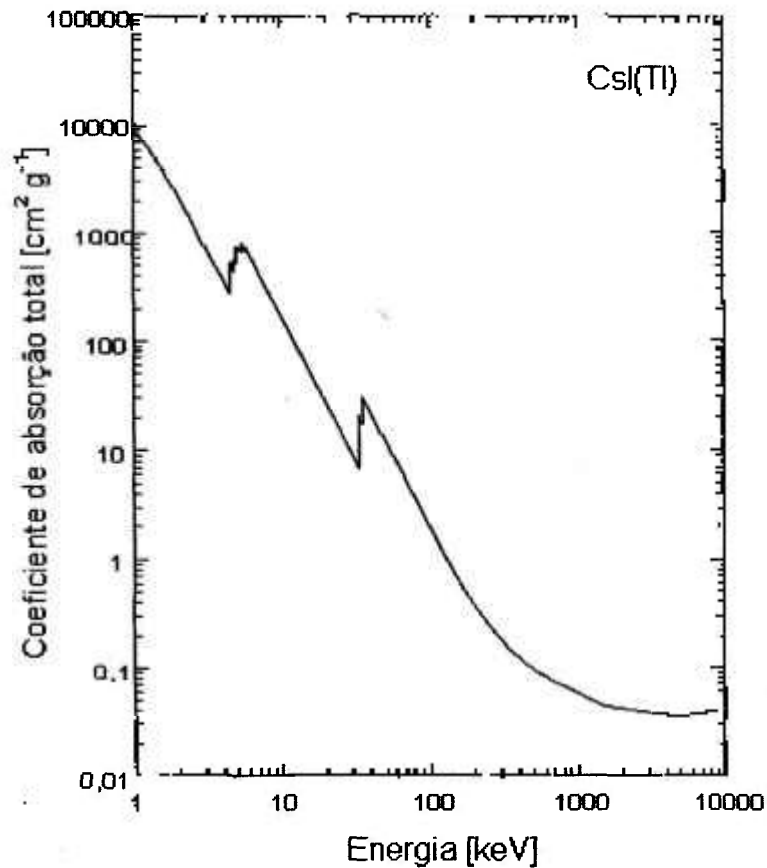


Figura 7: Coeficiente de absorção total do cristal CsI(Tl) em função da energia dos fótons.

A Figura 8 apresenta as regiões onde cada um dos efeitos estudados têm importância em função das energias dos fótons e do número atômico Z do material absorvedor. O efeito Compton, para a grande maioria dos elementos, é dominante entre as energias de 0,1 a 4,0 MeV. No caso do efeito fotoelétrico a região de domínio encontra-se em energias relativamente baixas. Para grandes valores de energias o efeito principal é a produção de pares.^[7,23]

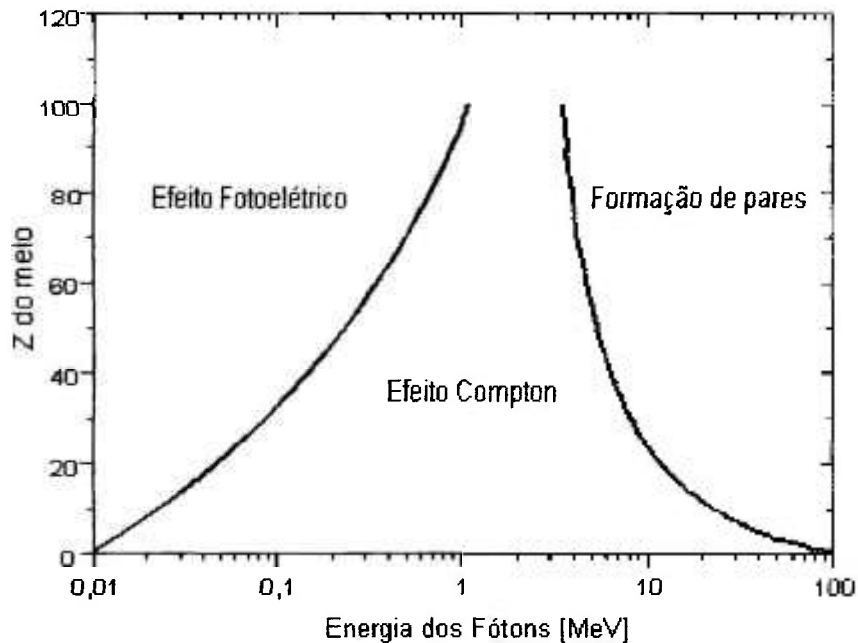


Figura 8: Regiões de predominância de cada uma das interações da radiação gama e X em função da energia dos fótons e do número atômico Z do meio absorvedor.

1.4 DETECTORES DE CINTILAÇÃO

Cintiladores são materiais sólidos, líquidos ou gasosos capazes de produzir luz quando a radiação ionizante dissipa sua energia em seu meio. O primeiro material sólido a ser usado como detector de partículas foi um cintilador, por Rutherford, em 1910, em seus experimentos de espalhamento alfa. Em seu arranjo experimental, partículas alfa incidiam sobre um alvo de sulfeto de zinco ativado com prata e produziam cintilações, as quais foram contadas com a ajuda de um microscópio.^[40]

A quantidade de luz produzida no cintilador é muito pequena não sendo possível, portanto, quantificá-la diretamente. Por este motivo é utilizado um dispositivo conhecido como tubo fotomultiplicador (ou fototubo). Este se encarrega de converter inicialmente os fótons de luz em elétrons (realizado no fotocatodo)

para posteriormente amplificar o número de elétrons inicialmente gerados por um fator da ordem de 10^6 . Desta forma se obtém na saída do fototubo um pulso elétrico com amplitude adequada para seu posterior processamento.

Devido à existência de diferentes tipos de cintiladores os mesmos foram classificados em três grupos em função das suas características físico-químicas, a saber: cintiladores inorgânicos^[b], cintiladores orgânicos^[c] e cintiladores gasosos. Neste trabalho serão estudados apenas os cintiladores inorgânicos, particularmente o cristal de CsI(Tl).

1.4.1 Cintiladores inorgânicos

A maioria dos cintiladores inorgânicos são cristais constituídos de metais alcalinos, em particular iodetos alcalinos, os quais contêm uma pequena concentração de uma impureza, como por exemplo os cristais de NaI(Tl), CsI(Tl), CsI(Na), LiI(Eu) e CaF₂(Eu). O elemento entre parênteses é a impureza ou ativador. Embora o ativador tenha uma concentração relativamente pequena, por exemplo, a concentração molar de tálio no CsI(Tl) é da ordem de 10^{-3} . Neste caso o tálio é o agente responsável pelo aumento da luminescência do cristal.^[36]

Há dois tipos de cristais cintiladores inorgânicos, a saber: os puros (intrínsecos) e os dopados (extrínsecos). Apesar de que os dois tipos têm o mesmo comportamento em relação à interação com a radiação ionizante, eles diferem nos processos de cintilação e conseqüentemente nas suas propriedades cintiladoras.^[2,6]

A Tabela 1, fornece as propriedades mais importantes dos cintiladores inorgânicos NaI(Tl) e CsI(Tl).^[23,40]

^[b] NaI(Tl), CsI(Tl), CsI(Na), LiI(Eu) e CaF₂(Eu).

^[c] Plásticos Cintiladores, Antraceno, Soluções Cintiladoras^[28].

Tabela 1 - Comparação de alguns parâmetros do NaI(Tl) e do CsI(Tl).

PARÂMETROS	NaI(Tl)	CsI(Tl)
Rendimento de Luz [fótons/MeV]	37700 ± 3000	51800 ± 2150
Constante de decaimento [μs]	0,23	1,1
Pico de emissão luminosa [nm]	415	540
Índice de Refração	1,850	1,799
Peso Molecular [g]	149,99	259,81
Densidade [g/cm ³]	3,67	4,51
Solubilidade a 25°C [g/100g H ₂ O]	185	85,5
Expansão Térmica em [1/°C x 10 ⁶]	45,6	47
Ponto de amolecimento [°C]	651	621
Higroscopicidade	elevada	pequena

1.4.2 O mecanismo do processo de cintilação em materiais inorgânicos

Alguns materiais, quando excitados pela absorção da energia das radiações eletromagnéticas, sofrem um processo de desexcitação por emissão de luz. A este processo é dado o nome de cintilação e os materiais que apresentam estas propriedades são empregados como detectores de radiação. Os mecanismos da cintilação em cristais inorgânicos estão relacionados com os estados de energia determinados pela rede cristalina do material.^[2,37]

A luminescência dos cintiladores inorgânicos pode ser entendida em termos das bandas de energia permitidas e proibidas em um cristal. A banda de

valência representa os elétrons que estão essencialmente ligados ao núcleo dos átomos da rede cristalina, enquanto que a banda de condução representa aqueles que possuem energia suficiente para migrar através do cristal. A banda de energia intermediária corresponde àquela que os elétrons não podem ocupar no cristal puro. Um elétron pode obter suficiente energia da radiação incidente para mover-se da banda de valência para a banda de condução. Às vezes, o elétron é liberado para mover-se pela rede cristalina. O elétron removido cria uma lacuna na banda de valência, a qual também se movimenta. Entretanto, pode ocorrer que a energia fornecida ao elétron não seja suficiente para levá-lo a banda de condução. Neste caso, o elétron permanece eletrostaticamente ligado à lacuna na banda de valência, formando assim o par elétron-lacuna. O par elétron-lacuna assim formado é denominado *exciton*.^[23,40]

Em termos de estados de energia, o *exciton* corresponde a promoção do elétron a um estado mais elevado do que a banda de valência, porém inferior à banda de condução. Portanto, os *excitons* formam uma banda estreita, com o nível superior coincidindo com o nível inferior da banda de condução (Figura 9). A largura da banda do *exciton* é da ordem de 1eV, enquanto que o intervalo entre a banda de valência e de condução é da ordem de 8eV.

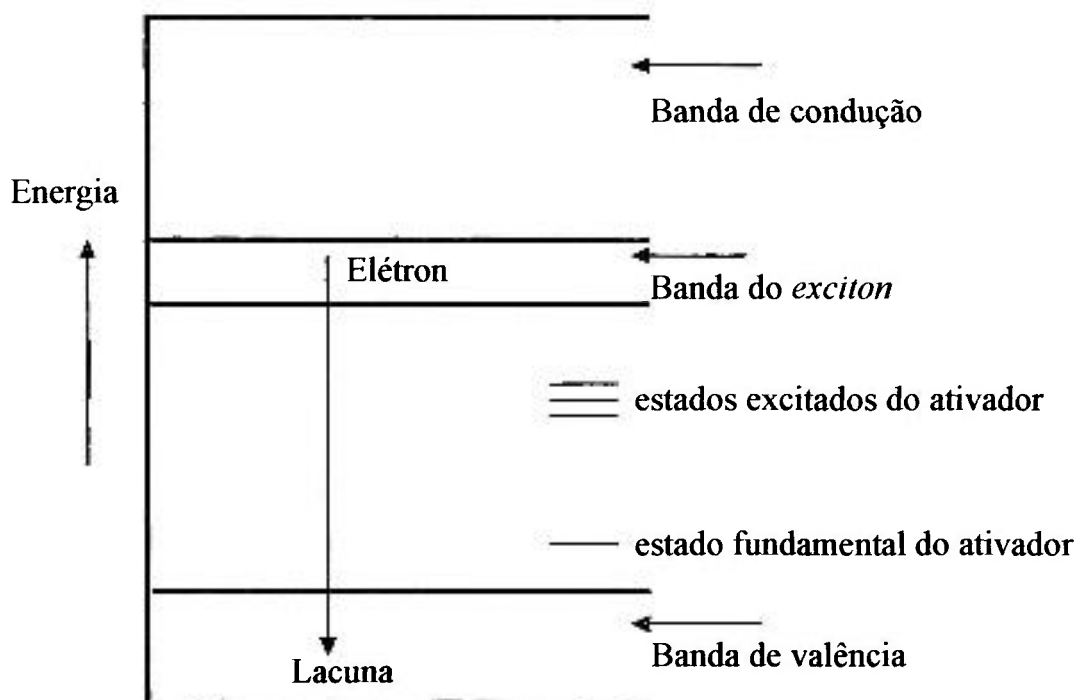


Figura 9: Esquema de bandas de energia permitidas e proibidas em um cristal.

Devido à diferença de energia relativamente alta entre as bandas, os cristais puros (intrínsecos) são de importância prática limitada embora têm sido objeto de estudos em virtude das características de velocidade do sinal luminoso produzido e em alguns casos apresentam vantagens quando comparados com a forma extrínseca contendo, por exemplo tálio, cuja cintilação possui tempo de decaimento da ordem de μs .^[18,41]

Além da diferença de energia, os espectros de absorção e emissão de energia dos cristais puros (intrínsecos) são muito próximos, o que provoca a absorção da própria luz emitida, isto é, geralmente são pouco transparentes à própria luz e conseqüentemente impõem uma restrição à sua aplicação como detectores.

Devido à promoção de elétrons da banda de valência para a banda de condução, provocada pela interação da radiação eletromagnética com o meio absorvedor, cria-se um número elevado de *excitons* na estrutura cristalina.

Além da banda do *exciton*, outros estados de energia podem ser criados entre as bandas de valência e condução devido às impurezas ou imperfeições do cristal. Particularmente importantes são os estados criados pelos átomos ativadores, por exemplo o tálio. O átomo ativador pode aparecer no estado fundamental ou em um dos estados excitados. A passagem a um estado excitado pode ser o resultado da absorção de um fóton ou da captura de um *exciton* ou da captura sucessiva de um elétron e uma lacuna. A transição do átomo impuro do estado excitado ao estado fundamental, se permitido, resulta na emissão de um fóton em um tempo da ordem de 10ns.^[2,6] Se este fóton possui um comprimento de onda na região visível do espectro eletromagnético, ele contribui para uma cintilação. Portanto, a produção de uma cintilação é o resultado da ocorrência dos seguintes eventos.^[23]

- A radiação ionizante passa através do cristal.
- Os elétrons são transferidos para a banda de condução.
- As lacunas são criadas na banda de valência.
- São formados os *excitons*.
- Os centros de ativação são promovidos a estados excitados por absorção de elétrons, lacunas e *excitons*.
- A desexcitação é acompanhada pela emissão de um fóton.

A intensidade da luz produzida e o seu comprimento de onda são duas propriedades importantes dos cintiladores. A luz emergente do cristal afeta o número de fotoelétrons gerados na entrada do tubo fotomultiplicador, o qual por sua vez afeta a altura de pulso produzida na saída do sistema detector (cristal e fotosensor). O conhecimento do comprimento de onda da luz emitida pelo cintilador é necessário, para que haja compatibilidade com a sensibilidade espectral do tubo fotomultiplicador ou fotodiodo.

1.4.3 Análise do tempo de emissão do fóton

Os fótons são emitidos como resultado do decaimento de estados excitados. A duração da cintilação depende das constantes de decaimento para os estados energéticos envolvidos.^[2,37] Experimentos mostram que a emissão de luz segue uma lei de decaimento exponencial dada pela fórmula (1.11):

$$N(t) = N_0 e^{-t/T} \quad (1.11)$$

na qual,

$N(t)$ representa o número de fótons emitidos no tempo t .

T é o tempo de decaimento do cintilador.

Muitos dos estados excitados em um cintilador têm essencialmente o mesmo tempo de vida T . Há entretanto, alguns estados com tempo de vida longo apresentando um componente lento no decaimento do cintilador conhecido como luminosidade residual.^[6] O componente de decaimento lento está presente na maioria dos cintiladores inorgânicos e pode ser importante em medidas onde é usada a saída integrada do fototubo. Os cintiladores com pouca influência do efeito de luminescência residual são o $\text{CaF}_2(\text{Eu})$ e o $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$.

Em um sistema de contagem usando um cintilador, a luz produzida pelo cristal é convertida em um fluxo de fotoelétrons o qual é amplificado pelos dinodos do tubo fotomultiplicador. No último dinodo dispõem-se de um pulso de corrente (A) de amplitude conveniente o qual é transformado num pulso de tensão (V) operado por um circuito resistivo-capacitivo (RC). O perfil desse pulso é o de uma função bi-exponencial dada pela equação (1.12):

$$V(t) = V_\infty (e^{-t/RC} - e^{-t/T}) \quad (1.12)$$

Na prática, o valor de RC é selecionado para ser da ordem de algumas centenas de microsegundos.^[23,40] Portanto, para um tempo menor, isto é, $T \ll RC$, a equação (1.12) resume-se a seguinte forma:

$$V(t) = V_{\infty} (1 - e^{-t/T}) \quad (1.13)$$

1.4.4 Propriedades importantes de alguns cintiladores inorgânicos

1.4.4.1 Cristal de NaI(Tl)

O NaI(Tl) é o cintilador mais comumente usado para detecção de raios gama. Este vem sendo produzido na forma de monocristais de várias dimensões. Possui densidade relativamente alta ($3,67\text{g/cm}^3$) e o elevado número atômico de seus elementos combinado com grande volume fazem deste cintilador, um detector de raios gama de alta eficiência. O espectro de emissão do NaI(Tl) apresenta seu pico de luminescência em 415nm e é um dos mais eficientes conversores de luz. Assim como outros materiais, o NaI(Tl) apresenta algumas propriedades não desejáveis, a saber: fragilidade, sensibilidade a gradientes de temperatura e choques térmicos. Por ser higroscópico apresenta a necessidade de ser mantido encapsulado.^[23,40]

1.4.4.2 Cristal de CsI(Tl)

O CsI(Tl) possui densidade ($4,51\text{g/cm}^3$) e número atômico maior que o do NaI (Tl); por isso sua eficiência para detecção gama é maior. A eficiência de conversão de luz do CsI(Tl) é aproximadamente 45% da eficiência do NaI(Tl) à temperatura ambiente. Apresenta constante de decaimento de aproximadamente $1\mu\text{s}$.^[12] O espectro de emissão do CsI(Tl) estende-se no intervalo de 420 a 600nm, sendo que o comprimento de onda de máxima luminescência é de 540nm. Este material é menos higroscópico do que o NaI(Tl), mas se deteriora se exposto à água ou umidade alta. O cristal de CsI(Tl) apresenta dureza menor e maior maleabilidade em relação ao NaI(Tl), apresenta melhor resistência aos choques severos, à aceleração e à vibração, assim como a maiores gradientes e mudanças repentinas de temperatura.^[12,23] Estas propriedades tornam este material apropriado para experimentos espaciais.

1.4.4.3 Cristal de CsI(Na)

A densidade e o número atômico do CsI(Na) são os mesmos do CsI(Tl). A eficiência de conversão de luz é aproximadamente 85% da eficiência do NaI(Tl). O espectro de emissão estende-se de 320 a 540nm, sendo que o comprimento de onda de máxima luminescência é em 420nm. O CsI(Na) é ligeiramente higroscópico.^[23,40]

1.4.4.4 Cristal de CaF₂(Eu)

O CaF₂(Eu) é constituído por materiais de baixo número atômico, e por esta razão é um detector eficiente para partículas beta (β) e raios-X. O CaF₂(Eu) é apropriado para medidas envolvendo radioisótopos líquidos, devido às suas características de insolubilidade e inércia química. A eficiência de conversão de luz do CaF₂(Eu) é aproximadamente 50% da eficiência do NaI(Tl). O espectro de emissão estende-se de 405 a 490nm, apresentando o comprimento de onda de máxima luminescência em 435nm.^[40]

1.4.4.5 Cristal de LiI(Eu)

O LiI(Eu) é um eficiente detector de nêutrons térmicos utilizando-se a reação ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$. As partículas alfa e o trítio, ambas partículas carregadas, produzem as cintilações. O LiI(Eu) apresenta uma densidade de 4,08g/cm³, tempo de decaimento de 1,1 μ s, e comprimento de onda de máxima luminescência em 470nm. A eficiência de conversão de luz é um terço da eficiência do NaI(Tl). Este material é muito higroscópico e está sujeito aos danos da radiação, como resultado da exposição a nêutrons.^[23,40]

1.5 TUBO FOTOMULTIPLICADOR

O tubo fotomultiplicador ou fototubo é uma parte integrante de um contador de cintilação. Sem a amplificação produzida pelo fotomultiplicador, um cintilador torna-se praticamente inútil como detector de radiação. O

fotomultiplicador é essencialmente um amplificador rápido, que em 10^{-9} s amplifica um pulso incidente de luz visível por um fator de 10^6 ou mais.^[40]

Um fotomultiplicador consiste de um tubo de vidro em vácuo com um fotocatodo na entrada e vários dinodos no seu interior. Os fótons produzidos no cintilador entram no fototubo e atingem o fotocatodo, o qual é feito de um material que emite elétrons quando atingido pela luz incidente. Os elétrons emitidos pelo fotocatodo são guiados, com a ajuda de um campo elétrico, em direção ao primeiro dinodo, o qual é revestido com uma substância que emite elétrons secundários. Os elétrons secundários do primeiro dinodo movem-se em direção ao segundo, do segundo dinodo movem-se em direção ao terceiro, e assim por diante. Fototubos comerciais típicos possuem até 15 dinodos. A produção de elétrons secundários por dinodos sucessivos resulta em uma amplificação final do número de elétrons.

Os elétrons produzidos no fototubo são direcionados de um dinodo para outro através de um campo elétrico estabelecido pela aplicação sucessivamente crescente de um potencial elétrico para cada dinodo. A diferença de voltagem entre dois dinodos sucessivos é da ordem de 80-120V para a maioria dos tubos fotomultiplicadores.

O material do fotocatodo usado na maioria dos fototubos comerciais é um composto de césio e antimônio (Cs-Sb). O material usado no revestimento dos dinodos é também o composto (Cs-Sb) ou prata-magnésio (Ag-Mg). A taxa de emissão secundária dos dinodos depende do tipo de superfície e da voltagem aplicada. Em tubos fotomultiplicadores bi-alcálicos o material do fotocatodo é um composto de (Cs-Rb-Sb) ou (Cs-K-Sb), o qual apresenta resposta espectral similar ao fotocatodo de (Cs-Sb), porém tem maior sensibilidade e ruído menor.^[20]

O parâmetro mais importante dos tubos fotomultiplicadores é a sensibilidade espectral do fotocatodo. Para obter-se melhores resultados, o espectro do cintilador deve ser compatível com a sensibilidade do fotocatodo. A superfície

(Cs-Sb) tem uma sensibilidade máxima em 440nm, a qual corresponde a resposta espectral de muitos cintiladores.

Outro parâmetro importante de um fototubo é a magnitude de sua corrente de escuro. A corrente de escuro consiste principalmente de elétrons emitidos pelo catodo por absorção de energia térmica. Este processo é chamado emissão termiônica. Um fotocatodo, com diâmetro de 50mm, pode liberar no escuro aproximadamente 10^5 elétrons/s à temperatura ambiente.^[23] Evidentemente, a magnitude da corrente de escuro é importante em casos onde a fonte de radiação é de pouca intensidade.

1.6 FOTODIODO

Fotodiodos são sensores de luz construídos com material semicondutor capazes de gerar uma corrente elétrica quando fótons de luz incidem na junção P-N do material semicondutor dopado.^[19]

Existem vários tipos de fotodiodos, a saber: PNN⁺, Schottky, APD ou de avalanche e os fotodiodos tipo PIN. Os fotodiodos PIN são atualmente os de maior interesse nas aplicações de detecção da radiação quando acoplados à cintiladores.

A Figura 10 mostra um diagrama do sistema detector, constituído pela combinação do cristal cintilador e do fotodiodo. O material da camada P da superfície ativa e o material N do substrato formam a junção P-N a qual opera como conversor fotoelétrico. A camada P para um fotodiodo de silício é formada pela difusão seletiva de boro em uma espessura de aproximadamente 1 μ m. A região neutra entre a camada P-N é conhecida como camada de depleção. A resposta espectral relaciona a eficiência de resposta “S” do fotodiodo em função da energia

$E(\text{eV})$ dos fótons de luz incidentes. A energia $E(\text{eV})$ dos fótons de luz está relacionada pela fórmula:

$$E(\text{eV}) = h\nu = h\frac{c}{\lambda} \quad (1.14)$$

na qual $h = (6,6254 \pm 0.0002) 10^{-34} \text{ J s}$ é a constante de Planck.

O termo fotodiodo abrange várias aplicações, como por exemplo as baterias solares, entretanto no presente trabalho, ele se refere ao sensor usado para detectar a luz proveniente do processo de conversão da energia das radiações ionizantes em fótons de luz visível ou próxima do visível no cintilador.

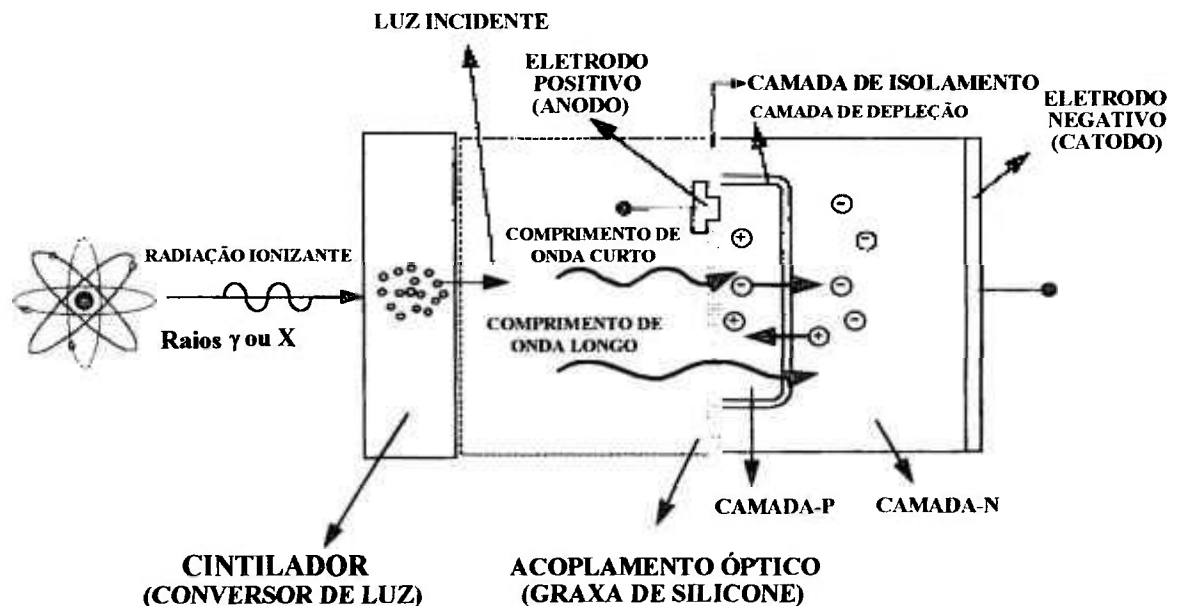


Figura 10: Diagrama geral do sistema detector: cintilador e fotodiodo.

A intensidade da corrente produzida no fotodiodo, denominada como fotocorrente, depende do comprimento de onda dos fótons incidentes. ^[23] A relação

da sensibilidade em função do comprimento de onda é caracterizada pela resposta espectral em termos da eficiência quântica. A sensibilidade, S , do fotodiodo é definida pela razão entre a corrente gerada no fotodiodo em [A] e a energia depositada pelos fótons incidentes no fotodiodo por unidade de tempo em [W].^[19] Assim S tem as unidades de [AW⁻¹]. Em algumas situações é comum expressar a sensibilidade em termos percentuais tomando-se como referência a altura do pico da curva espectral (Figura 12). Para fins práticos, o fotodiodo é considerado sensível para um determinado comprimento de onda λ (nm) quando sua resposta for maior que 5% do pico da curva de sensibilidade (Figura 12a).

A eficiência quântica (EQ) é definida como a razão entre a fotocorrente (A) pelo número de fótons de luz incidentes. Essa razão é representada percentualmente pela equação:

$$EQ = \frac{S \cdot 1240}{\lambda} \cdot 100(\%) \quad (1.15)$$

na qual S é a fotosensibilidade (AW⁻¹) para o comprimento de onda λ (nm), e o valor 1240^[19] é uma constante.

Na junção P-N do fotodiodo é formada uma capacitância intrínseca a qual é proporcional à área efetiva do fotodiodo. Da teoria dos capacitores sabe-se que a capacitância resultante da associação de duas placas é proporcional à área das placas e inversamente proporcional à distância entre as placas. No fotodiodo a espessura da camada de depleção é função da tensão aplicada na junção. Deste modo a capacitância formada na junção será diretamente proporcional à área do fotodiodo e inversamente à distância da camada de depleção, isto é, inversamente proporcional à tensão aplicada aos terminais do fotodiodo. Desses aspectos teóricos pode-se inferir que a capacitância será tanto menor quanto menor for a área do fotodiodo e maior a tensão aplicada.

Dentre os parâmetros de qualidade de um sistema detector, a relação da altura do sinal produzido pela interação da radiação e os sinais espúrios (ruído eletrônico) têm maior importância. A intensidade do ruído eletrônico no sistema detector contendo o fotodiodo é relacionada com a temperatura e com a capacitância intrínseca do sistema. O ruído é proporcional a temperatura na qual o sistema está operando e a capacitância intrínseca do fotodiodo.

A resolução de um detector é um parâmetro de qualidade do mesmo, a qual expressa a sua capacidade de discriminar a energia da radiação incidente. Quando uma radiação monoenergética excita o detector este responde com um pulso elétrico que é proporcional à quantidade da energia incidente. Nesse pulso está presente o ruído eletrônico e assim o seu valor flutua proporcionalmente em função dos pulsos do ruído eletrônico. Entretanto as alturas dos pulsos do ruído eletrônico não são constantes e praticamente estão distribuídas em uma função semi-gaussiana. A fim de expressar a resolução (capacidade de discriminar energia) numericamente utiliza-se o valor da dispersão tomada à meia altura da largura dividido pela posição do pico^[23], conforme mostra a Figura 11.

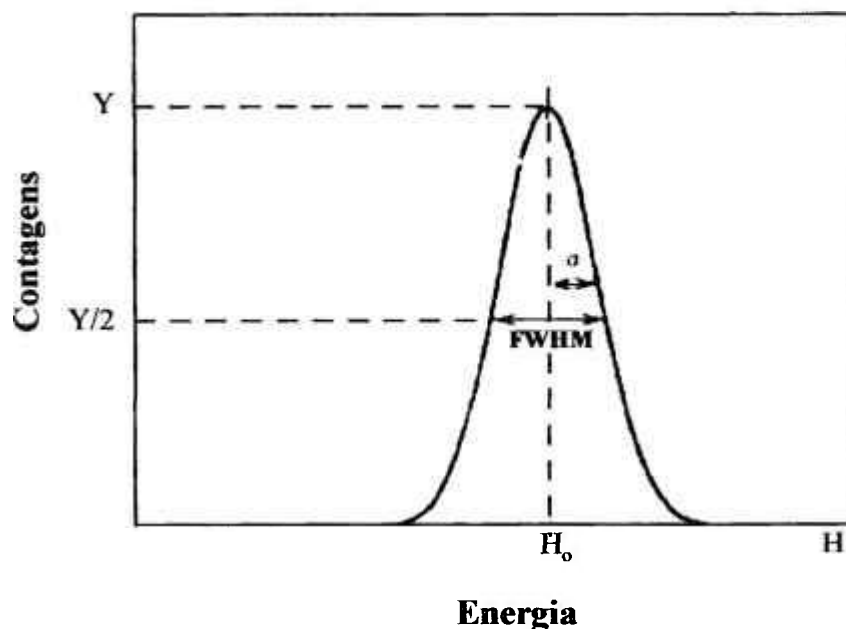


Figura 11: Definição de resolução do detector.

A flutuação observada nos sinais produzidos pela irradiação do detector com uma fonte monoenergética é devida basicamente a duas componentes: de origem no ruído eletrônico do sistema e do próprio detector. A energia depositada no detector gera um fluxo de íons que migram para os respectivos eletrodos e nesse percurso sofrem perdas aleatórias.^[23] A flutuação devida a este efeito é uma propriedade do detector e é denominada de resolução intrínseca. A flutuação do sinal devida ao ruído eletrônico pode ser controlada a um nível desejado em função, por exemplo, da temperatura ambiente, do tamanho do fotodiodo e das características dos componentes eletrônicos utilizados.

O ruído eletrônico do sistema detector que utiliza o fotodiodo é proporcional ao tamanho da área do fotodiodo. Fotodiodos de pequena área produzem espectros de energia com melhor resolução, entretanto com menor eficiência de detecção. Deste modo há um compromisso de custo-benefício. Fotodiodos com pequena área são pouco eficientes e assim deixam de ser úteis. Na prática fotodiodos tipo PIN com superfície de 1 a 4cm² atendem melhor a relação custo-benefício e portanto são os mais utilizados. Como o ruído e conseqüentemente a resolução são piorados pela capacitância intrínseca do fotodiodo, procura-se reduzir esse efeito aumentando-se a tensão reversa aplicada a junção P-N. Essa tensão é limitada a aproximadamente 70V tendo em vista a possibilidade de ruptura da junção.

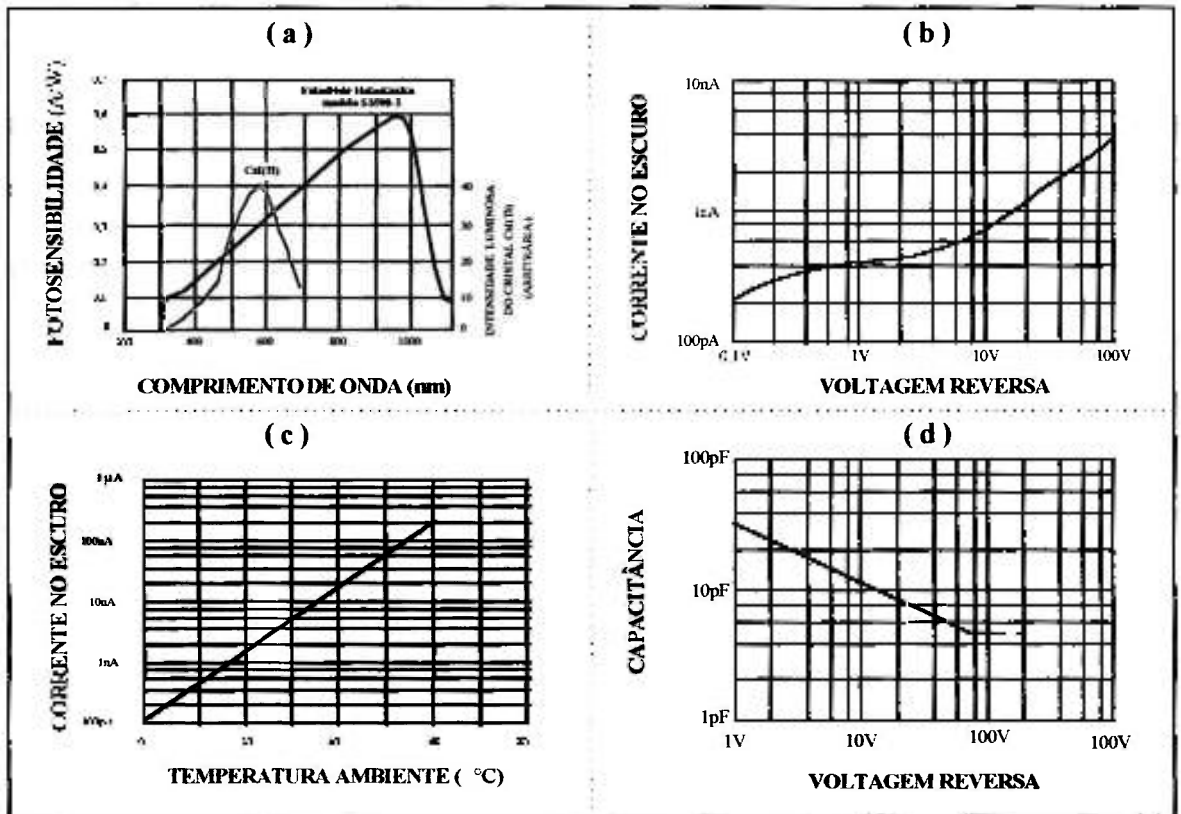


Figura 12: Características do fotodiodo tipo PIN modelo S-3590-3 (Hamamatsu) com superfície ativa de 10mm^2 . (a) Fotosensibilidade em função do comprimento de onda dos fótons incidentes, (b) efeito da corrente de fundo em função da tensão reversa aplicada aos seus terminais, (c) efeito da temperatura na corrente de escuro e (d) capacitância intrínseca do fotodiodo em função da tensão reversa.

Os fotodiodos de silício possuem várias vantagens quando comparados ao tubo fotomultiplicador como: baixa demanda de potência e tensão, tamanho reduzido, estabilidade e robustez, baixo custo e alta eficiência quântica (90%). Os fotodiodos são também insensíveis a campos magnéticos e portanto podem ser utilizados em experimentos onde campos magnéticos impedem o uso de tubos fotomultiplicadores.^[23]

1.7 PRÉ-AMPLIFICADORES

A carga total gerada pelo fotosensor, após a incidência de fótons de raios gama sobre o cristal de CsI(Tl), ainda é muito pequena para ser processada. A fim de permitir o processamento (contagem de pulsos) é necessária uma amplificação intermediária deste sinal e a combinação de impedância com os módulos eletrônicos subsequentes. Esta tarefa é executada por um pré-amplificador^[4]

Os pré-amplificadores apresentam-se em dois tipos básicos: sensível à voltagem e sensível à carga. O pré-amplificador utilizado é do tipo sensível à carga, isto é, na sua saída tem-se um pulso de tensão cuja amplitude é proporcional à carga do pulso fornecida pelo fotosensor. Para minimizar ruídos e evitar uma carga capacitiva sobre o detector, o pré-amplificador geralmente deve ser localizado o mais próximo possível do detector.

Neste trabalho foi utilizado um pré-amplificador sensível à carga especificamente desenvolvido para o cristal de CsI(Tl) acoplado ao fotodiodo tipo PIN.

1.8 PROPÓSITO DO TRABALHO

Neste contexto, o objetivo do presente trabalho foi produzir cristais de iodeto de cério ativados com tálio [CsI(Tl)] em várias dimensões e caracterizá-los como detectores de radiação.

Com a finalidade de avaliar o cintilador desenvolvido foram realizados ensaios físico-químicos nos cristais de CsI(Tl) obtidos pela técnica de Bridgman e

procurou-se estabelecer rotinas de controle de qualidade, efetuando-se medidas a saber:

- espectro de emissão luminosa;
- duração do tempo de decaimento de luminescência;
- eficiência global de contagem;
- determinação da resolução energética para a radiação gama.

2. MATERIAIS E MÉTODOS

O crescimento de cristais de iodeto de céσιο ativados com tálio [CsI(Tl)] foi efetuado pela técnica de Bridgman.^[22,26,39] A seguir são apresentadas as descrições dos métodos, materiais e equipamentos utilizados para a sua obtenção e caracterização.

2.1 MATERIAIS E REAGENTES

- Sal de iodeto de céσιο (CsI) 99,99% (Metal Gesellschaft K.K., Alemanha).
- Sal de iodeto de tálio (TlI) 99,999% (Aldrich Chemical Company, USA).
- Iodo elementar 99,999% (Merck).
- Ácido fluorídrico (HF) 40% P.A. (Merck).
- Detergente neutro, Extran MA-02 (Merck).
- Tubos de quartzo com comprimento de 1200mm, diâmetro externo 42mm e diâmetro interno 38mm, (Vidrolex).
- Graxa de silicone de viscosidade de 0.5 McStokes (Dow Corning).
- Ácido nítrico (HNO₃) P.A. (Merck).

2.1.1 Equipamentos utilizados

a) crescimento de cristais

- Forno construído no IPEN/CNEN-SP, nas dimensões de 200mm por 200mm e altura 600mm (vide item 2.2.1).
- Controlador de temperatura com microprocessador, modelo E5T (OMRON).
- Sistema de vácuo, composto de bomba mecânica e bomba difusora com seus respectivos sensores (Pirani e Penning), modelo SB63/M5MCR (Edwards).
- Balança analítica, modelo H-14 (Metler).
- Termopar cromel-alumel tipo K com condutores de 0,3mm de diâmetro cada.
- Estufa de secagem e esterilização, modelo 315 SE (FANEM).

b) polimento de cristais

- Tecido de algodão (100%).
- Torno de bancada, modelo B9 (South Bend).
- Serra de disco diamantado (ISOMET 11-1180 Low Speed Saw).
- Politriz com sistema mecânico adaptado (Precision Scientific).

- Abrasivos: lixas abrasivas de papel com granulometria 400 e 600 mesh.
- Lubrificantes: etileno glicol, P.A. (Merck); álcool etílico 95%, P.A.(Carlo Erba).

c) caracterização dos cristais

- Espectrofotômetro UV-visível DMS-80 (Intralab).
- Espectrômetro de emissão óptica (Jarrell-Ash).
- Difratorômetro, modelo RINT2000 (Rigaku).
- Espectrômetro de fluorescência de raios-X, modelo semi automático (Rigaku-Denki).
- Fotomultiplicadora bi-alcalina, modelo XP2202B (Amperex).
- Pré-amplificador, modelo 276 (Ortec).
- Pré-amplificador especificamente construído para este detector.
- Amplificador, modelo 450 (Ortec).
- Analisador multicanal, modelo 918A (Ortec).
- Osciloscópio, modelo PM 3295A (Philips).

- Fonte de alta tensão, modelo 556 (Ortec).
- Pulsador de sinais, modelo 419 (Ortec).
- Monocromador, modelo FP550A (JASCL).

2.2 PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL PARA REALIZAÇÃO DE CRESCIMENTO DE CRISTAIS DE CsI(Tl)

O crescimento de cristais de CsI(Tl) foi efetuado utilizando-se forno vertical de uma polegada de diâmetro devidamente calibrado, tubos de quartzo em vácuo de 10^{-6} mbar e sal de CsI 99,99%. Os tubos de quartzo foram submetidos a uma constrição em sua parte central superior, onde foi colocado pequenos cilindros de quartzo de diâmetro um pouco menor que o diâmetro interno dos tubos, para facilitar o selamento dos mesmos por meio de uma solda de oxi-acetileno. A outra extremidade dos tubos de quartzo foi afinada, para que o núcleo inicialmente formado nesta região possa servir de orientação para o crescimento do cristal. Foi escolhido o quartzo como material do cadinho, no processo de crescimento de cristais, por este obedecer aos seguintes fatores:

- Ser térmico e mecanicamente estável até pelo menos 100°C acima do ponto de fusão do material a ser cristalizado.
- Ser quimicamente inerte ao material fundido e não influenciar as propriedades do cristal.
- Ser resistente a atmosfera onde é realizado o crescimento do cristal.

- Ser resistente às mudanças de temperatura e ao mesmo tempo ter baixa condutividade térmica em gradientes de temperatura elevados.

As etapas do crescimento de cristais de CsI(Tl) são descritas a seguir:

2.2.1 Construção do forno para o crescimento de cristais

Foi construído um forno para o crescimento de cristais pela técnica de Bridgman, com o objetivo de permitir a produção de cristais de CsI(Tl); e também torná-lo versátil para o crescimento de outros cristais haletos alcalinos, com ponto de fusão abaixo de 1000°C. Foram realizados estudos das características térmicas do forno, no intuito de se obter uma curva de temperatura ideal ao crescimento.

O forno é revestido na parte externa por uma chapa de alumínio nas dimensões de 200mm por 200mm e altura de 600mm. Na parte central, possui um tubo em alumina (Al_2O_3) com um diâmetro interno de 43mm. Entre a carcaça de alumínio e o tubo de Al_2O_3 foi usado asbesto, como isolante térmico.

Utilizou-se fio KANTHAL “A” (Fe/Cr/Al), de 1mm de diâmetro como elemento resistivo, enrolado ao tubo de alumina. O referido fio pode alcançar temperatura máxima de 1300°C sem alterar seu estado, para isolamento do fio foram utilizados capilares cerâmicos em alumina. A parte central foi enrolada com um espaçamento menor que as partes superior e inferior, a fim de manter a região central do forno a uma temperatura mais elevada.

Antes de iniciar o crescimento dos cristais de CsI(Tl), estudou-se o perfil de temperatura do forno identificando-se com segurança as duas zonas de temperatura do forno, a saber: zona quente e zona fria. Para isso utilizou-se um

termopar de cromel-alumel. A Figura 13 mostra o perfil de temperatura do forno. Para controle da temperatura do forno construído, foi utilizado um controlador-temporizador de temperatura com microcontrolador e um sensor termopar de cromel-alumel. A potência máxima do forno é 1500W.



Figura 13: Perfil de temperatura do forno utilizado no crescimento de cristais de CsI(Tl).

2.2.2 Tratamento químico e térmico do tubo de quartzo

Os tubos de quartzo foram mergulhados em uma solução de limpeza (Extran MA 02 Neutro a 1%) por 4h e enxaguados em água deionizada. A seguir foram colocados em uma solução de HF a 5% por 20min com a finalidade de retirar completamente as impurezas, esse tempo não deve ser ultrapassado para não

comprometer a qualidade do quartzo pelo ataque excessivo do HF. Após um novo enxague, os tubos foram mergulhados em água deionizada por 30min. Terminado o processo de lavagem, os tubos foram envolvidos em papel alumínio e colocados em estufa para secagem.

Na etapa seguinte colocou-se um dos tubos de quartzo em vácuo de 10^{-6} mbar e temperatura de 500°C por 4h. Este procedimento mostrou-se necessário para minimizar o problema da aderência do cristal nas paredes do cadinho, pois diminui consideravelmente a umidade residual; removendo também as impurezas que poderiam estar aderidas, podendo estas interferir no processo de crescimento dos cristais.

2.2.3 Purificação do sal de CsI

O sal de CsI foi submetido ao processo de purificação em vácuo de 10^{-6} mbar e temperatura de 200°C por 3h com a finalidade de remover a água residual. O tubo de quartzo foi preenchido em aproximadamente 40% do seu volume (calculado da extremidade afinada até a constrição feita anteriormente) com o sal de CsI e o ativador tálio obedecendo a razão molar $[\text{TI}]/[\text{CsI}] = 10^{-3}$. Finalizado o processo de purificação, foi adicionado 0,05% de iodo elementar em atmosfera inerte de argônio puro. Este procedimento foi efetuado para evitar a formação de vacâncias na estrutura cristalina. A seguir levou-se o conjunto à linha de vácuo até atingir 10^{-6} mbar e efetuou-se o selamento do tubo.

2.2.4 Crescimento dos cristais de CsI(Tl)

Após as etapas anteriormente descritas iniciou-se o crescimento dos cristais pela técnica de Bridgman, utilizando-se o forno de duas zonas (quente e fria). O tubo de quartzo contendo o sal de CsI e o ativador Tl foi posicionado na zona quente do forno, e fundidos à temperatura de 700°C. Após a fusão completa do sal foi necessária a estabilização da temperatura para iniciar o deslocamento do tubo, o qual foi feito em direção à zona fria a uma velocidade de 1mm h⁻¹. A temperatura foi rigorosamente controlada utilizando-se um controlador com microprocessador. Este deslocamento em direção à zona fria do forno, permite que o crescimento do cristal no tubo seja sempre da extremidade inferior à superior. Deve-se também controlar a umidade e temperatura do ambiente durante o crescimento para garantir um adequado funcionamento do sistema. O esquema do sistema de purificação e crescimento de cristais de CsI(Tl) pela técnica de Bridgman é mostrado na Figura 14:

Os que não atenderam a esses critérios foram reprocessados, isto é, repurificados, fundidos e crescidos.

Os cristais apresentavam coloração levemente violeta devido a presença do iodo elementar o qual foi retirado com álcool isopropílico P.A. e algodão hidrófilo. A seguir iniciou-se o tratamento térmico, transferindo-se o cristal para um tubo de quartzo limpo. Neste procedimento utilizou-se vácuo de 10^{-4} mbar e temperatura de 200°C por 3h. Esse procedimento é repetido até a retirada completa do iodo em excesso.

2.3 USINAGEM E POLIMENTO DOS CRISTAIS

Os cristais obtidos foram usinados nas dimensões de 20mm de diâmetro por 20mm de altura em torno de bancada (South Bend, modelo B9) para usinagem de pequenas peças, e cortados com serra de disco diamantado (ISOMET 11-1180 Low Speed Saw). O corte foi feito lentamente, evitando-se choques mecânicos. Em seguida foram polidos com lixas abrasivas de papel de granulação apropriada, iniciando-se com granulometria 400 e diminuindo-se a granulometria gradativamente até que foram eliminados os riscos grosseiros. Na etapa posterior foram polidos com etileno glicol P.A. ($C_2H_6O_2$), em uma politriz (Precision Scientific) utilizando-se tecido de algodão 100%, obtendo-se superfícies opacas e com riscos leves. Como polimento final utilizou-se álcool etílico 95% P.A. para umedecer o tecido na politriz, sendo que gradualmente os riscos e a opacidade foram desaparecendo.

O polimento de cristais higroscópicos difere do polimento de metais ou vidros em dois aspectos: o material é de baixa dureza e pode deteriorar-se em presença de umidade. A baixa dureza do cristal significa que o polimento é rápido e

que em curto intervalo de tempo uma camada considerável de material pode ser removida.

O movimento do cristal sobre as lixas abrasivas de papel e sobre a politriz durante o polimento deve ser em forma de '8', para que o desgaste da superfície seja homogêneo, obtendo-se assim, uma superfície plana. O polimento termina quando as duas faces estiverem completamente lisas e o cristal totalmente transparente. As superfícies laterais são deixadas sem polimento para melhorar a reflexão interna^[5].

Após rigoroso tratamento de usinagem e polimento obteve-se cristais completamente transparentes e superfícies planas isentas de riscos ou orifícios, que funcionam como centros espalhadores de radiação.

2.4 ESPECTROGRAFIA DE EMISSÃO ÓPTICA

O material de partida (CsI) foi analisado por um espectrômetro de emissão óptica (Jarrell-Ash), com a finalidade de determinar traços de eventuais impurezas.

2.5 FLUORESCÊNCIA DE RAIOS-X

Afim de determinar a concentração das impurezas do cristal, em particular do elemento ativador tálio, foram efetuadas análises semiquantitativas em amostras de CsI(Tl) por meio da técnica de fluorescência de raios-X, utilizando-se um espectrômetro de fluorescência de raios-X (modelo semi automático da Rigaku-Denki Co.Ltd.).

2.6 ABSORÇÃO ATÔMICA

Com a finalidade de avaliar a homogeneidade da concentração de tálio em cristais de CsI(Tl), utilizou-se a técnica analítica de absorção atômica de chama. Amostras do cristal foram cortadas em 9 fatias de 9mm cada, como mostra a Figura 15.

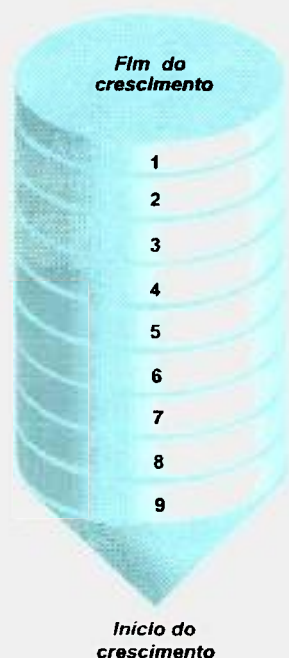


Figura 15: Esquema em corte do cristal de CsI(Tl)

Frações (70mg) das amostras fatiadas foram colocadas em copos graduados separadamente e dissolvidas em solução de HNO_3 (2:3). As soluções foram aquecidas à 40°C sob agitação até ficarem transparentes.

A solução para o “branco” foi preparada com o sal de CsI em HNO_3 (2:3), na mesma concentração das amostras. Esta solução também é utilizada para a preparação da curva padrão.

2.7 DIFRAÇÃO DE RAIOS-X

A análise por difração de raios-X em cristais de CsI(Tl), com a finalidade de determinar a estrutura cristalina, foi feita pelo método de difratometria do pó, à temperatura ambiente, utilizando-se um difratômetro (Rigaku modelo RINT2000), nas seguintes condições:

- radiação: K-alfa do Cu
- velocidade de varredura: 2°min^{-1}
- tensão: 40kV
- corrente: 30mA

2.8 ENSAIOS ÓPTICOS

As propriedades ópticas foram determinadas por meio de ensaios de transmitância em amostras de cristal de CsI(Tl), utilizando-se um espectrofotômetro UV-visível (DMS-80 Intralab). A região espectral de abrangência foi de 190nm a 900nm, e o comprimento do caminho óptico foi de 1cm. Os espectros de transmissão óptica foram obtidos da comparação entre dois feixes: um que atravessa a amostra e o outro que atravessa um padrão (neste trabalho foi utilizado o ar). Nessas medidas obtém-se a transmitância da amostra, em função do comprimento de onda da radiação.

2.9 EMISSÃO DE LUMINESCÊNCIA

O espectro de emissão de luminescência foi determinado por meio do sistema representado na Figura 16, que consiste basicamente de uma fonte

radioativa colocada em frente ao cristal cintilador de CsI(Tl). A emissão de luz do cintilador é filtrada por um monocromador (marca JASCL, modelo FP550A) com resolução de 20nm , que por sua vez está acoplado opticamente à fotomultiplicadora que converte os pulsos de luz provenientes do cintilador em impulsos elétricos que serão analisados pelo sistema de análise constituído de um pré-amplificador, um amplificador e um contador de pulsos associado a um cronômetro. A determinação do espectro de emissão do cintilador foi feita ajustando um determinado comprimento de onda no monocromador e efetuando as contagens de pulsos em presença da fonte de radiação, e assim sucessivamente para vários comprimentos de onda dentro de uma faixa definida no intervalo de 200nm a 800nm.

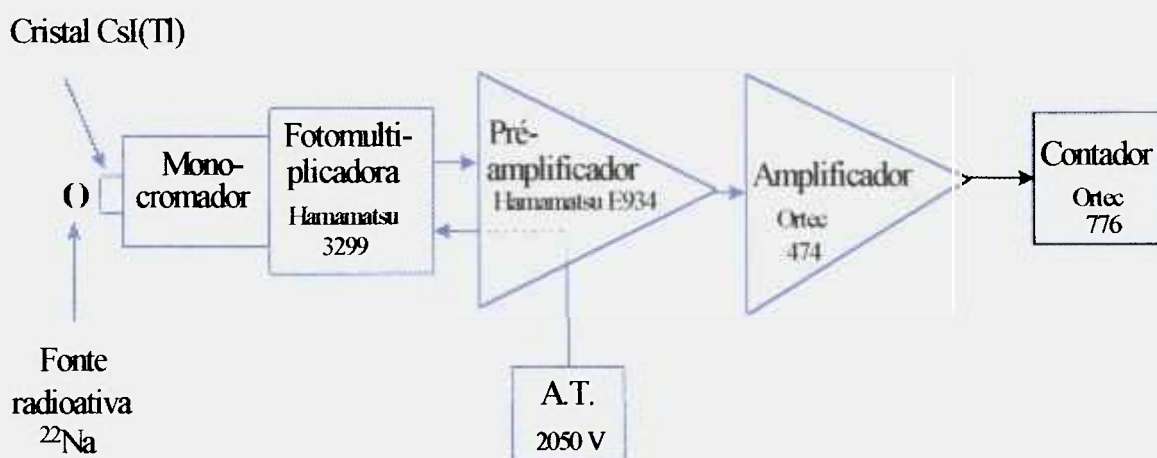


Figura 16: Diagrama esquemático do sistema de medidas do espectro de emissão luminosa do cintilador de CsI(Tl).

2.10 TEMPO DE DECAIMENTO DE LUMINESCÊNCIA

O tempo de decaimento de luminescência, foi determinado pela análise do sinal de anodo da fotomultiplicadora amostrado na tela de um osciloscópio (Philips modelo PM 3295A) e registrado fotograficamente. Com a fotografia do sinal de anodo da fotomultiplicadora foram obtidos os pares: altura de

pulso [mV] em função do tempo (μs). A partir do gráfico dos dados obtidos em escala semi-logarítmica foi calculada a inclinação da reta H. O tempo de decaimento foi determinado pelo inverso deste valor.

2.11 CARACTERIZAÇÃO DO CRISTAL COMO SENSOR DE RADIAÇÃO

No estudo da espectrometria gama, o cristal foi usinado, polido e acoplado diretamente à fotomultiplicadora bi-alcalina (Amperex modelo XP2202B) usando-se graxa de silicone (Dow Corning) de viscosidade de $0,5\text{McStokes}^{[15]}$ como interface óptica. As fontes radioativas foram posicionadas no centro da face superior do cristal. Os módulos eletrônicos utilizados para o tratamento dos sinais provenientes da fotomultiplicadora foram os seguintes:

- pré-amplificador (Ortec modelo 276),
- amplificador (Ortec modelo 450),
- fonte de alta tensão (Ortec 556),
- analisador multicanal (ADCAM Ortec modelo 918A),
- osciloscópio Philips (PM3295A 400MHz) e
- microcomputador PC 486.

Esse sistema está representado pelo diagrama da Figura 17.

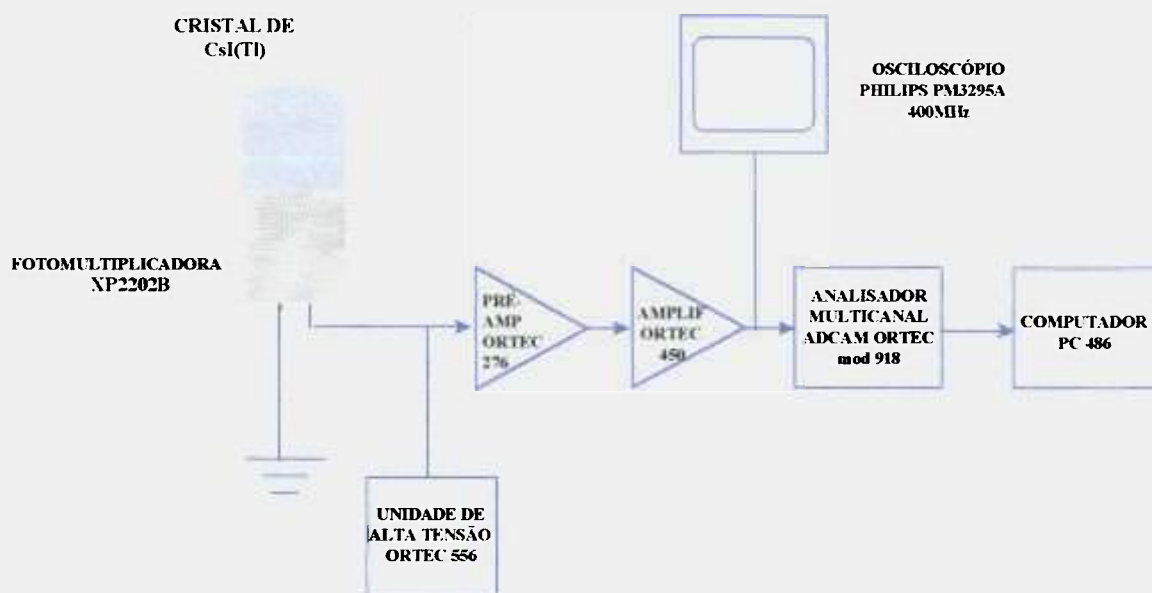


Figura 17: Representação esquemática da eletrônica associada ao cristal de CsI(Tl) acoplado à fotomultiplicadora.

Posteriormente os mesmos cristais de CsI(Tl) foram acoplados opticamente com a graxa de silicone a fotodiodos PIN (Hamamatsu modelo S-3590-3) com área sensível de $10 \times 10 \text{ mm}^2$. Nessa montagem os módulos eletrônicos utilizados para a análise dos sinais gerados pelo fotodiodo foram constituídos por:

- gerador de pulsos (Ortec modelo 419),
- pré-amplificador especificamente construído para este detector,
- amplificador (Ortec modelo 450),
- fonte de alta tensão (Ortec 459),
- analisador multicanal (ADCAM Ortec 918),
- osciloscópio (Philips PM3295A 400MHz) e
- microcomputador PC486.

Esse sistema está representado pelo diagrama da Figura 18.

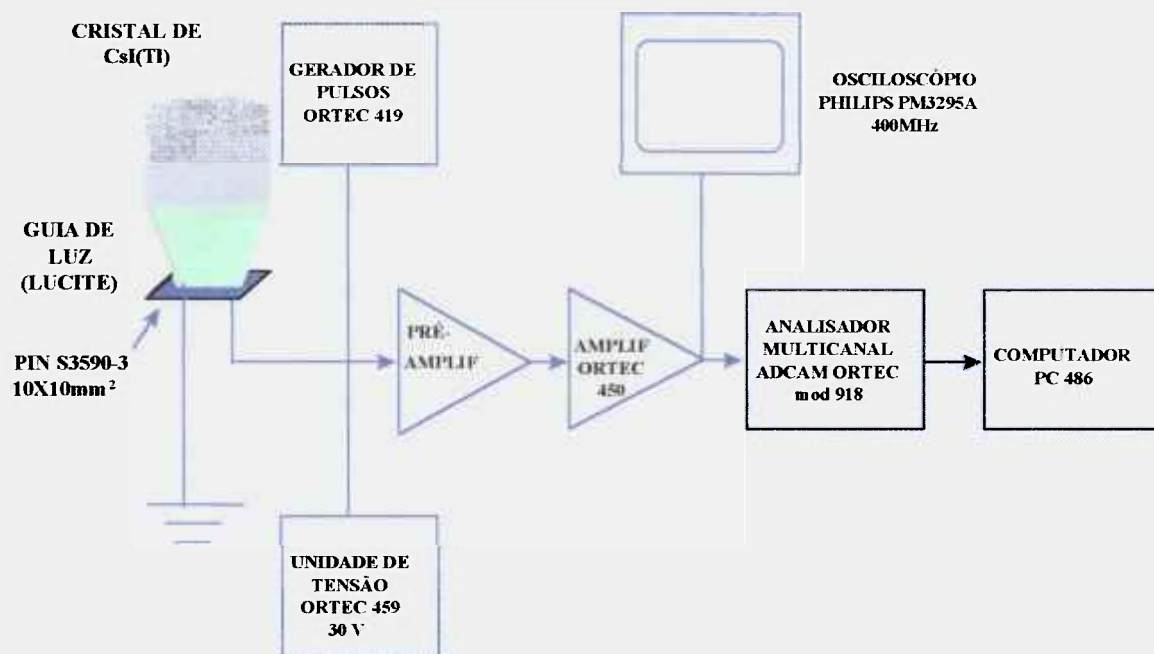


Figura 18: Representação esquemática da eletrônica associada ao cristal de CsI(Tl) acoplado a fotodiodo.

2.11.1 Resolução do detector

A capacidade de resolução energética do sistema detector-fotosensor, expressa percentualmente, foi determinada pela razão entre a largura total à meia altura (FWHM) e a respectiva energia do fotopico.

A resolução energética do sistema detector cristal de CsI(Tl) acoplado à fotomultiplicadora foi determinada utilizando-se fontes de radiação gama. A tensão de operação da fotomultiplicadora foi de 1300V, e o tempo de acumulação no processo de contagem foi de 300s. Foi estudada também a resolução energética do detector cristal de CsI(Tl) acoplado ao fotodiodo tipo PIN, associado a um

gerador de pulsos para determinar o efeito do ruído do sistema eletrônico. A tensão de operação de alimentação do fotodiodo foi de 30V.

A resolução intrínseca foi calculada pela expressão:

$$\text{Resolução intrínseca} = \sqrt{(R.Bruta^2) - (R.Pulsador^2)} \quad (2.1)$$

na qual,

R.Bruta é a resolução bruta do fotopico;

R.Pulsador é a resolução do gerador de pulsos

2.11.2 Eficiência do detector

A eficiência do sistema de detecção foi determinada para fótons de diferentes energias, utilizando-se fontes de ^{99m}Tc , ^{131}I , ^{22}Na , ^{137}Cs , ^{54}Mn e ^{60}Co . A equação utilizada para o cálculo da eficiência foi:

$$\eta = \frac{c}{A \cdot \varepsilon \cdot Fg \cdot T} \quad (2.2)$$

na qual,

c : contagem líquida no fotopico

A : atividade da fonte [Bq]

ε : fração de decaimento na energia específica

Fg : fator geométrico

T : tempo de contagem [s]

3. RESULTADOS

3.1 CRISTAL DE IODETO DE CÉSIO ATIVADO COM TÁLIO CsI(Tl) OBTIDO PELA TÉCNICA DE BRIDGMAN

A Figura 19 mostra um cristal de CsI(Tl) com razão molar $[Tl] / [CsI] = 10^{-3}$ crescido pela técnica de Bridgman a uma taxa de 1mm h^{-1} . Este cristal tem 20mm de comprimento e 20mm de diâmetro. O tempo total de crescimento foi de 120 horas.

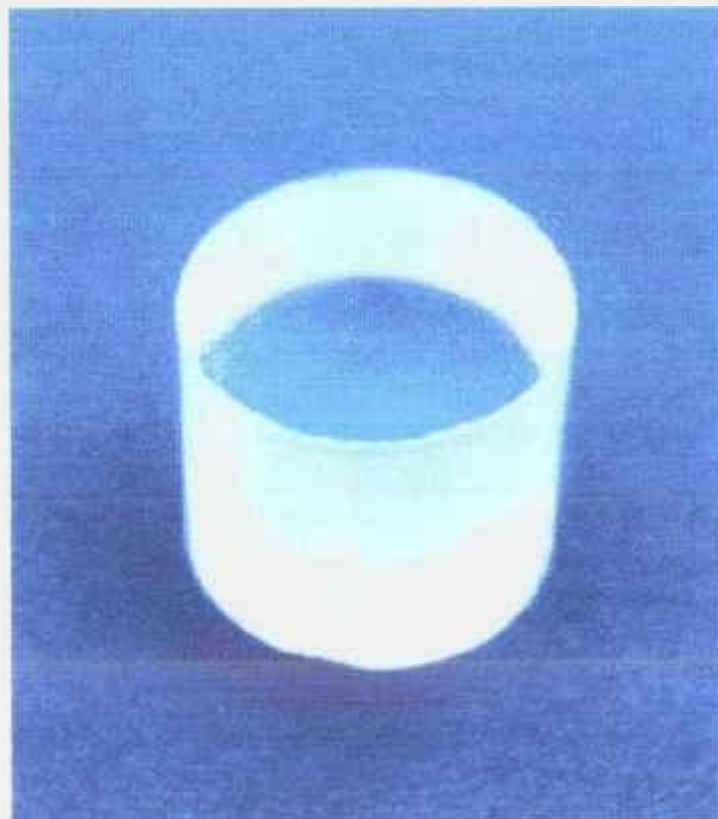


Figura 19: Cristal de CsI(Tl) obtido por meio da técnica de Bridgman.

A Figura 20 mostra um cristal de CsI(Tl) acoplado opticamente com graxa de silicone ao fotodiodo PIN (Hamamatsu modelo S3590-3) com área sensível de $10 \times 10 \text{mm}^2$.



Figura 20: Cristal de CsI(Tl) acoplado ao fotodiodo tipo PIN (Hamamatsu modelo S3590-3) com área sensível de $10 \times 10 \text{mm}^2$.

A Figura 21 apresenta o sistema de detecção que utiliza o cristal cintilador CsI(Tl) com acoplamento ao fotodiodo tipo PIN (Hamamatsu modelo S3590-3) com área sensível de $10 \times 10 \text{mm}^2$. O fotodiodo é polarizado e seus sinais são processados pelo pré-amplificador especificamente desenvolvido para esta configuração.

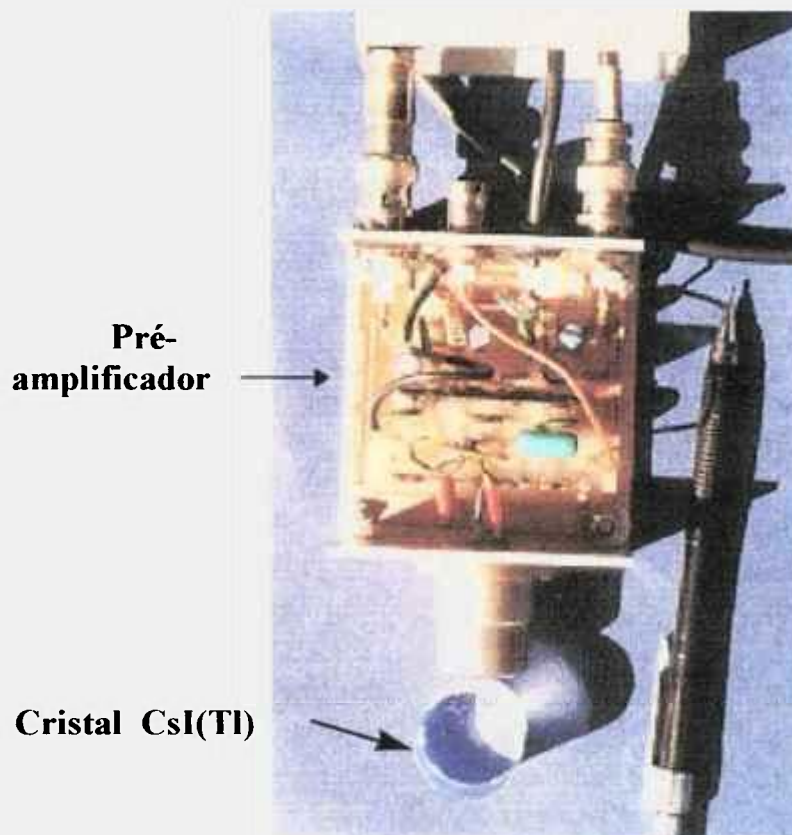


Figura 21: Sistema de detecção, que utiliza o cristal CsI(Tl) com pré-amplificador especificamente desenvolvido para esta configuração.

3.2 ANÁLISE POR ESPECTROGRAFIA DE EMISSÃO ÓPTICA

Na análise por espectrografia de emissão óptica não foram detectados elementos, no sal de CsI utilizado, em concentrações tais que poderiam constituir fontes de contaminação ou serem responsáveis por alterações no crescimento.

A Tabela 2 apresenta a concentração de traços de impurezas encontradas no sal de CsI determinadas por espectrografia de emissão óptica.

Tabela 2 - Teor de impurezas encontradas no sal de CsI, determinadas por espectrografia de emissão óptica.

Elemento	Teor(%)
B	< 0,0030
P	< 0,1500
Fe	< 0,0075
Cr	< 0,0045
Ni	< 0,0045
Zn	< 0,1500
Si	0,0070
Al	< 0,0060
Mn	< 0,0015
Mg	< 0,0045
Pb	< 0,0045
Sn	< 0,0030
Bi	< 0,0015
V	< 0,0030
Cu	< 0,0045
Ba	< 0,0150
Co	< 0,0045
Ca	< 0,0075
Sb	< 0,0045

3.3 ANÁLISE POR FLUORESCÊNCIA DE RAIOS-X

A Tabela 3 mostra a concentração de elementos traços encontrados no cristal de CsI(Tl) determinados por fluorescência de raios-X. Os elementos Fe, Cu e Zn, embora detectados pelo método, encontram-se em concentrações que estão no limite ou abaixo da sensibilidade do método.

Tabela 3 - Concentração de elementos traços encontrados em uma região intermediária do cristal de CsI(Tl) determinados por fluorescência de raios-X.

Elemento	Concentração no CsI(Tl) (fração molar)
Fe	$< 0,2 \times 10^{-3}$
Cu	$< 0,2 \times 10^{-3}$
Zn	$< 0,2 \times 10^{-3}$
Tl	$0,4 \times 10^{-3}$

3.4 DISTRIBUIÇÃO DO DOPANTE TÁLIO NO VOLUME CRISTALINO DE CsI(Tl)

Os resultados da concentração de tálio em nove regiões do bloco cristalino de CsI(Tl) após o tratamento térmico estão apresentados na Tabela 4 e representados na Figura 22.

Tabela 4 - Determinações da concentração de tálio em fatias de 10mm de espessura do cristal de CsI(Tl), efetuadas por absorção atômica de chama.

Fatia do cristal de CsI(Tl)	Concentração de tálio (fração molar)
1	$3,57 \times 10^{-3}$
2	$3,47 \times 10^{-3}$
3	$1,04 \times 10^{-3}$
4	$0,50 \times 10^{-3}$
5	$0,39 \times 10^{-3}$
6	$0,56 \times 10^{-3}$
7	$0,36 \times 10^{-3}$
8	$0,32 \times 10^{-3}$
9	$0,47 \times 10^{-3}$

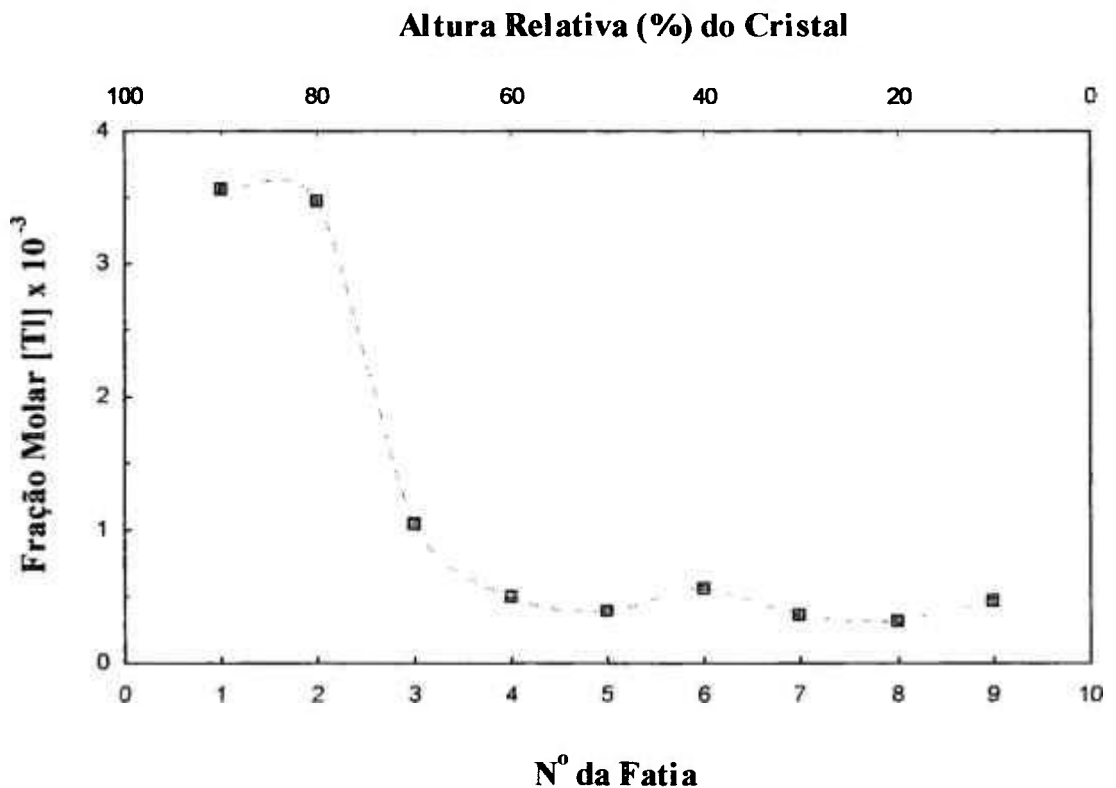


Figura 22: Concentração do tálio em função da altura do cristal de CsI(Tl).

3.5 ANÁLISE POR DIFRAÇÃO DE RAIOS-X

O resultado da análise de difração por raios-X, é compatível com os padrões de uma estrutura cristalina cúbica de face centrada (cfc), conforme microficha 6-311 (IPEN/CNEN-SP), a qual corresponde a estrutura do CsI . A identificação das fases presentes foi feita por meio de comparação com tabelas do JCPDS (US JOINT COMMITTEE ON POWDER DIFFRACTION STANDARDS). O difratograma completo está apresentado na Figura 23.

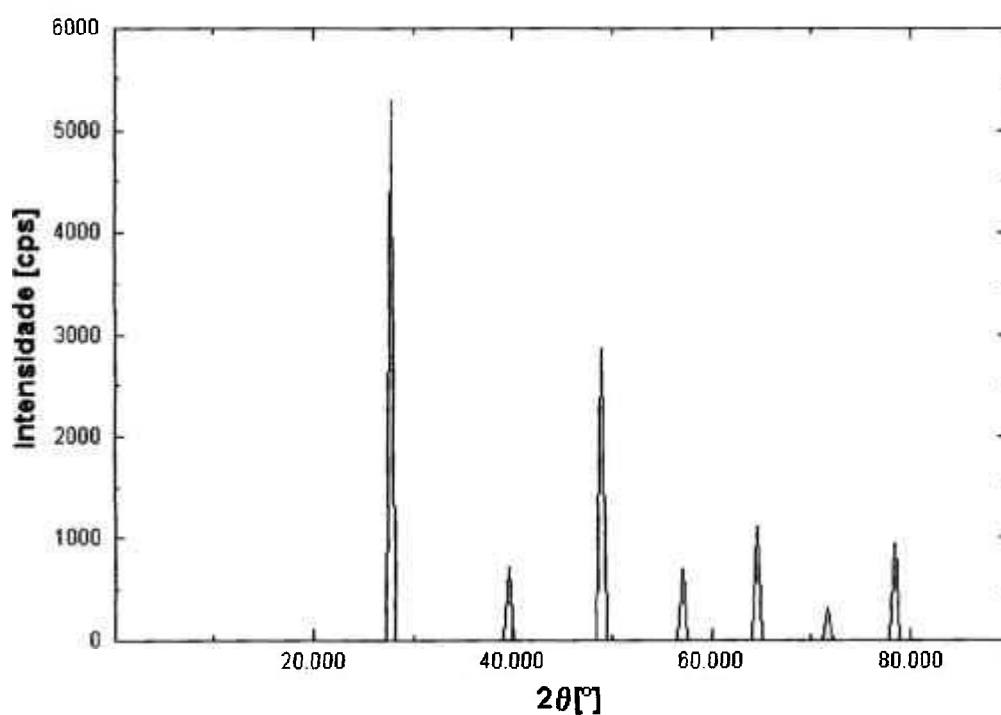


Figura 23: Difratograma completo de raios-X do cristal de CsI(Tl).

3.6 TRANSMITÂNCIA E EMISSÃO DE LUMINESCÊNCIA DO CRISTAL DE CsI(Tl) DESENVOLVIDO PELA TÉCNICA DE BRIDGMAN

Utilizando os procedimentos descritos em Materiais e Métodos, itens 2.8 e 2.9, foram determinados os espectros de transmitância e emissão de luminescência do cristal de CsI(Tl), conforme o gráfico da Figura 24.

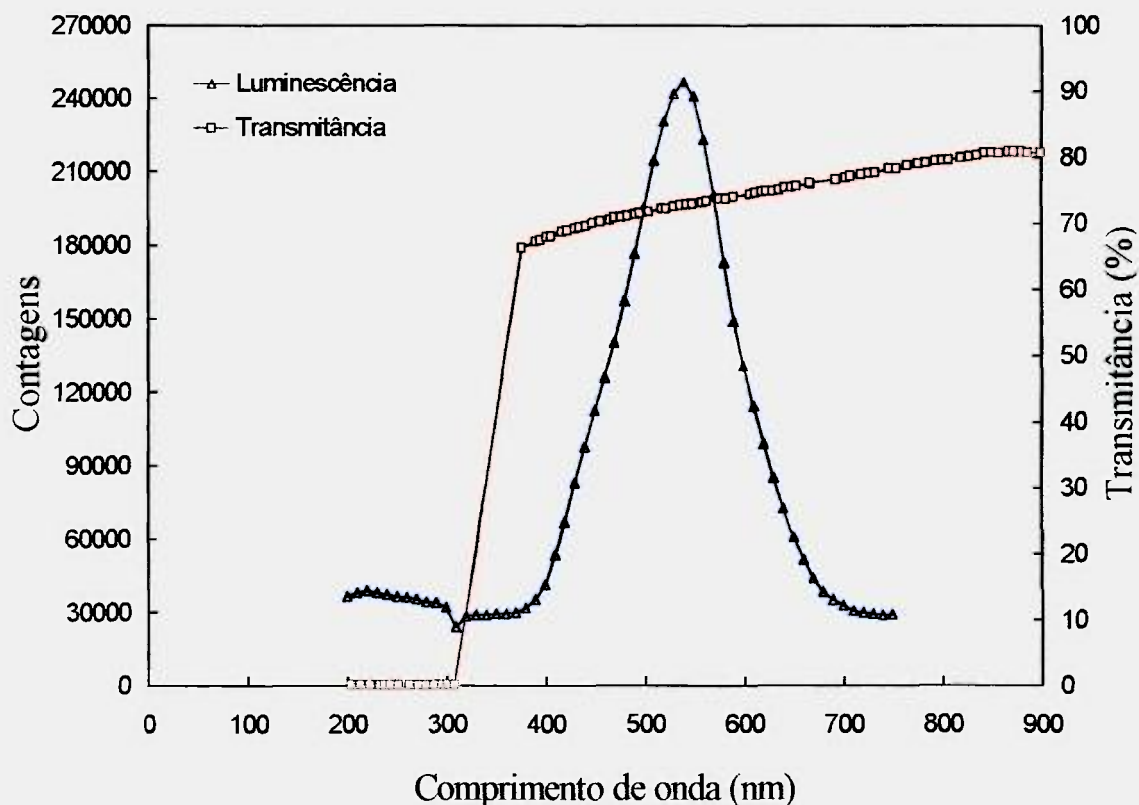


Figura 24: Espectros de luminescência e transmitância em função do comprimento de onda para o cristal de CsI(Tl).

3.7 DETERMINAÇÃO DO TEMPO DE DECAIMENTO DE LUMINESCÊNCIA

Utilizando o método descrito em Materiais e Métodos, item 2.10, foi determinada a constante de decaimento de luminescência para o cristal cintilador. O valor do tempo de decaimento de luminescência determinado experimentalmente foi de $1,06\mu\text{s}$. A Figura 25 mostra o registro obtido.

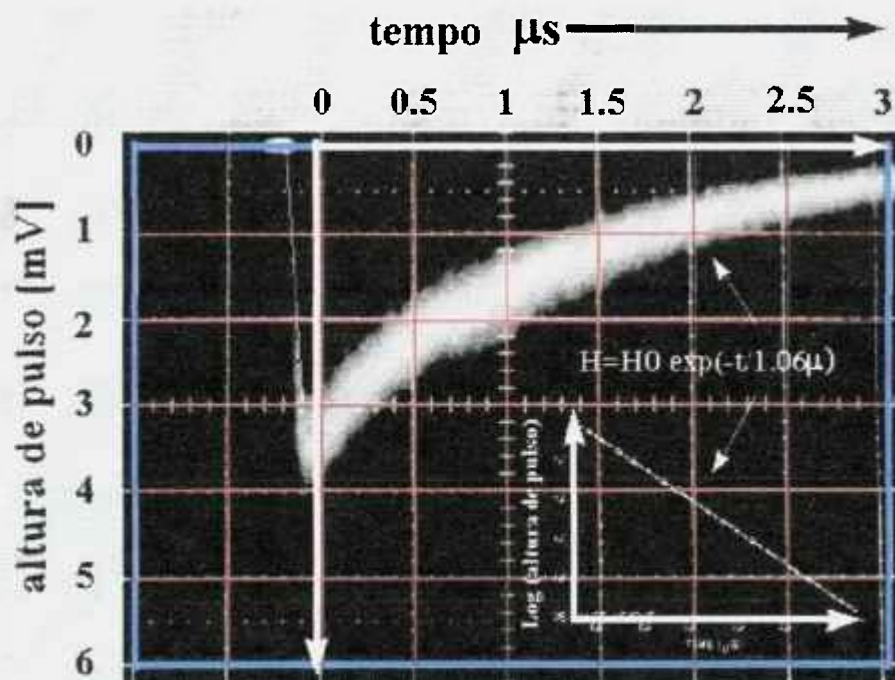


Figura 25: Sinal do anodo da fotomultiplicadora no cristal cintilador CsI(Tl). O sinal do anodo traçado em escala semi-logarítmica mostra um coeficiente de decaimento de $0,94\mu\text{s}^{-1}$ equivalente ao tempo de decaimento de $1,06\mu\text{s}$.

3.8 MEDIÇÃO DA RESOLUÇÃO ENERGÉTICA DO DETECTOR CsI(Tl) ACOPLADO À FOTOMULTIPLICADORA

Os espectros de energia apresentados nas Figuras 26 a 31 ilustram os resultados da espectrometria gama para as radiações do ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{22}Na , ^{54}Mn , ^{131}I e $^{99\text{m}}\text{Tc}$, obtidos com o sistema cristal de CsI(Tl)-fotomultiplicadora. Os valores percentuais acima do fotopico representam a resolução energética.

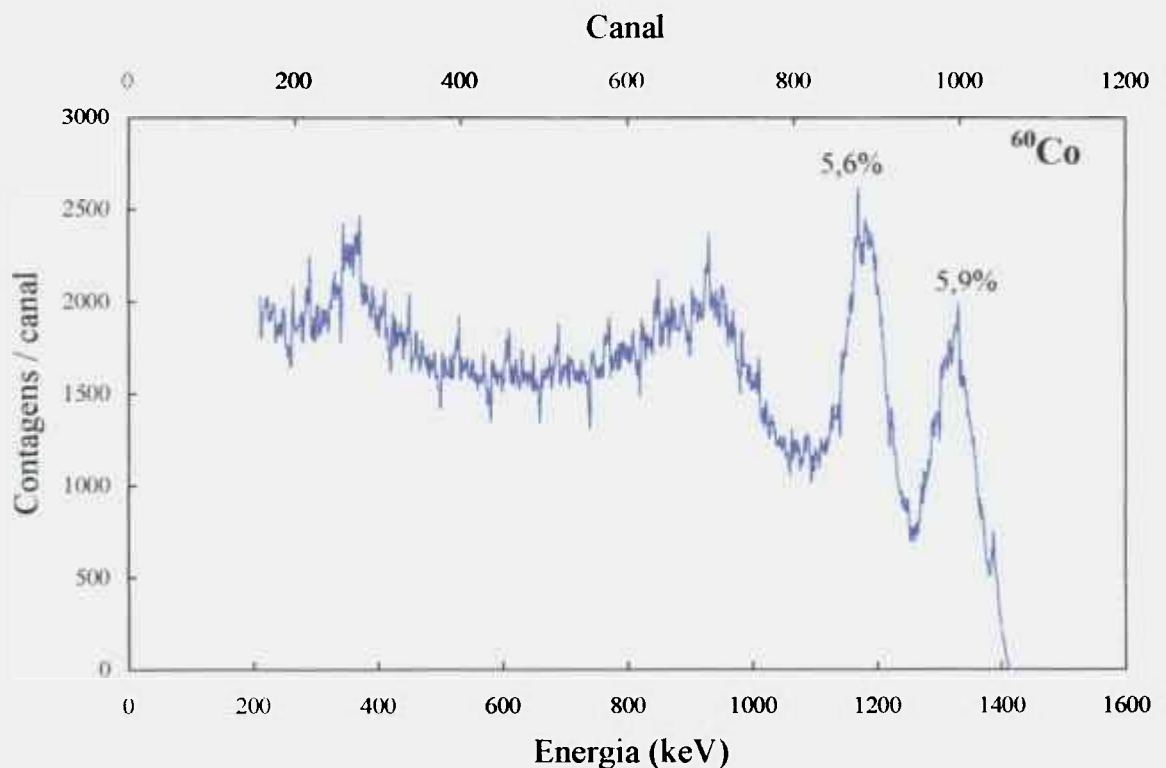


Figura 26 : Espectro de energia obtido para a radiação do ^{60}Co com o cristal de CsI(Tl) acoplado à fotomultiplicadora.

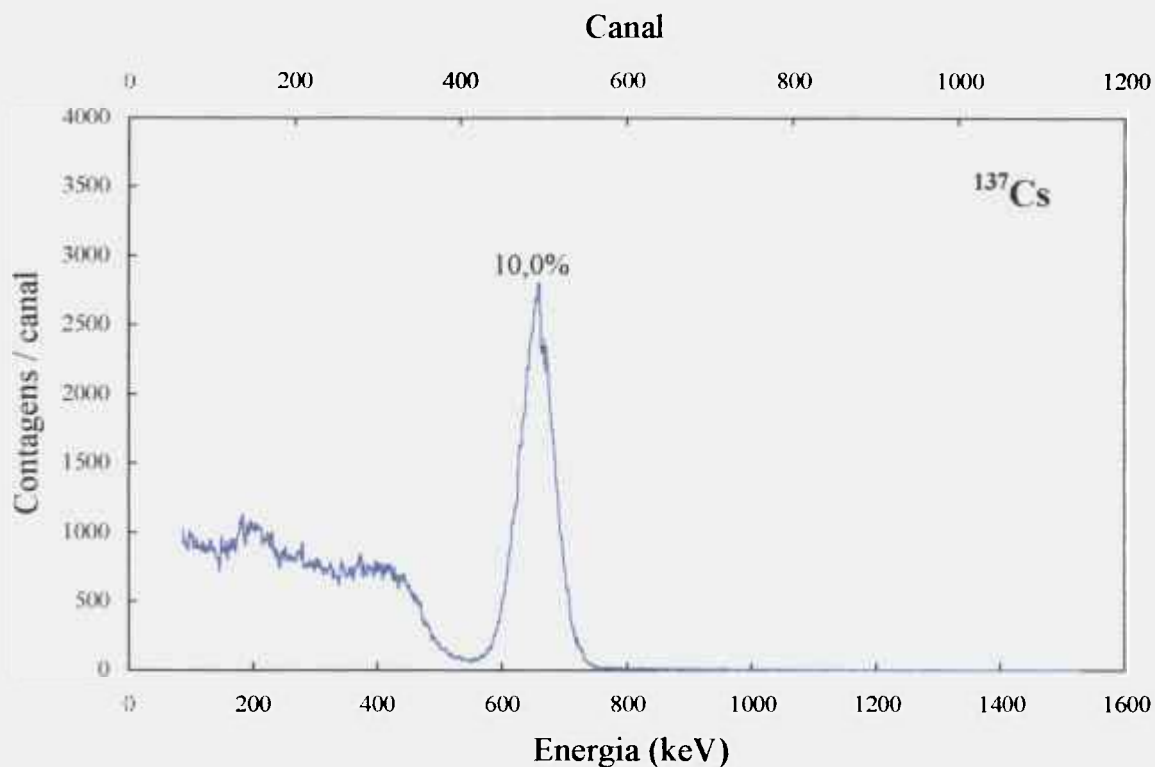


Figura 27: Espectro de energia obtido para a radiação do ^{137}Cs com o cristal de CsI(Tl) acoplado à fotomultiplicadora.

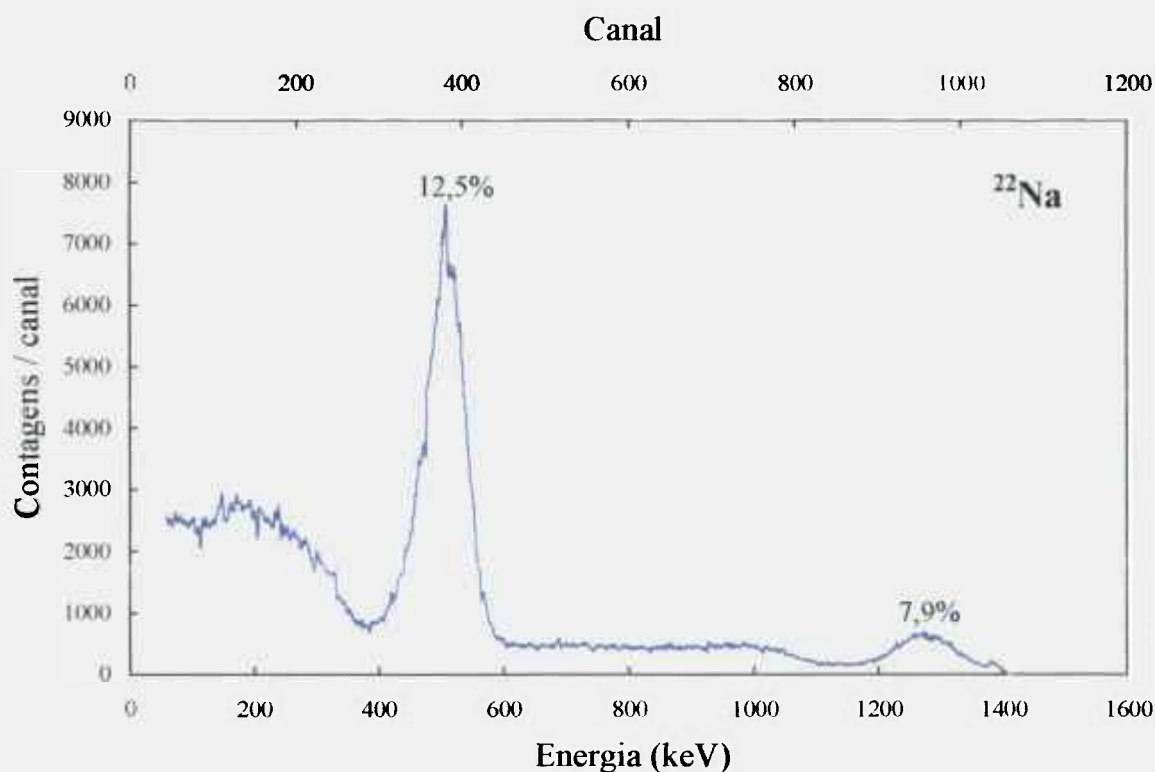


Figura 28: Espectro de energia obtido para a radiação do ^{22}Na com o cristal de CsI(Tl) acoplado à fotomultiplicadora.

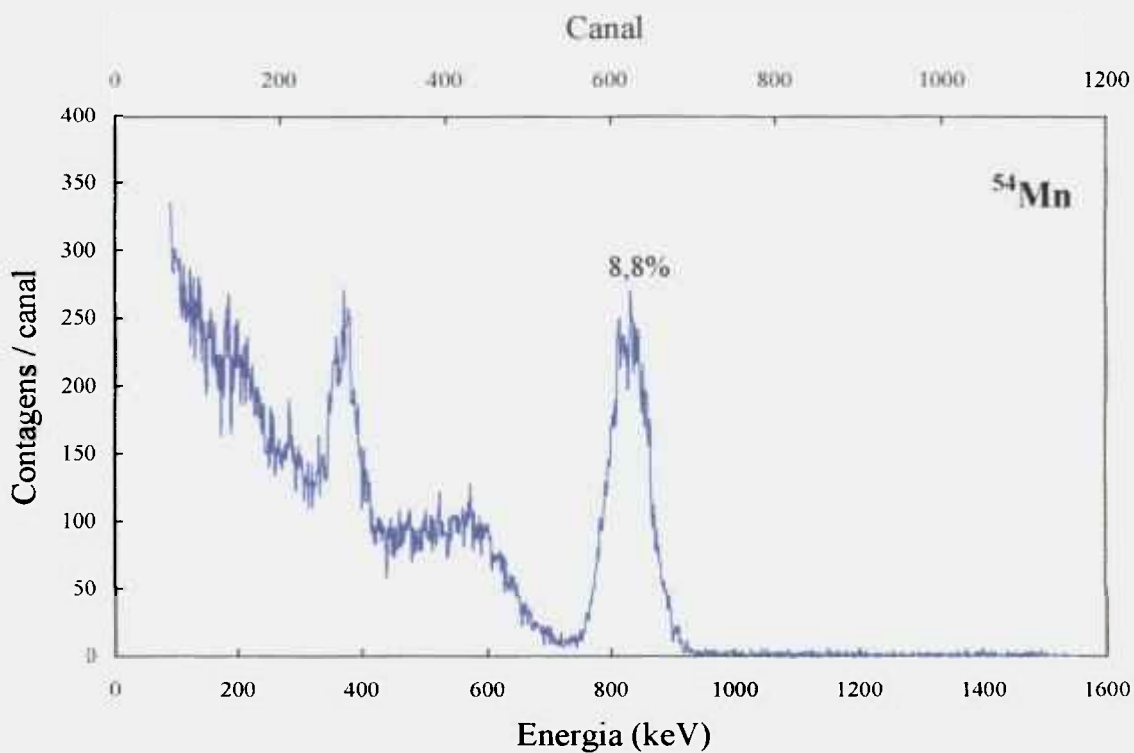


Figura 29: Espectro de energia obtido para a radiação do ^{54}Mn com o cristal de CsI(Tl) acoplado à fotomultiplicadora.

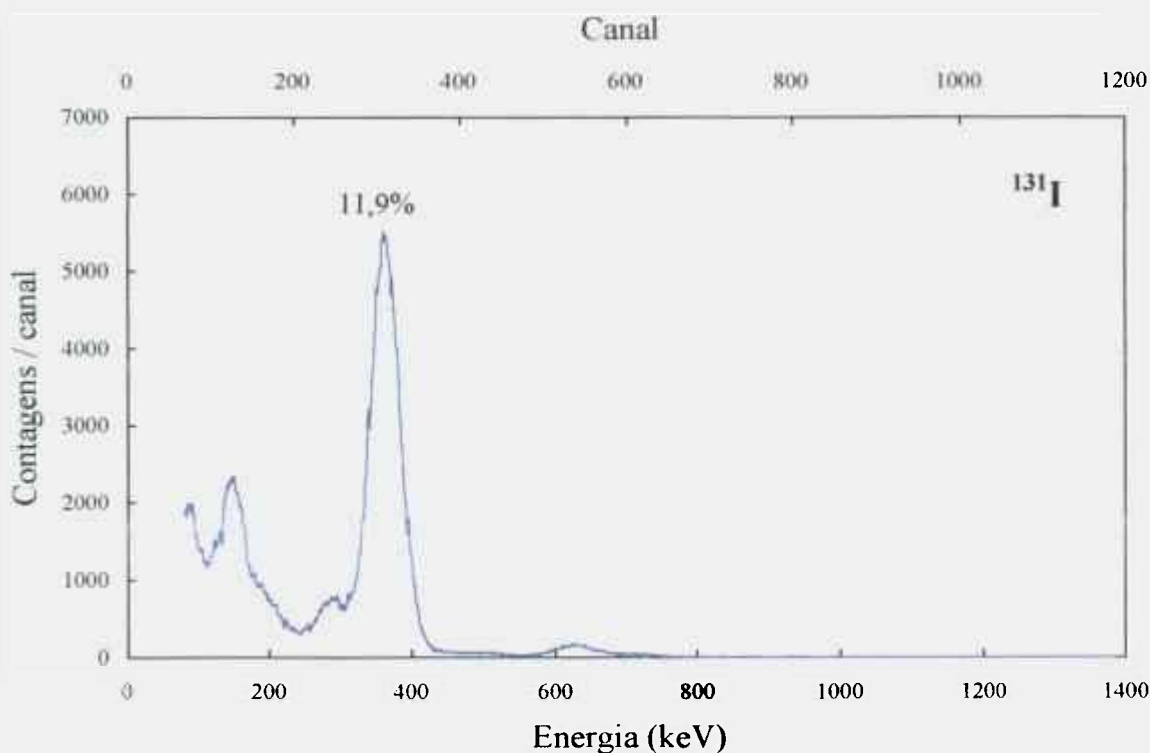


Figura 30: Espectro de energia obtido para a radiação do ^{131}I com o cristal de CsI(Tl) acoplado à fotomultiplicadora.

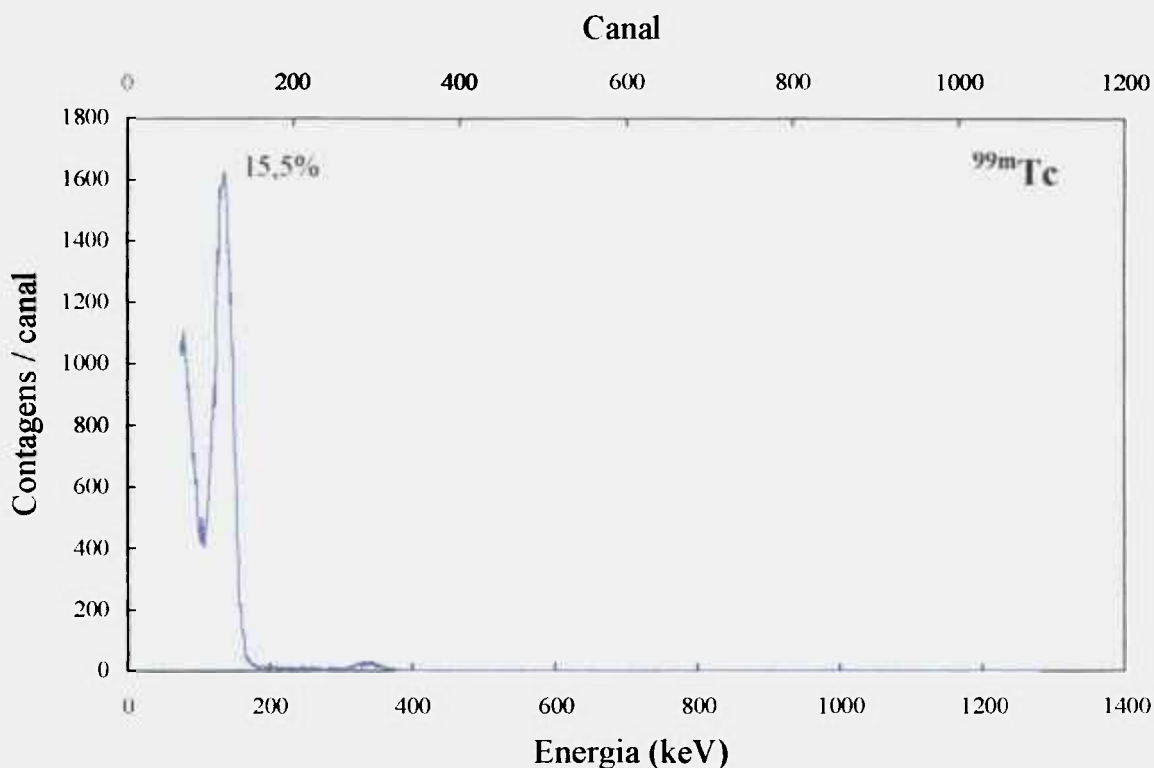


Figura 31: Espectro de energia obtido para a radiação do ^{99m}Tc com o cristal de CsI(Tl) acoplado à fotomultiplicadora.

A resolução energética percentual do detector CsI(Tl) acoplado à fotomultiplicadora em função da energia da radiação gama, para as seis fontes radioativas utilizadas, está apresentada na Tabela 5 e representada na Figura 32.

Tabela 5 - Resolução energética percentual em função da energia da radiação gama para o cristal de CsI(Tl) com dimensões de 20mm de altura e 20mm de diâmetro.

FONTE	NÍVEL DE ENERGIA(keV)	RESOLUÇÃO (%)
^{99m}Tc	140	15,5
^{131}I	364	11,9
^{22}Na	511	12,5
^{137}Cs	662	10,0
^{54}Mn	835	8,8
^{60}Co	1173	5,6
^{22}Na	1275	7,9
^{60}Co	1333	5,9

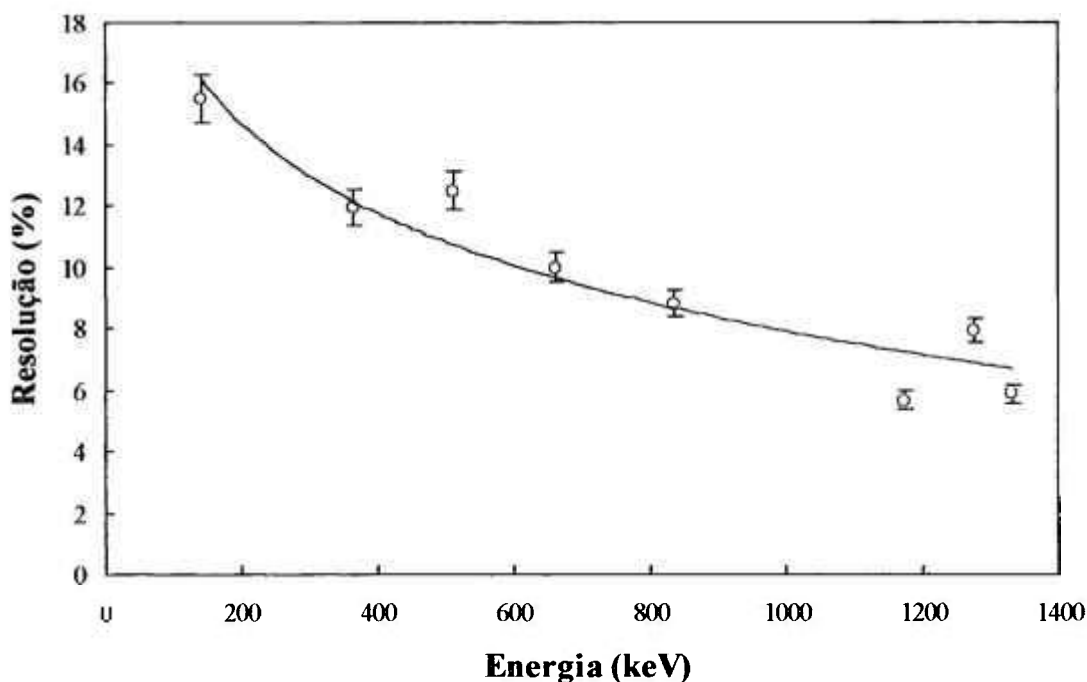


Figura 32: Resolução energética percentual com o cristal de CsI(Tl) acoplado à fotomultiplicadora em função da energia da radiação gama.

3.9 MEDIÇÃO DA EFICIÊNCIA GLOBAL DE DETECÇÃO

A eficiência global do detector de CsI(Tl) acoplado à fotomultiplicadora foi determinada para fótons de diferentes energias, utilizando-se as fontes de ^{22}Na , ^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{60}Co , ^{131}I e $^{99\text{m}}\text{Tc}$. A eficiência global do sistema de detecção está apresentada na Tabela 6 e representada na Figura 33.

Tabela 6 - Eficiência global de detecção em função da energia da radiação gama para o cristal de CsI(Tl) com dimensões de 20mm de altura e 20mm de diâmetro.

FONTE	NÍVEL DE ENERGIA (keV)	EFICIÊNCIA (%)
^{99m}Tc	140	34,1
^{131}I	364	13,1
^{22}Na	511	7,4
^{137}Cs	662	7,8
^{54}Mn	835	3,9
^{60}Co	1173	0,9
^{22}Na	1275	1,4
^{60}Co	1333	1,0

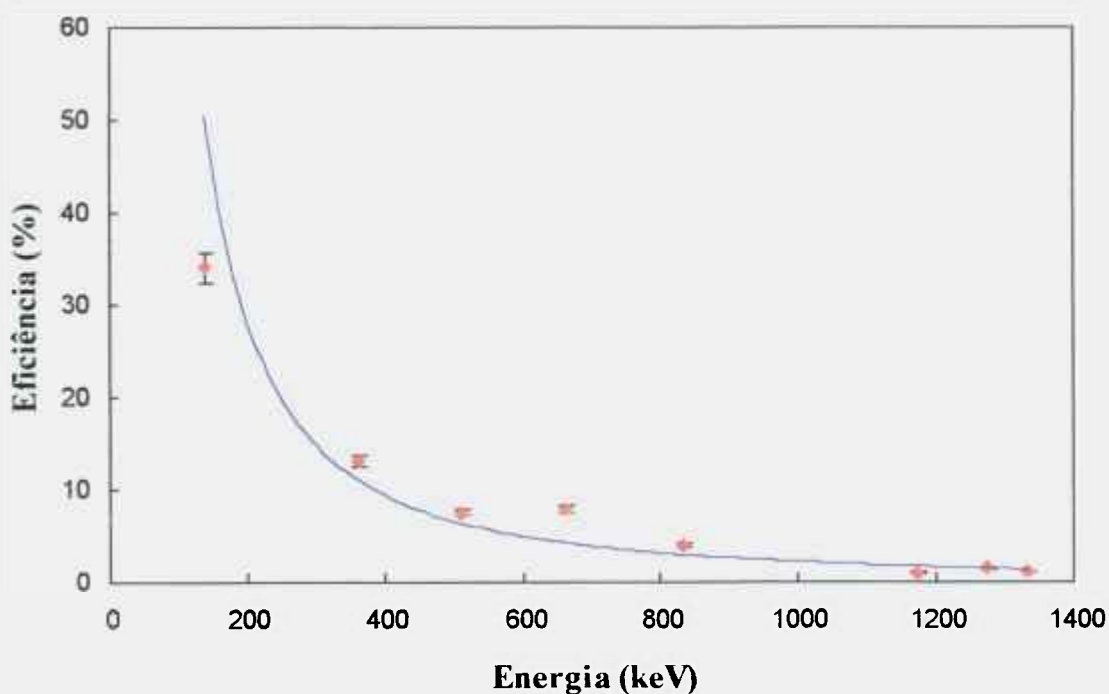


Figura 33: Eficiência global do detector CsI(Tl) acoplado à fotomultiplicadora em função da energia da radiação gama.

3.10 MEDIÇÃO DA RESOLUÇÃO ENERGÉTICA DO SISTEMA DETECTOR CsI(Tl) ACOPLADO AO FOTODIODO PIN

Os espectros de energia apresentados nas Figuras 34 a 38 ilustram os resultados da espectrometria gama para as radiações do ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{22}Na , ^{54}Mn e ^{131}I obtidos com o cristal de CsI(Tl) acoplado opticamente ao fotodiodo PIN. Os valores percentuais acima do fotopico representam a resolução energética bruta, os valores entre parênteses representam a resolução intrínseca.

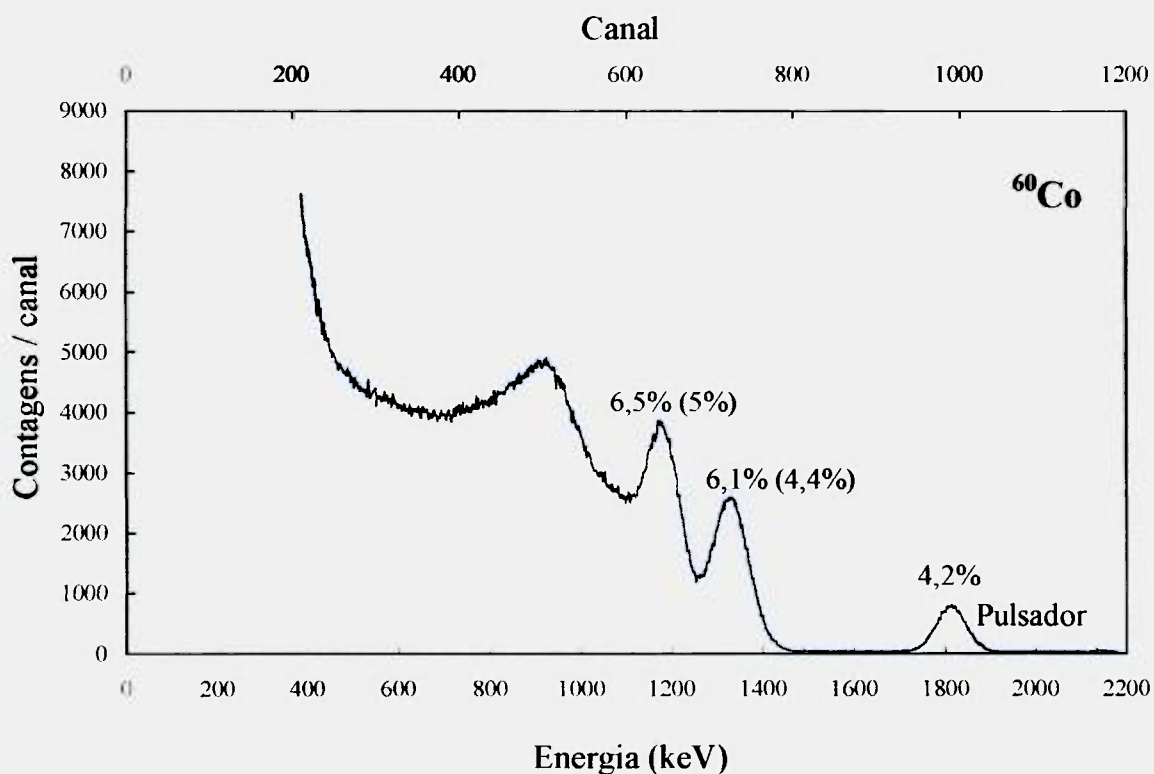


Figura 34: Espectro de energia obtido para a radiação do ^{60}Co com o cristal de CsI(Tl) acoplado ao fotodiodo.

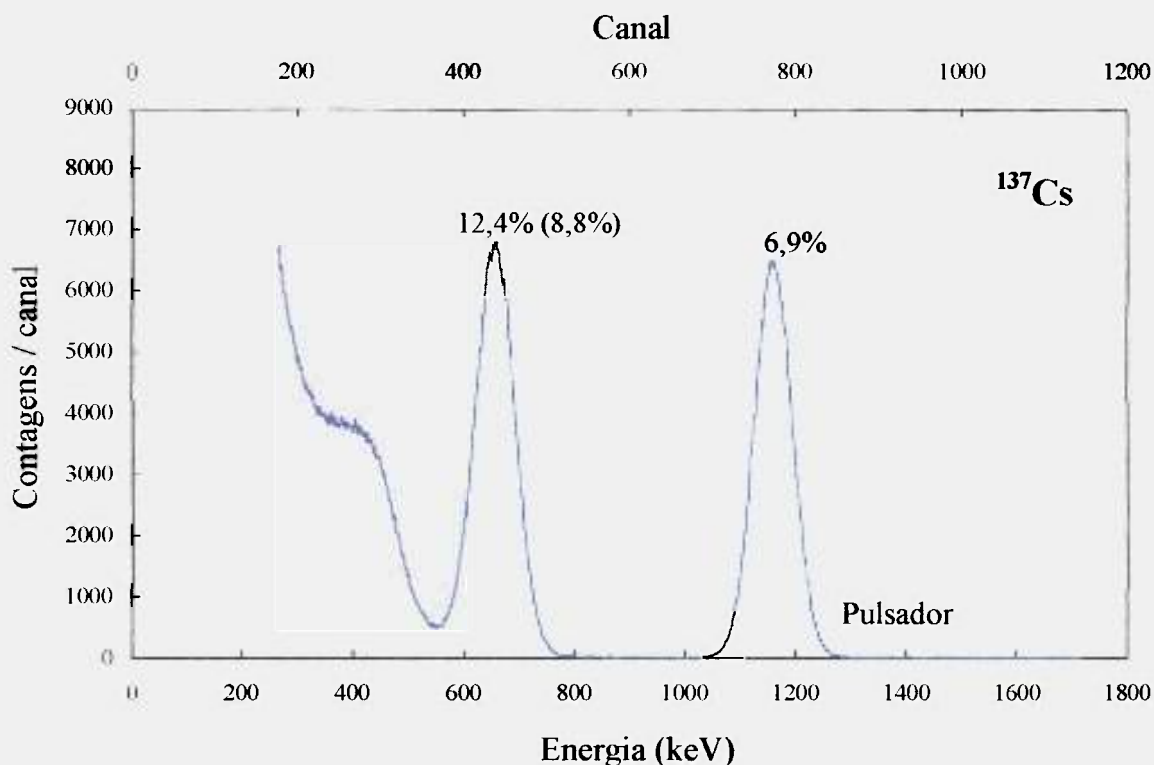


Figura 35: Espectro de energia obtido para a radiação do ^{137}Cs com o cristal de CsI(Tl) acoplado ao fotodiodo.

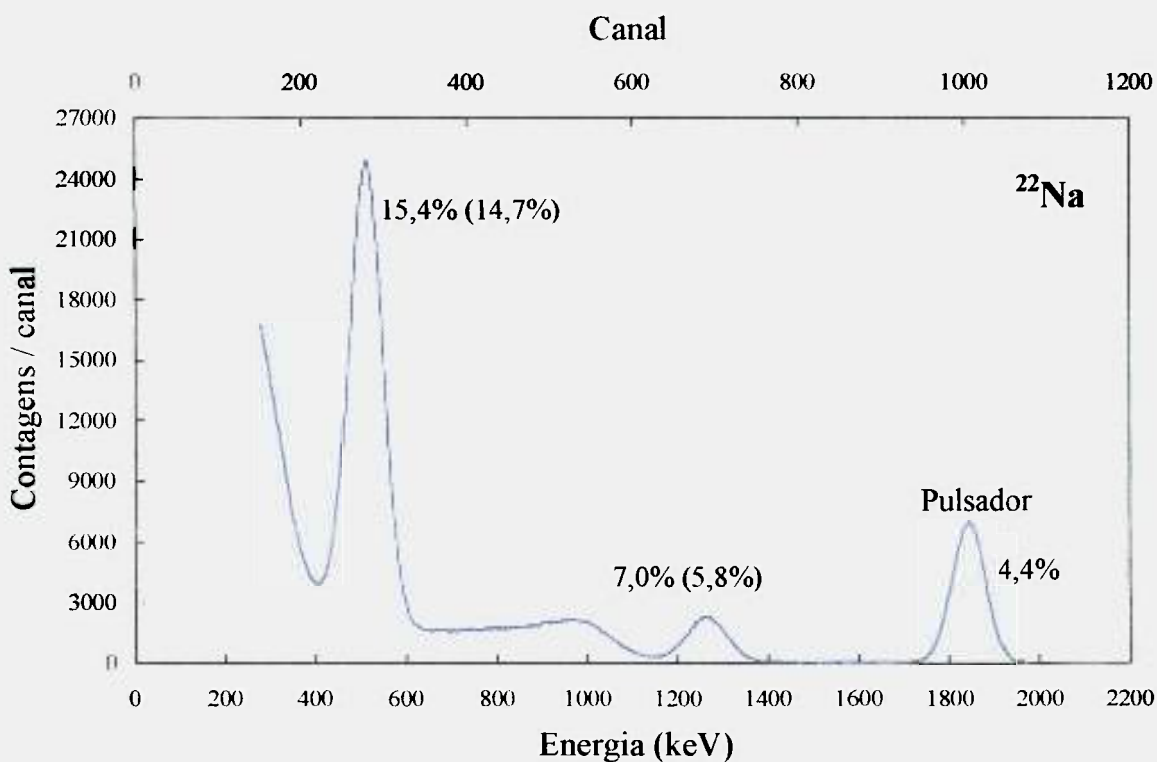


Figura 36: Espectro de energia obtido para a radiação do ^{22}Na com o cristal de CsI(Tl) acoplado ao fotodiodo.

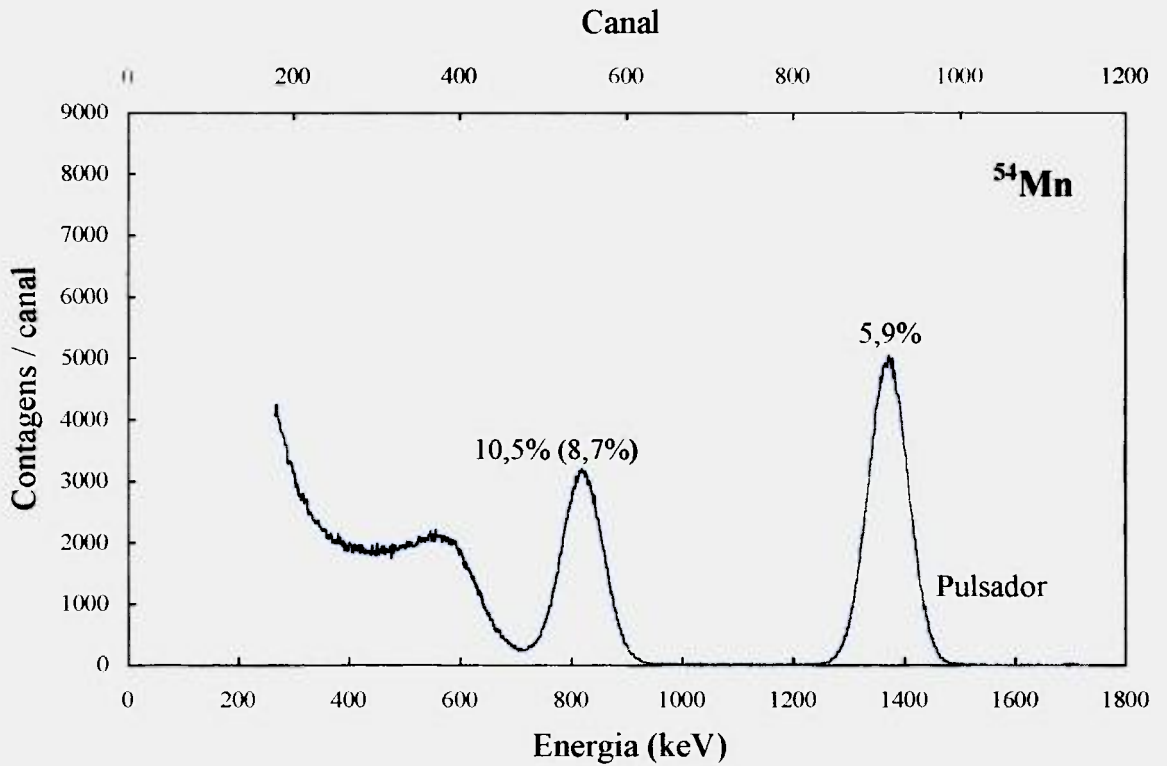


Figura 37: Espectro de energia obtido para a radiação do ^{54}Mn com o cristal de CsI(Tl) acoplado ao fotodiodo.

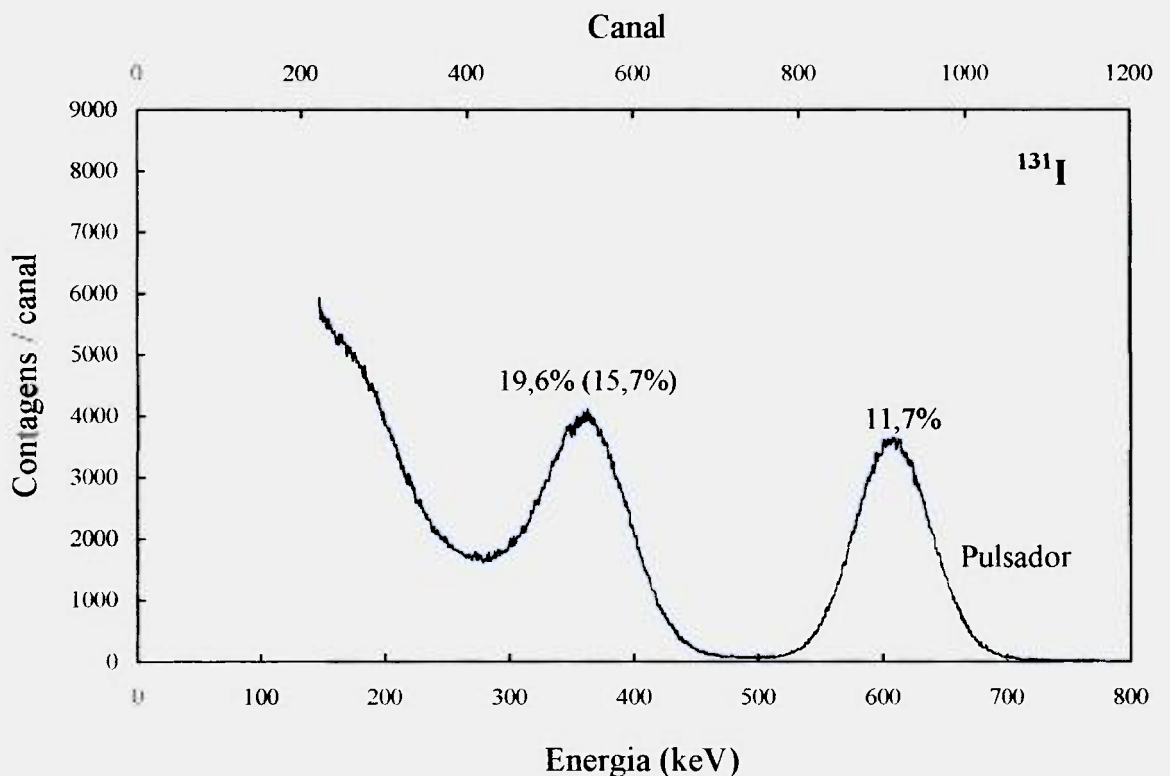


Figura 38: Espectro de energia obtido para a radiação do ^{131}I com o cristal de CsI(Tl) acoplado ao fotodiodo.

A resolução energética percentual bruta e intrínseca do sistema detector CsI(Tl) acoplado ao fotodiodo PIN, em função da energia da radiação gama, para as cinco fontes radioativas estudadas está apresentada na Tabela 7 e representada na Figura 39.

Tabela 7 - Resolução energética percentual em função da energia da radiação gama, para o cristal de CsI(Tl) com dimensões de 20mm de altura por 20mm de diâmetro.

FONTE	NÍVEL DE ENERGIA (keV)	RESOLUÇÃO BRUTA (%)	RESOLUÇÃO INTRÍNSECA (%)
^{131}I	364	19,6	15,7
^{22}Na	511	15,4	14,7
^{137}Cs	662	12,4	8,8
^{54}Mn	835	10,5	8,7
^{60}Co	1173	6,5	5,0
^{22}Na	1275	7,0	5,8
^{60}Co	1333	6,1	4,4

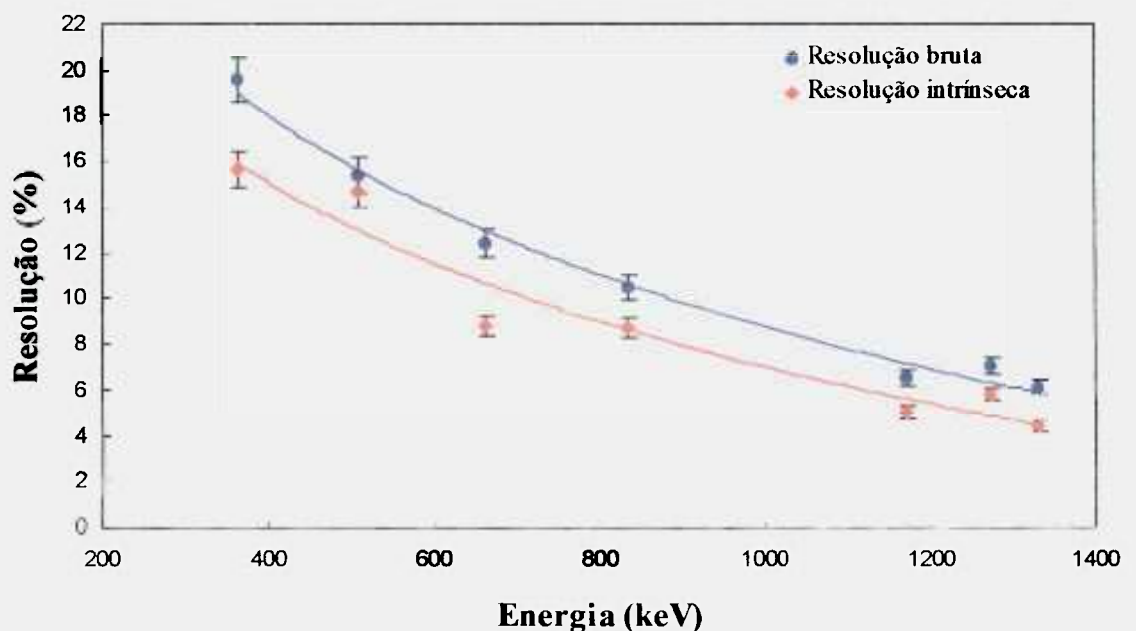


Figura 39: Resolução energética bruta e intrínseca para o detector de CsI(Tl) acoplado ao fotodiodo em função da energia da radiação gama.

4. DISCUSSÃO

É reconhecido que a tecnologia nuclear teve uma contribuição marcante no aprimoramento de muitos instrumentos de uso científico e das telecomunicações. Devido aos riscos inerentes ao uso da energia nuclear os projetos nessa área sempre foram alvos de um severo critério de controle de qualidade os quais foram sendo incorporados aos processos de produção de outras áreas. Paradoxalmente, uma das áreas mais importantes da tecnologia nuclear, como a de sensores de radiação, praticamente continuou a usar os detectores gasosos e as válvulas fotomultiplicadoras acopladas com cintiladores. Só recentemente, surgiu uma alternativa para substituir a válvula fotomultiplicadora por um componente semiconductor. Os fotodiodos tipo PIN são capazes de gerar uma corrente mensurável quando sensibilizados por fótons de luz. Dentre suas qualidades, possui um rendimento quântico próximo de 70% para fótons de luz provenientes dos principais cintiladores até agora utilizados.^[10] É extremamente imune aos ruídos termoiônicos sendo portanto factível de ser utilizado como o fotosensor dos sistemas cintiladores. No presente trabalho avaliou-se as vantagens, desvantagens e limitações do uso dos fotodiodos em substituição às fotomultiplicadoras.

Cada material cintilador possui características próprias quanto aos fótons de luz emitidos e, por outro lado, todo fotosensor é mais eficiente para determinado intervalo de comprimento de onda do fóton incidente. Sendo assim, é conveniente utilizar uma combinação adequada entre as características do material cintilador e a respectiva eficiência quântica do fotosensor. Na atualidade, o fotodiodo mais adequado para o uso da detecção das radiações é o fotodiodo tipo PIN.^[10,19] Este apresenta pico de eficiência quântica (~90%) quando sensibilizado por fótons de comprimento de onda próximo de 900 nm e (~65%) para fótons de cintilação do CsI(Tl) (Figura 12).

Dentre os conversores da radiação X e gama em fótons de luz, conhecidos como cintiladores, os mais eficientes emitem fótons com comprimento de onda próximo de 400 nm. Particularmente dentre eles, o cristal de CsI(Tl) é o que apresenta melhor ajuste entre o espectro de emissão luminosa (pico em 540 nm) e a curva de sensibilidade quântica do fotodiodo tipo PIN (Figura 12). Isto explica o interesse renovado em utilizar esse cristal como cintilador.^[10,11]

Os fotodiodos tipo PIN com área sensível larga e com capacitância baixa já são encontrados no mercado em diversas configurações de superfície.^[19] Embora o cristal de CsI(Tl) seja também comercialmente disponível, o seu desenvolvimento local é conveniente tendo em vista a possibilidade de obtê-lo em diferentes configurações geométricas e de acoplamento. Além do mais, há um especial interesse em estudar novas condições que venham alterar as propriedades desse cristal de modo a alcançar um nível mais otimizado de suas características funcionais. Nesse sentido, estudos têm sido realizados incorporando novos dopantes, na expectativa de elevar o seu comprimento de onda a nível mais próximo do pico de resposta do fotodiodo em ~900nm. Um outro esforço é o estudo de condições que tornem mais rápida a resposta luminosa desse cristal e assim reduzir o tempo de decaimento da sua luminescência^[18] e viabilizar a medida de fontes radioativas mais intensas sem o inconveniente do efeito de sobreposição de sinais (empilhamento de pulsos) tornando-o útil em estudos de fenômenos rápidos de reações nucleares. Esses estudos poderão constituir tema de próximos trabalhos.

Nesse sentido foram realizadas várias experiências de crescimento de CsI(Tl) utilizando o sistema de Bridgman projetado e construído durante este trabalho. Vários são os parâmetros envolvidos no crescimento de cristais pela técnica de Bridgman. Entre eles, a velocidade de crescimento, a limpeza dos materiais, a configuração geométrica e o material de que é feito o cadinho e o perfil de temperatura do forno são os mais importantes.

O tratamento químico rigoroso e um pré-tratamento a vácuo do tubo de quartzo e a purificação do sal de iodeto de cézio (materiais e métodos) mostrou-se muito importante para evitar o problema da aderência do cristal ao cadinho. Foi constatado em algumas experiências a aderência do cristal às paredes do cadinho (tubo de quartzo), resultando na geração de trincas no tubo durante o processo de crescimento e conseqüentemente na perda da amostra. O problema da quebra do cadinho está associado a fatores como a recristalização do quartzo e a presença de umidade. Quando o quartzo é aquecido por um período longo acima de 1000°C ocorre a devitrificação podendo ocasionar a quebra do mesmo, devendo-se portanto trabalhar sempre com temperaturas abaixo daquele valor.^[26] Por outro lado, a causa de tal aderência é a presença de íons OH^- e O_2^- no material de partida ou nas paredes do cadinho na forma de umidade. Uma concentração abaixo de 1ppm destes íons nos haletos alcalinos é suficiente para reduzir a tensão superficial entre o composto e a parede do cadinho, provocando a diminuição do ângulo de contato e como conseqüência o umedecimento das paredes do cadinho^[34].

A velocidade de crescimento foi um dos fatores de muita importância na obtenção do monocristal. A baixa velocidade de crescimento (1mm h^{-1}) contribui para a homogeneização cristalina da interface sólido-líquido.

A manipulação adequada de alguns parâmetros de crescimento, como a velocidade de crescimento e o gradiente de temperatura, permite obter cristais dopados com uma distribuição mais uniforme do dopante em relação a outras técnicas.^[30]

A concentração do dopante no cristal é um parâmetro de controle de qualidade importante na produção dos cristais cintiladores pois as propriedades da luminescência são afetadas pela concentração do dopante.^[32,36] No presente estudo o tálio foi adicionado ao material de partida (sal de CsI) com uma fração molar de 10^{-3} . No decorrer do processo de cristalização essa concentração é alterada

originando um gradiente de concentração (Figura 22 e Tabela 4). Os resultados aqui obtidos acusam uma concentração mais elevada no topo do cristal nos primeiros 10mm de espessura com subsequente diminuição na fase inicial de crescimento. A concentração do dopante permanece praticamente constante a partir da quarta fatia ou ao nível de 60% do cristal referente ao início de crescimento do mesmo (Figura 22). Esses dados mostram que perde-se 40% do cristal. A partir de 60% de sua altura a concentração de tálio cresce abruptamente e conseqüentemente cristais cortados nessa região não apresentam homogeneidade do dopante. A alta concentração de tálio no topo do cristal é esperado tendo-se em conta ao fato do cristal crescer de baixo para cima e das impurezas tenderem a depositar-se no final do processo de crescimento. Em cristais dopados crescidos pela técnica de Bridgman, cujo dopante tenha tendência de ser segregado para a fase líquida, as últimas partes a serem cristalizadas são mais concentradas que as partes iniciais.^[22,38]

Tendo em vista que as impurezas na rede cristalina podem interferir na qualidade e nas características fotofísicas do cintilador é necessário que a qualidade do material de partida seja previamente avaliada. Os resultados experimentais determinados por espectrografia de emissão óptica (Tabela 2) mostram que todos os contaminantes analisados estão abaixo do limite de detecção do método, confirmando a qualidade do sal de CsI, adquirido comercialmente. Análise semelhante realizada por fluorescência de raios-X no cristal crescido pela técnica de Bridgman mostrou que a concentração de ferro, cobre e zinco encontra-se abaixo do limite mínimo detectável confirmando a análise anterior realizada por espectrografia de emissão óptica. Nessa análise o teor de Tl está de acordo com a análise por absorção atômica de chama (Tabela 4).

A análise de difração por raios-X (Figura 23) demonstrou que a rede cristalina do cristal crescido pela técnica de Bridgman e utilizando os recursos disponíveis neste trabalho resultou em estrutura cúbica de face centrada (cfc). Esta evidência pôde ser estabelecida pela comparação experimental do difratograma de

raios-X com o descrito pelo US JOINT COMMITTEE ON POWDER DIFFRACTION STANDARDS. Os aspectos cristalográficos estão intimamente correlacionados com a qualidade de transparência do cristal. O comprimento de onda de máxima luminescência foi de 540nm (Figura 24) cujo valor está de acordo com os apresentados na literatura^[23,36]. O pico de luminescência em 540nm é atribuído à luminescência dos íons tálio no cristal.^[12,36] A transmissão óptica no intervalo de luminescência foi aproximadamente 75% caindo praticamente ao nível de zero para comprimentos de onda abaixo de 320nm. Estes resultados evidenciam a existência de uma adequada sobreposição entre a capacidade de transmitância do cristal e a sua região de luminescência. Em geral, para caminhos ópticos da ordem de alguns centímetros, a atenuação é completamente dominada pela reflexão e pelas perdas por espalhamento nas superfícies. Nessas condições a transmissão não está propriamente correlacionada com a espessura do cristal sendo provavelmente mais fortemente dependente da qualidade do polimento da superfície^[42] e seu acoplamento com o fotosensor. Em razão desse aspecto, o acoplamento entre o cristal e o fotosensor foi efetuado com graxa de silicone 0,5McStockes a qual combina adequadamente com os índices de refração do cristal utilizado e da superfície da janela do fotosensor.

O valor experimental da constante de decaimento da luminescência do cristal de CsI(Tl) foi de 1,06 μ s, sendo praticamente compatível com os encontrados na literatura^[2,12,36]. Esse parâmetro contribui com outro aspecto da qualidade do cristal desenvolvido neste trabalho. O tempo de decaimento da luminescência do cristal de CsI(Tl) de acordo com a literatura está associado com o dopante tálio.^[16,21] O longo tempo de decaimento do cristal de CsI(Tl) constitui uma de suas desvantagens tendo em vista o aumento da probabilidade da ocorrência de sobreposição de sinais quando fontes radioativas mais intensas são utilizadas. O tempo de decaimento da ordem de 1 μ s praticamente inviabiliza estudos temporais rápidos como aqueles da estrutura de decaimento realizados na física nuclear. Hamada, Kubota e Sakuragi^[18] estudaram o tempo de decaimento da luminescência

em cristal de CsI puro mostrando que o tempo de luminescência se reduz à ordem de alguns nanosegundos com a contrapartida da diminuição do rendimento de produção luminosa. Portanto, a adição do tálio aumenta sensivelmente a produção de luz mas lamentavelmente aumenta também o tempo de decaimento da luminescência. Estudos dessa natureza devem ser incentivados até que se encontre uma combinação que mantenha o cristal com um rendimento de luz competitivo com relação a outros cristais e que diminua o tempo do decaimento da luminescência.

A finalidade principal do cristal de CsI(Tl) é a sua utilização em converter fótons de alta energia, proveniente das radiações gama e raios-X, em fótons de luz capazes de sensibilizar os fotosensores. Para atender esse objetivo o cristal de CsI(Tl) oferece adequadas condições principalmente por ser constituído de elementos químicos de alto número atômico ($Z_{\text{Césio}} = 133$, $Z_{\text{Iodo}} = 127$), portanto favorecendo as interações da radiação gama ou X com as múltiplas camadas eletrônicas (efeito fotoelétrico e Compton) e também possuindo uma estrutura nuclear favorável à interação do tipo formação de pares.

A qualidade de um conversor gama ou X em cintilações pode ser avaliada por dois parâmetros, a saber: i) rendimento no processo da conversão de luz (Tabela 1) e ii) resolução energética. Quanto ao primeiro parâmetro (i) neste trabalho não foi dado maior ênfase por não dispormos dos recursos instrumentais adequados para uma determinação direta da relação fótons de luz/MeV da radiação incidente. Um estudo indireto para se determinar o rendimento de conversão consiste em comparar a altura de pulso de um cristal padronizado como por exemplo o NaI(Tl) com o respectivo sinal do cristal em estudo. Em experimentos prévios verificou-se que a altura de pulsos produzidos por cristais comerciais de NaI(Tl), utilizando fotomultiplicadoras como fotosensor, produziram sinais equivalentes aos cristais desenvolvidos neste trabalho. Quanto a capacidade do sistema detector discriminar energias foram conduzidos experimentos utilizando-se fotomultiplicadora e fotodiodos. Em ambas configurações o parâmetro resolução

avaliado pela razão entre a largura à meia altura^[d] e a respectiva energia do fótico. Os valores encontrados foram semelhantes àqueles já descritos na literatura.^[9,10,16,35]

No atual desenvolvimento da tecnologia o uso dos fotodiodos ainda esbarra em algumas dificuldades principalmente no tocante às radiações de baixas energias. Essa limitação está associada ao fato de que os fotodiodos intrinsecamente não dispõem de amplificadores de corrente como nas fotomultiplicadoras. Portanto, para as baixas energias a corrente é relativamente muito baixa sendo necessária uma instrumentação complementar muito sensível. O pré-amplificador é um dos elementos fundamentais nesse estágio. Neste trabalho foi desenvolvido um pré-amplificador (Figura 21) para o uso com o sistema cristal CsI(Tl) acoplado ao fotodiodo com vista a atender o desenvolvimento de futuros projetos de detectores.

A resolução energética é sensível ao ruído de fundo do sistema detector e tem como componente a corrente no escuro a qual é devida a fenômenos termoiônicos (Figura 12-c). Nesse sentido as modernas fotomultiplicadoras apresentam melhor performance, isto é, a razão sinal ruído é mais favorecida para as fotomultiplicadoras relativamente ao fotodiodo.^[19,20] O ruído termoiônico pode ser reduzido refrigerando-se o ambiente em que se encontra o fotodiodo, pois a corrente no escuro em função da temperatura cresce exponencialmente, portanto é conveniente trabalhar com o sistema detector em ambiente refrigerado principalmente quando se deseja alcançar boa resolução no sistema. Outro componente de ruído tem sua origem na capacitância gerada pela região de depleção do fotodiodo (Figuras 10 e 12-d). Esse componente de ruído pode ser minimizado fazendo-se uso de fotodiodos de pequena área sensível e aumentando-se a tensão inversa de polarização. O uso de fotodiodos pequenos apresenta um sério inconveniente pois são pouco eficientes para detectar a radiação ou os fótons de luz do cintilador. Reduzindo-se o volume do cristal cintilador cria-se um conflito de

^[d] conhecido na língua inglesa como FWHM proveniente da abreviatura de *Full Width at Half Maximum*

aplicação pois na grande maioria dos usos do detector deseja-se alcançar alta eficiência de contagem dos sinais. Até o momento, os fotodiodos com área de $10 \times 10 \text{mm}^2$ são os que oferecem o melhor compromisso entre, eficiência de detecção e capacitância intrínseca.^[10,17] O outro recurso que se dispõe para reduzir a capacitância intrínseca consiste em aumentar a tensão reversa. Na prática a tensão reversa dos fotodiodos comerciais encontra-se no limite de aproximadamente 100V. Experimentalmente tensões reversas a partir de 30V não resultam em melhoria significativa na diminuição do ruído de fundo.

Uma forma de apresentar o parâmetro da resolução de modo a ser mais independente das limitações atuais dos recursos de eletrônica disponíveis é expressar esse parâmetro na forma de resolução intrínseca, ou seja, desconsiderando o efeito estatístico do ruído de fundo. Para isso associa-se ao sinal do pré-amplificador um outro sinal produzido por um gerador de pulsos de precisão. A resolução intrínseca calculada pela expressão (2.1) resulta num valor praticamente independente do ruído e conseqüentemente constitui um parâmetro que independe dos recursos eletrônicos disponíveis e assim caracteriza o cristal em si. Tanto a resolução bruta como a resolução intrínseca diminuem com o aumento da energia da radiação gama (Figuras 32 e 39; Tabelas 5 e 7).

5. CONCLUSÕES

1. O estudo realizado mostrou que os cristais de CsI(Tl) crescidos pela técnica de Bridgman apresentam qualidades adequadas para sua utilização como sensor de radiação.
2. A análise da concentração do dopante tálio em nove fatias do cristal obtido pela técnica de Bridgman mostrou que 60% do cristal apresenta uma região homogênea em concentração de tálio, sendo esta a fração do volume cristalino mais apropriada para o uso como cintilador.
3. O resultado da análise de difração de raios-X mostrou uma estrutura compatível com o padrão cristalino cúbico de face centrada (cfc).
4. A análise dos espectros de luminescência e transmitância em função do comprimento de onda mostrou uma sobreposição adequada entre a curva de luminescência e a transmitância, garantindo deste modo que o cristal é praticamente transparente à sua própria cintilação. O espectro de luminescência do cristal de CsI(Tl) é o que apresenta a melhor correlação com o espectro de eficiência quântica do fotodiodo PIN dentre os cristais cintiladores conhecidos. Isto demonstra a vantagem em utilizar o cristal de CsI(Tl) acoplado ao fotodiodo, como inicialmente proposto.
5. O tempo de decaimento da luminescência obtido neste trabalho foi 1,06 μ s, o qual é compatível com os valores descritos na literatura.

6. Estudos da resolução energética, efetuados com o cristal de CsI(Tl) acoplado à fotomultiplicadora e ao fotodiodo forneceram resultados similares aos descritos na literatura.

7. Os resultados obtidos demonstram a viabilidade de utilização do cristal de CsI(Tl) desenvolvido neste trabalho como detector de radiação na área de instrumentação nuclear, como por exemplo em monitores portáteis de radiação, em sistemas nucleônicos na indústria, em instrumentação para medicina nuclear, em experimentos espaciais e em equipamentos para ensino e pesquisa.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- 1 - ARIVUOLI, D.; KUMAR, J.; RAMASAMY, P. New trends in the growth of scintillation detector crystals. In: INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON NUCLEAR PHYSICS, Dec. 1-4, 1990, Madras. *Proceedings...* Madras, p. 231-241.
- 2 - BIRKS, J.B. *Scintillation counters*. New York, N.Y.: McGraw-Hill, 1953.
- 3 - BLUCHER, E.; GITTELMAN, B.K.; HELTSEY, B. K.; KANDASWAMY, R.; KOWALEWSKI, R.; KUBOTA, Y.; MISTRY, N. and STONE, S. Tests of cesium iodide crystals for an electromagnetic calorimeter. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, v. A277, p.210-217, 1988.
- 4 - BOYLESTAD, R.; NASHELSKY, L. *Electronic Devices and Circuit Theory*. N.J.: Englewood Cliffs, 1982.
- 5 - BRUCE, A.J.; HIREMATH, B.V. Scintillation performance and optical transmission of Ce doped Gd_2SiO_5 single crystals for radiation detectors. Solid-State Optical Materials, *Ceram. Trans.*, v.28, p.335-341,1990.
- 6 - DIETRICH, H.B.; MURRAY, R.B. *Journal of Luminescence*, 5, 155, 1972.
- 7 - EVANS, R.D. *The Atomic Nucleus*. New York,: Krieger, 1982.
- 8 - FLEMINGS, M.C. *Solidification Processing, Materials Science and Engineering*. New York,: Mac Graw-Hill, 1974.

-
- 9 - GONG, W. G.; CARLIN, N.; GELBKE, C. K. Quality tests of CsI(Tl) scintillators. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, v. A287 p.639-641, 1990.
- 10 - GONG, W.G.; KIM, Y.D.; POGGI, G.; CHEN, Z.; GELBKE, C.K.; LYNCH, W.G.; MAIER, M.R.; MURAKAMI, T.; TSANG, M.B. and XU, H.M. Resolution tests of CsI(Tl) scintillators readout by PIN diodes. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, v. A268, p.190-199, 1988.
- 11 - GRASSMANN, H.; MOSER, H. G.; DIETL, H.; EIGEN, G.; FONSECA, V.; LORENZ, E.; MAGERAS, G. Improvements in photodiode, readout for small CsI(Tl) crystal. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, v.A234, p.122-124, 1985.
- 12 - GRASSMANN, H.; LORENZ E.; MOSER. H. G. Properties of CsI(Tl)- Renaissance of an old scintillation material. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, v.228, p.323-326, 1985.
- 13 - GUINET, D.; CHAMBON, B.; CHEYNIS, B.; DEMEYER, A.; DRAIN, D.; HU, X.C.; PASTOR, C.; VAGNERON, L.; ZAID, K.; GIORNI, A.; HEUER, D.; LLERES, A.; VIANO, J.B. Using the combination CsI(Tl) and photodiode for identification and energy measurement of light particles. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, v.A278, p.614-616, 1989.
- 14 - GUNJI, S.; HANADA, N.; KOSHINO, T.; KAMAE, T.; MIYASAKI, S.; TAKAHASHI, T.; TAMURA, T.; YAMAGAMI, T.; MURAKAMI, H.; MORI, K.; TANAKA, H.; YAMAMOTO, K. Use of a large area photodiode in CsI(Tl) scintillation counters. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, v.A295, p. 400-404, 1990.

-
- 15 - HAMADA, M. M.; MADI F^o, T.; MESQUITA, C.H. Estudo do acoplamento óptico de detectores plásticos cintiladores: avaliação de diferentes produtos de silicone. In: CONGRESSO GERAL DE ENERGIA NUCLEAR, 3^o, Julho 22-27, 1990, Rio de Janeiro. *Anais...* Rio de Janeiro: Associação Brasileira de Energia Nuclear, 1990. v.3, p. 18-24.
- 16 - HAMADA, M.M.; HASHIMOTO, T.; SHIRAISHI, F. Performance of CsI(Tl) crystal coupled to photodiode. In: sixth workshop on radiation detectors and their uses, January 29-30, 1991, Japan. *Proceedings...* Japan: KEK, 1991. p. 55-57.
- 17 - HAMADA, M.M.; MESQUITA, C. H.; RELA, P. R.; HASHIMOTO, T.; SHIRAISHI, F. Estudo do desempenho da combinação do cristal de CsI(Tl) com fotodiodo tipo PIN. In: CONGRESSO GERAL DE ENERGIA NUCLEAR, 4^o, Julho 5-9, 1992, Rio de Janeiro. *Anais...* Rio de Janeiro: Associação Brasileira de Energia Nuclear, 1992. v.2, p. 611-614.
- 18 - HAMADA, M.M.; NUNOYA, Y.; KUBOTA, S.; SAKURAGI, S. Suppression of the slow emission component in pure CsI by heat treatment. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, v.A365, p.98-103, 1995.
- 19 - HAMAMATSU. *Photodiodes*, cat. N^o KPD0001 E05, Aug.1996.
- 20 - HAMAMATSU. *Photomultiplier Tubes*, Jan.1989.
- 21 - HOLL, I.; LORENS, E.; MAGERAS, G. A measurement of the light yield of common inorganic scintillators. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, v.35 (1), p.105-109, 1988.

- 22 - ISHII, M.; KOBAYASHI, M. Single crystal for radiation detectors. *Prog. Crystal Growth Charact.*, v. 23, p. 231-245, 1991.
- 23 - KNOLL, G.F. *Radiation detection and measurement*. 2nd.edition, New York, N.Y.:John Wiley, 1989.
- 24 - KREUTZ, P.; KUHMICHEL, A.; PINKENBURG, C.; POCHODZALLA, J.; GUO, Z.Y.; LYNEN, H.S.; TRAUTMANN, W. and TROCKEL, R. Photodiode readout and pulse analysis of CsI(Tl) scintillator signals. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, v. A260, p.120-123, 1987.
- 25 - KUBOTA, S.; SAKURAGUI, S.; HASHIMOTO, S.; RUAN, J. A new scintillation material: Pure CsI with 10ns decay time. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, v. A268, p.275-277, 1988.
- 26 - LAWSON, W.D.; NIELSEN, S. *Preparation of single crystals*. London: Butterworths Scientific Publications, 1958.
- 27 - MAFRA, O.Y. *Técnicas e medidas nucleares*. São Paulo, SP: Edgard Blucher, 1973.
- 28 - MESQUITA, C.H. *Soluções cintiladoras* - Apontamentos relativos à física, instrumentação, metodologia e aplicações práticas. São Paulo: 1980 (IPEN-Pub-2).
- 29 - MOSZYNSKI, M.; WOLSKI, D.; LUDZIEJEWSKI, T. Particle identification by digital charge comparison method applied to CsI(Tl) crystal coupled to photodiode. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, v.A336, p.587-590, 1993.

- 30 - OLIVEIRA, C.E.M.; CARVALHO, M.M.G. Crescimento de monocristais de GaAs pelo método de Bridgman horizontal. *Revista de Física Aplicada e Instrumentação*, v.5 , nº3, 1990.
- 31 - OVSIENKO, D.E.; ALFINTSEV, G.A. *Crystals, Growth and Properties*. New York: Springer-Verlag, vol.2, 1980.
- 32 - PEREIRA, M.C.C.; HAMADA, M.M.; MADI, Fº.T.; CALVO, W.A.P.; BRUZINGA, W.A.; VIEIRA, J.M.; MESQUITA, C.H. Caracterização do cristal cintilador CsI(Tl) desenvolvido no IPEN/CNEN-SP. In: III ENAN - ENCONTRO DE APLICAÇÕES NUCLEARES., Agosto 7-11, 1995, Brasil. *Anais... Águas de Lindóia, Brasil*: v.2, p.611-615, 1995.
- 33 - PFANN, W.G. *Zone Melting*. New York, N.Y.: John Wiley, 1958.
- 34 - ROSEMBERG F., *Purification of alkali halides in ultrapurity methods and techniques*. New York, N.Y.: M. Zief and R. Speighs, Marcel Dekker Inc., 1972.
- 35 - SAKAI, E. Recent measurement scintillator photodetector systems. *IEEE Trans. Nucl.Sci.*, NS-34 (1) , p.418-422, 1987.
- 36 - SCHOTANUS, R. ; KAMERMANS, R. ; DORENBOS. P. Scintillation characteristics of pure and Tl-doped CsI crystals. *IEEE Trans. Nuclear Sci.*, v.37(2) , p.177-182, 1990.
- 37 - TAIT, W. H. *Radiation detection*. London: Butterworths, 1980.

- 38 - TAMMANN, G. *States of aggregation*. New York, N.Y., Van Nostrand, D., 1952 apud Strickland - Constable, R. F. *Kinetics and mechanics of crystallization*. London, Academic, 1968.
- 39 - TARJÁN, I.; MÁTRAI, M. *Laboratory Manual on Crystal Growth*. Budapest.: Akadémiai Kiadó, 1972.
- 40 - TSOULFANIDIS, N. *Measurement and Detection of Radiation*. New York, N.Y.: Harper & Row, 1983.
- 41 - UTTS, B.K.; SPAGNO, S.E. An investigation on the characteristics of pure CsI crystals. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, v. 37, p.134-138, 1990.
- 42 - VIEHMANN, W.; ARENS, J.F. Optical transmission measurements on monocrystalline and polycrystalline cesium iodide. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, v.A116, p.283-295, 1974.
- 43 - VOLMER, M.; KOSSEL, W.; STRANSKI, I. N. *Die Kinetik der Phasenbildung*.: Dresden and Leipzig, 1939.