



3: Congresso Geral de Energia Nuclear

22 a 27 de abril de 1990

ANAIS - PROCEEDINGS

CONTRIBUIÇÃO AO DESENVOLVIMENTO DE DETECTORES METÁLICOS GEIGER-MULLER, HALOGENADO COM JANELA DE MICA

Maria Silvia Gorski
Wilson A. Bruzina
Wanderley de Lima

COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR - SP
INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Caixa Postal 11049 - Pinheiros
05508 - São Paulo - Brasil

SUMÁRIO

O trabalho visa o desenvolvimento de um modelo de detector Geiger - Muller que possa atender aos requisitos comerciais e industriais, no mercado nacional. Geometricamente o protótipo possui um comprimento efetivo de 37mm, com diâmetro útil da janela de mica de 19,8mm e espessura de 1,5mg/cm² a 2mg/cm². Estudou-se basicamente dois tipos de agentes "quenching": Br₂ e Cl₂. Trabalhou-se com eletropolimento, apassivação química, niquelação e nitretação para o tratamento superficial do cátodo. Esses detectores são desgaseificados em alto vácuo, com pressão da ordem de 1E-06torr. Desenvolveu-se um vidro de solda ajustado aos coeficientes de expansão dos materiais envolvidos para junções: vidro-metal e mica-metal. O objetivo é obter o detector Geiger-Muller operando com patamar acima de 200V, tensão de trabalho em torno de 600V e sensibilidade de 320cps à 1E-04Gy/h.

ABSTRACT

In this work, we present the development of a model of a Geiger-Muller detector that fulfill the commercial and industrial requirements for a national market. The prototype has a cylindrical shape with 37mm of effective length and a mica window of 1,5mg/cm² to 2mg/cm² thickness with a useful diameter of 19,8mm. For the window preparation a special cutting technique was developed. Basically two types of quenching agents, Br₂ and Cl₂ were studied. We work with treatment of the surface of the cathode through electropolishment and chemical passiveness. Our main objective was to get a Geiger-Muller detector with an operational plateau over 200V, working voltage above 600V and a sensivity of 320cps at 1E-04Gy/h.

INTRODUÇÃO

Vários tipos de detectores de radiação foram desenvolvidos nos últimos cinquenta anos para um grande número de aplicações: câmaras de íons, proporcionais, cintiladores e Geiger-Muller. A aplicação de cada um é determinada por suas características: eficiência, reprodutibilidade, poder de resolução, tempo de vida útil, tipo de circuito associado, tamanho e custo.

O detector Geiger-Muller é diferente de um contador proporcional e cintilador; não é discriminador e o patamar da curva de resposta independe do tipo de radiação e energia.

Dentre as vantagens de um detector G.M. em suas aplicações, pode-se citar sua utilização como medidor de taxa de dose portátil, devido ao fato da taxa de contagens de radiação de fundo ser baixa, pois é baixa sua sensibilidade a gama e também devido ao seu tamanho e simplicidade de operação. A tensão de trabalho é baixa e possui um longo tempo de vida. Pode ser utilizado em medições de beta e sua eficiência é comparável a um detector proporcional de fluxo. A principal desvantagem é não ser útil em trabalhos de coincidência com grande poder de resolução, pois a formação de pulso é lenta.

Além de beta, o contador G.M. é utilizado para partículas alfa e as vezes gama. Sua geometria é mostrada na figura 1. Consiste basicamente de um eletrodo central, mantido a um potencial positivo (ânodo), rodeado por um cilindro metálico (cátodo). O interior é preenchido por uma mistura de dois gases raros e um agente "quenching" halogenado.

"Quenching" é a extinção do pulso da corrente de ionização no tubo Geiger-Muller. O efeito é determinado pela combinação das propriedades do gás halogênio e o valor do resistor do ânodo. Esses contadores operam com resistências relativamente baixas e não produzem descargas contínuas, exceto quando submetidos à alta tensão. Eventos ionizantes começam quando um quanta de energia ou partículas penetram no tubo através da janela de mica ou paredes, colidindo com as moléculas do gás.

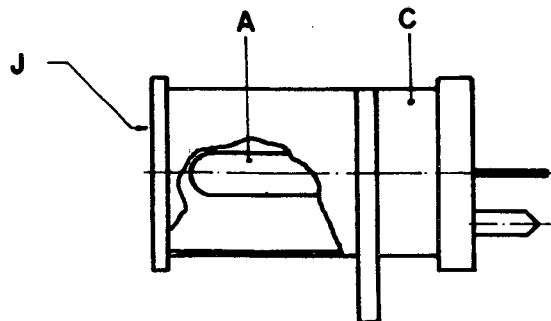


FIG. 1. - Det. GEIGER MÜLLER - (J) janela de mica ,
(C) cátodo , (A) ânodo .

MECANISMO DE FUNCIONAMENTO

Present (1) foi um dos precursores, no desenvolvimento dos detectores tipo Geiger-Muller, ao mostrar que os halogênios possuem potenciais de ionização e espectros de absorção adequados para atuarem como agentes "quenching".

Descargas elétricas em gases raros são capazes de excitar metaestados de energia relativamente alta com tempos de vida longos. Introduzindo-se um outro gás com potencial de ionização menor ou igual que a energia do metaestado do gás raro, pode ocorrer a ionização por colisão. A probabilidade dessa transferência de energia é alta a ponto de apenas um traço desse gás na mistura ser suficiente para reduzir a tensão inicial da descarga (2,3).

Os metaestados dos gases raros são rapidamente excitados na descarga. São eletricamente neutros e deslocam-se no campo, mas quando alcançam o cátodo, a possibilidade de ejetar um elétron é elevada (50%) (4). Reignição de descargas de contagens conduz a uma sucessão de contagens espúrias. A molécula do halogênio introduzida na mistura deve ser capaz de absorver a energia dos metaestados por colisão.

O principal critério para a ação "quenching" é o potencial de ionização do halogênio, o qual deve ser menor que o do gás raro e que as moléculas ionizadas devem pré-dissociar-se ou sofrer fotodecomposição com neutralização do cátodo.

Os halogênios mais utilizados para atuarem como "quenching" são o bromo e cloro. O iodo, quimicamente menos reativo, pode condensar parcialmente nas paredes, devido a sua curva de pressão de vapor, Figura 2.

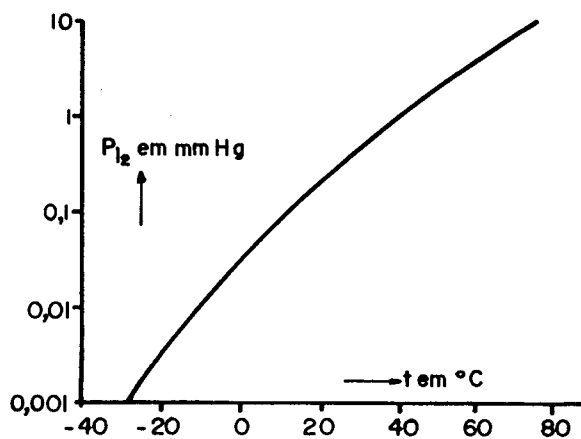


FIG.2. Curva do pressão de vapor para o iodo

Traços do halogênio (0,05mmHg a 0,1mmHg) são suficientes para as boas características do detector. A razão de captura dos elétrons pelo halogênio ocorre como:

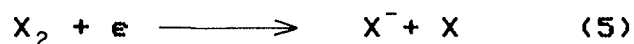


Tabela I - Propriedades dos gases (6). Pi - potencial de ionização, Em - energia dos metaestados, Ea - eletroafinidade.

GASES	Br ₂	Br	Cl ₂	Cl	Ar	Ne
Pi(ev)	12,8	11,8	13,2	13,01	15,75	21,55
Em(ev)	-	-	-	-	11,6	16,53 16,62
Ea(ev)	-	3,65	-	3,83	-	-

O neônio é o gás mais adequado para confecção de Geiger-Muller (7), porém quando se deseja tensões de operação mais baixas é importante a introdução de um pouco de argônio. Aumentando-se a sobretensão de um detector neônio-halogênio, o número de átomos metaestáveis produzidos na descarga aumenta. O argônio pode ser ionizado pelos metaestados, pois $Em(Ne) > Pi(Ar)$ tabela I, atuando da mesma forma que o halogênio no processo da desexcitação do neônio (8). Os íons positivos do argônio são neutralizados por colisão. Com isso é possível obter-se detectores Geiger-Muller com tensões iniciais baixas (380V) e patamares longos (200V) antes que o processo de múltiplos pulsos (descargas) ocorra.

O detector Geiger-Muller não é igualmente sensível às radiações em todo o seu volume, junto ao cátodo sua eficiência diminui porque o campo elétrico em sua vizinhança é muito menor que o campo junto ao ânodo. A probabilidade de uma partícula atingir o Geiger-Muller não é a mesma para todo o volume do detector. Temos então uma região de volume sensível onde para uma partícula incidente temos um pulso resultante, ou seja, onde a eficiência do detector é constante.

PREPARAÇÃO DOS DETECTORES

Devido às propriedades dos coeficientes de expansão dos materiais envolvidos na confecção do Geiger-Muller, desenvolveu-se um vidro de solda de baixo ponto de fusão, para as junções vidro-metal e mica-metal. O cátodo e ânodo ideal são em aço 446,

que possui alto teor de cromo (28%), resistente à corrosão dos halogênios. Devido a dificuldade de aquisição desse metal, utilizou-se também o aço 420, com deposição de cromo duro, níquel e durotin.

Inicialmente, a limpeza dos componentes é feita com desengraxante, água deionizada, acetona e tricloroetileno em ultrassom, sendo secos em estufa. As superfícies internas dos cátodos foram submetidas a diferentes pré-tratamentos químicos: eletropolimento ou passivação química com ácidos fortes. As bases dos detectores são em vidro alcalino, sinterizadas com o ânodo centrado.

A montagem final para junção da base e janela de mica com o cátodo é feita à 420 graus Celsius, para a fusão do vidro solda. Esta temperatura causa uma ligeira oxidação no detector, mas não compromete as superfícies internas do cátodo.

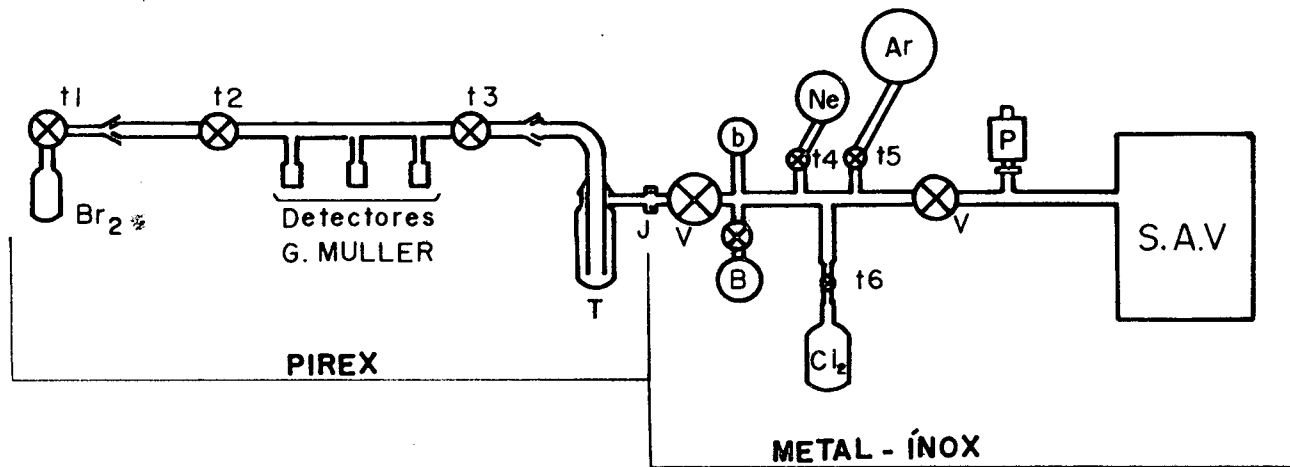


Fig.3- SISTEMA DE DESGASEIFICAÇÃO E ENCHIMENTO. T1, T2, T3 - válvulas de teflon e pirex; T - "trap" removível; T4, T5, T6 - válvulas com ajuste fino; V - válvulas em aço inox; J - junção vidro-metal; P - medidor Penning; SAV - sistema de alto vácuo com "trap" de nitrogênio líquido; b - medidor de pressão EMV 251, B - medidor de pressão Baratron MKS - 77.

Acopla-se o detector ao sistema de alto vácuo, fig.3. A pressão desse sistema é da ordem de $1,0E-07$ mbar. O detector é desgaseificado por um dia a 200 graus Celsius. Fazem-se sucessivas descargas em "glow" com neônio ou argônio para otimizar as condições das paredes do detector. A etapa seguinte consiste em manter o sistema entre T1 e T3 sob atmosfera de halogênio para saturar o vidro e o metal, evitando possíveis absorções após o enchimento final, podendo comprometer as características do detector. Finalmente, procede-se o enchimento e sela-se.

Foram feitos Geiger-Muller com Cl_2 , com Br_2 e misturas com várias pressões parciais de neônio e argônio, em aço 446 e 420 com revestimentos diferentes.

Introduziu-se o bromo em várias pressões, estimadas de 0,05mmHg a 1,0mmHg, mantidas através de controle de temperatura do "dewar", com gel ao redor do reservatório. A faixa de temperatura foi de -82 C a -50 C. Para proteção do sistema de alto vácuo é conveniente o uso de nitrogênio líquido ou soda (16% NaOH) no "trap" para remoção de resíduos do halogênio.

No caso do cloro e do argônio, as pressões foram medidas pelo sensor baratron MKS-77 que opera na faixa de 0,01mbar a 30mbar. Para o neônio usou-se o sensor EMV - 251 da Edwards. O circuito associado ao detector para as medições está representado na fig.4. Com auxílio de um osciloscópio 7633 Tektronix, verificou-se o início e a altura dos pulsos que variaram de 100mV a 3,0V. O contador de partículas utilizado não possui sensibilidade para pulsos com alturas menores que 500mV.

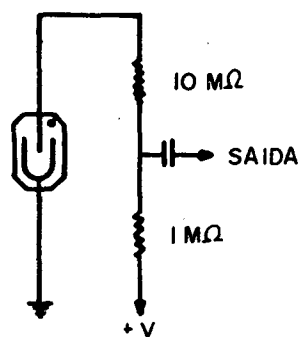


FIG. 4. Circuito para medições

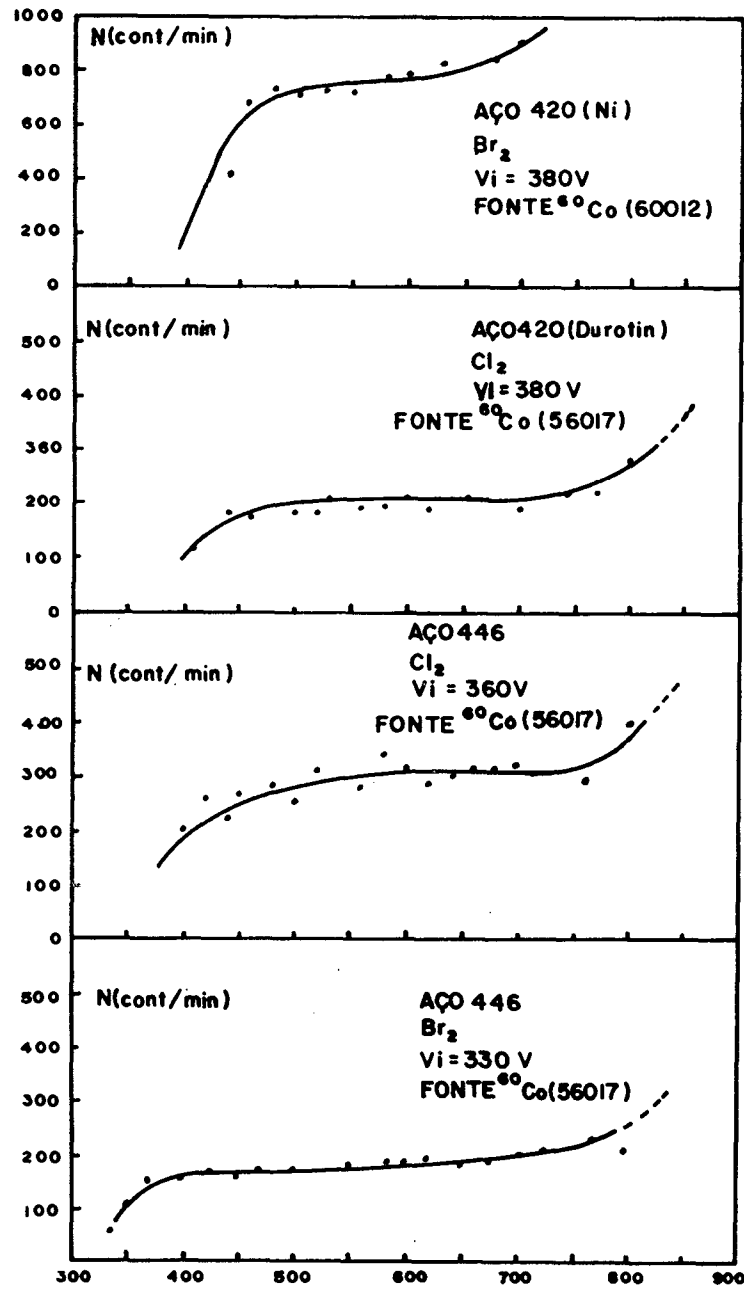


FIGURA 5: CURVAS DE PATAMARES.

RESULTADOS

A relação 4:1 entre argônio e o halogênio, apresentada por Liebson (8) mostrou-se ideal para as boas características do detector, mas acima de uma certa pressão parcial de argônio 0,8mmHg os detectores apresentaram um aumento de tensão inicial. Comprovou-se também a diminuição na taxa de contagens com o aumento da concentração do halogênio. Provavelmente o volume efetivo do contador diminui devido a alta probabilidade de captura do elétron pelo halogênio para formar íon negativo na baixa região do campo do contador.

As condições das superfícies internas dos cátodos são críticas. Tentativas de reenchimento, após utilização do detector, mesmo aquecendo-o em alto vácuo, mostraram resultados distorcidos, pois o halogênio altera as condições das paredes.

Existe um tempo de equilíbrio, após o enchimento final onde ocorre variação na tensão inicial dos contadores. É necessário aguardar um tempo determinado antes das medições serem realizadas.

Impurezas como N_2 , O_2 e H_2O comprometem a inclinação do patamar. No caso da água ocorre aumento da corrosão do material, provavelmente pela formação de ácidos halogenados devido à ação do contador.

Os tempos de vida foram curtos, principalmente no caso do aço 420. Ocorreu envelhecimento precoce com redução dos patamares após algumas semanas de uso. Acredita-se em melhores resultados com o uso de halogênios mais puros (9).

Realizaram-se alguns testes com compostos clorados, não corrosivos, convenientes para agentes "quenching" (10) como o diclorometano, dicloroetano, tricloroetano, tetracloreto de carbono e tricloroetileno. Nas mesmas condições de enchimento, obteve-se larguras de patamares e inclinações diferentes. A diferença entre a energia dos metaestados do gás raro ou potencial de ionização e a energia de ionização desses compostos, em alguns casos, estão fora das bandas de absorção dos orgânicos. Essa diferença pode ser suficientemente energética para provocar fotoelétrons no cátodo ($> 5.0eV$). Aumentando-se a função trabalho do cátodo, alguns desses compostos tornam-se promissores na confecção de detectores Geiger-Muller.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. PRESENT, R.D.; On Self - Quenching Halogen Counters, Phys. Rev. 72, 243, 1947.
2. S.H. LIEBSON ; The Discharge Mechanism of Self - Quenching G. Muller Counters, Phys. Rev. 72, 181, 1947.
3. S.A. KORFF and R.D. PRESENT ; On the Role of Polyatomic Gases in Fast Counters, Phys. Rev. 65, 274, 1944.
4. S.H. LIEBSON and H. FRIEDMAN ; Self Quenching Halogen Filled Counters, The Rev. of Sci Instr. 19, 303, 1948.
5. D. VAN ZOONEN and G. PRAST JR.; Properties of Argon - Bromine Counters, Appl. Sci. Res. B3, 1, 1953.
6. LOEB, L.b. Fundamentals processes of electrical discharge in gases; N.York 1939.
7. D.H. LE CROISSETTE, J. YARWOOD; The Gas Filling and Some Characteristics of Bromine - Quenched G.M. Counters, J. Sci. Inst. 28, 225, 1951.
8. S. LIEBSON ; Characteristics of Halogen Counters, The Rev. of Sci. Instr. 20, 483, 1949.
9. D. SRDOC; Gas Discharge Mechanism and Properties of Halogen - Quenched Counters, Nuclear Instr. and Methods 99, 321, 1972.
10. R. MEUNIER, M. BONPASS et J.P. LEGRAND ; Les Compteurs de G. Muller. A Mélange Binaire: Gas Rares, Vapeur Organique, Le Journal de Physique et le Radium 14, 630, 1953.