

DESENVOLVIMENTO DE DETECTORES DE RADIAÇÃO UTILIZANDO CRISTAIS CINTILADORES INORGÂNICOS CRESCIDOS PELA TÉCNICA DE BRIDGMAN

**Tais de Queiroz Batista, Robinson Alves dos Santos e Maria da Conceição
Costa Pereira**

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN/CNEN-SP
Avenida Professor Lineu Prestes 2242 - Cidade Universitária
Caixa Postal 11049 – CEP 05508-000
São Paulo – SP - Brasil
tais_dequeirozbatista@hotmail.com
macoper@ipen.br

RESUMO

Detectores de radiação são dispositivos que colocados em um meio onde exista um campo de radiação, sejam capazes de indicar sua presença. São constituídos de um elemento sensível à radiação e um sistema que transforma esses efeitos em um valor relacionado a uma grandeza de medição dessa radiação. A radiação ionizante abrange amplo espectro de energia e variados tipos de interações com a matéria. Como consequência cada detector tem o seu campo de utilização delimitado pelo tipo de radiação, intervalo de energia e características próprias da sua resposta física. Dentre os tipos de detectores, os cintiladores atendem as diversas necessidades no campo de detecção de radiação. Cintiladores são materiais capazes de produzir luz quando a radiação ionizante dissipa sua energia em seu meio. Esses materiais apresentam-se na forma pura ou dopados. Ainda que muitos dos fundamentos da física, essenciais ao processo de cintilação, vêm sendo estudados, a necessidade de aprimorar estes materiais tem sido importante na pesquisa e desenvolvimento de materiais cintiladores. Neste trabalho, os cristais cintiladores foram crescidos utilizando-se a técnica de Bridgman. Essa técnica consiste na solidificação fracional de um material previamente fundido em um gradiente de temperatura. A técnica de Bridgman foi desenvolvida por P.W. Bridgman em 1925. O objetivo deste trabalho foi desenvolver cristais cintiladores inorgânicos em matriz CsI utilizando como elemento dopante o chumbo (Pb) para uso como detector de radiação. Foram investigados os parâmetros envolvidos no crescimento do cristal e as propriedades detectoras desse cristal quando submetido a radiação de partículas alfa e radiação gama.

Palavras chave: cintilador, crescimento de cristais, detectores de radiação.

1. INTRODUÇÃO

Os detectores de radiação são essenciais em todos os campos da energia nuclear. São dispositivos que, colocados em um meio onde exista um campo de radiação, sejam capazes de indicar a sua presença. Existem diversos processos pelos quais diferentes radiações podem interagir com o meio material utilizado para medir ou indicar características dessas radiações. Entre esses processos os mais utilizados são os que envolvem a geração de cargas elétricas, a geração de luz, a sensibilização de películas fotográficas, a criação de lacunas no material, a geração de calor e alterações da dinâmica de certos processos químicos. Detectores de radiação são constituídos de um elemento sensível à radiação e um sistema que transforma esses efeitos em um valor relacionado a uma grandeza de medição dessa radiação.

A radiação ionizante abrange amplo espectro de energia e variados tipos de interações com a matéria. Como consequência cada detector tem o seu campo de utilização delimitado pelo tipo de radiação, intervalo de energia e características próprias da sua resposta física. Dentre os tipos de detectores, os cintiladores atendem as diversas necessidades no campo de detecção de radiação.[1]

Os cintiladores são materiais capazes de produzir luz quando a radiação ionizante dissipa sua energia em seu meio. 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, orgânicos e gasosos. Dentre os cristais inorgânicos, os mais utilizados como cintiladores são constituídos de metais alcalinos, em particular iodetos alcalinos [1,2,3]. Os cristais inorgânicos têm sido objeto de estudo para serem utilizados como sensores de radiação, desde a década de 50 [3,4]. Desde então, vários materiais inorgânicos têm sido estudados em diversos campos da ciência e engenharia. A pesquisa de novos materiais cintiladores tornou-se crescente nos últimos anos, impulsionada pelas necessidades de desenvolvimento da física de energias altas, tomografia nuclear e outros campos da ciência e engenharia. A melhor compreensão dos vários mecanismos de cintilação tem possibilitado o uso de novos materiais para detecção de vários tipos de radiação. Ainda que muitos dos fundamentos da física, essenciais ao processo de cintilação, vêm sendo estudados, a necessidade de aprimorar estes materiais tem sido importante na pesquisa e desenvolvimento de materiais cintiladores.

Atualmente, cintiladores inorgânicos são explorados em novos campos, tais com tomografia de emissão de positron (PET), tomografia de raios-X computadorizada (CT), física espacial e astronomia. Em muitos casos os cintiladores convencionais CsI:Tl e NaI:Tl são utilizados, por outro lado os cintiladores BaF₂ e BGO são os mais apropriados para PET. Cintiladores inorgânicos são também bastante usados em física de energias altas para medições de energias de gama e elétrons/positrons em aceleradores. Um detector de cintilação de grandes dimensões denominado calorímetro eletromagnético (EM) de absorção total contém uma quantidade grande de módulos, em alguns casos mais de 10⁴ cristais e um peso total de até 10 toneladas. O cristal NaI:Tl foi o primeiro material cintilador a ser usado em calorímetros EM. Posteriormente foram utilizados cristais de CsI:Tl e mais recentemente têm sido empregados cintiladores de BGO. Cintiladores de BaF₂ e CsI puro têm sido empregados em detectores de pequenas dimensões em HEP e também em experimentos de física nuclear [5,6].

Existe, portanto, um interesse contínuo em encontrar novos materiais cintiladores ou melhorar as características de cintiladores conhecidos. Entretanto encontrar novos cristais de cintilação que atendam as necessidades crescentes nas diversas áreas é bastante complexo. Novas aplicações de cintiladores requerem resposta rápida e grande seção de choque de absorção para fótons gama de energia alta, os quais devem possuir ainda rendimento de luz alto, estabilidade química alta à radiação e resistência mecânica alta. Esforços têm sido feitos para encontrar ou sintetizar um material cintilador ideal, ou seja, que atendam a todos os quesitos necessários para os vários tipos de radiação. Entretanto tal material ainda não foi descoberto e possivelmente não o será. Sendo assim a pesquisa leva a um aumento da lista de cintiladores adequados disponíveis para aplicações práticas que atendam a um ou mais requisitos.

Apesar do grande número de aplicações conhecidas dos cintiladores inorgânicos, a pesquisa para aperfeiçoamento dos cristais existentes ou de novos materiais com densidade alta, produção de luz alta e tempo de decaimento de luminescência rápido são ainda objeto contínuo de estudos. Entretanto, desde que os sistemas de detecção futuros irão requerer grandes quantidades desses materiais de cintilação, o conhecimento tecnológico de produção em grande escala torna-se o item mais importante a ser considerado para qualquer novo material [7,8]. Neste contexto, foi selecionado o elemento chumbo (Pb) como dopante a ser introduzido na matriz CsI.

O objetivo do trabalho foi o desenvolvimento de cristais cintiladores inorgânicos em matriz de CsI, utilizando como elemento dopante o Pb para uso como detectores de radiação. Foi estudada a concentração de 5×10^{-4} M do elemento dopante e as propriedades detectoras desses cristais, excitando-os com radiação gama no intervalo de energia de 355 keV à 1333 keV e radiação de partículas alfa (5,54 MeV).

2. MATERIAIS E MÉTODOS

Os cristais de iodeto de céσιο dopados com chumbo (CsI:Pb) foram crescidos utilizando a técnica de Bridgman. [9,10,11] Nesta técnica a confecção de cadinhos com configuração geométrica apropriada (Fig. 1), é fator relevante no processo de crescimento de cristais, pois permite a formação de um núcleo cristalino o qual se propaga para formar um cristal [12].



Figura 1: Cadinho com configuração geométrica apropriada ao crescimento de cristais pela técnica de Bridgman.

Na técnica de Bridgman, os sais de partida, foram submetidos ao processo de desumidificação sob vácuo contínuo de 10^{-6} mbar e temperatura de 200° C por 3 h com a finalidade de remover a água residual, gases atmosféricos e impurezas voláteis.[13] O cadinho, o qual foi confeccionado em quartzo, foi preenchido em aproximadamente 40% do seu volume com o sal de CsI e o dopante PbI com concentração de 5×10^{-4} M.

O processo de desumidificação seguiu as seguintes etapas: aquecimento lento do sistema sob vácuo contínuo até a temperatura de 100° C (intervalo de temperatura no qual a hidrólise não ocorre), permanecendo nesta temperatura por 1 h. A partir desta temperatura, ainda sob vácuo, foi mantido o aquecimento do sistema com taxa de aquecimento de 25° C até 200° C, permanecendo nesta temperatura por 3 h para remover a água absorvida quimicamente. (Fig. 2)

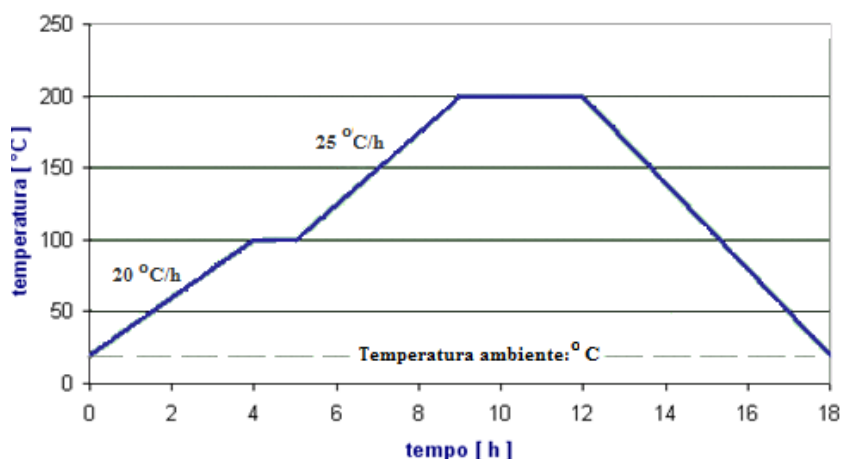


Figura 2: Ciclo de aquecimento-resfriamento dos sais de partida.

Finalizado o processo de purificação, foi adicionado 0,01% de iodo elementar em atmosfera inerte de argônio puro. Este procedimento teve como objetivo, evitar a possível formação de vacâncias na estrutura cristalina. A seguir o conjunto foi levado à linha de vácuo até atingir 10^{-6} mbar e efetuou-se o selamento do tubo de quartzo.

O cristal com o novo candidato à dopante foi crescido utilizando-se um forno vertical de duas zonas (quente e fria). O sistema é aberto, tendo sido projetado para operar com ampolas seladas em seu interior. Foram realizados estudos das características térmicas do forno, no intuito de se obter uma curva de temperatura ideal ao crescimento dos cristais. Para controle da temperatura do forno foi utilizado um controlador-temporizador de temperatura com microcontrolador e um sensor termopar de cromel-alumel tipo K. A potência máxima do forno é 1500 W.

O tubo de quartzo (cadinho) contendo o sal de CsI e o dopante, foi posicionado na zona quente do forno, e o material fundido à temperatura de 650°C . Após a fusão completa do sal foi necessária a estabilização da temperatura, e o material fundido permaneceu nessa condição por 3 horas para garantir a homogeneização da carga. Só então começou o deslocamento do cadinho, o qual foi feito em direção à zona fria do forno a uma velocidade de 1mm h^{-1} , por meio de um motor de corrente contínua. A temperatura foi rigorosamente controlada utilizando-se um controlador com microprocessador. Este deslocamento em direção à zona fria do forno permitiu que o crescimento do cristal no cadinho seja sempre da extremidade inferior à superior. Finalmente, após 120 horas, o cadinho foi ocupado com o monocristal. Deve-se também controlar a umidade e a temperatura do ambiente durante o crescimento para garantir um adequado funcionamento do sistema.

Finalizada a etapa de crescimento, iniciou-se o tratamento térmico, transferindo-se o cristal para um tubo de quartzo limpo. Neste procedimento utilizou-se vácuo contínuo de 10^{-6} mbar e temperatura de 350°C por 24 h. Após o tratamento térmico o cristal tornou-se incolor.

O cristal foi cortado nas dimensões desejadas para o experimento com serra de disco diamantado (Buehler ISOMET 11-1180). O corte foi feito lentamente, evitando-se choques mecânicos.

Para obter-se uma boa qualidade no polimento dos cristais, todo o trabalho deve ser realizado numa sala com umidade relativa do ar baixa, e a limpeza deve ser a melhor possível, já que praticamente qualquer tipo de contaminante pode riscar a superfície em polimento. Após o corte o cristal foi polido com etileno glicol p.A. ($C_2H_6O_2$). As superfícies laterais são deixadas sem polimento para melhorar a reflexão interna. Na utilização desses materiais como detectores de radiação o processo de polimento é bastante importante, para que se possa obter cristais com superfícies planas isentas de riscos ou orifícios, que funcionam como centros espalhadores de radiação.

No estudo da resposta à radiação gama e à partículas alfa, o cristal foi usinado, polido e acoplado diretamente ao tubo fotomultiplicador bi-alkalino (modelo RCA 8575, 21 pinos) usando-se graxa de silicone (Dow Corning) de viscosidade de 0,5 McStokes como interface óptica. Os lados do cristal os quais não estavam em contato com o fotosensor foram recobertos em várias camadas com fita teflon para assegurar boa reflexão de luz. As fontes radioativas foram posicionadas no centro da face superior do cristal. Os módulos eletrônicos utilizados para o tratamento dos sinais provenientes do tubo fotomultiplicador 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 Phillips (PM3295A 400MHz) e microcomputador Pentium III.

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 resposta do sistema detector cristal de CsI:Pb acoplado ao tubo fotomultiplicador foi determinada utilizando-se fontes de radiação gama, com energias no intervalo de 355 keV à 1333 keV, e fonte de partículas alfa com energia de 5,54 MeV. A tensão de operação da fotomultiplicadora foi de 2700 V para a detecção de raios gama e 2200 V para a detecção de partículas alfa; e o tempo de acumulação no processo de contagem foi de 600 s. Os cristais utilizados na espectroscopia gama foram cortados com dimensões de 2 cm de diâmetro e 2 cm de altura; e na espectroscopia para a radiação alfa, foram utilizados cristais com 2 cm de diâmetro e 5 mm de espessura.

3. RESULTADOS E DISCUSSÃO

Na Fig. 3 é mostrado o cristal CsI:Pb com concentração 5×10^{-4} M crescido pela técnica de Bridgman. O cristal crescido apresentou 50 mm de comprimento e 20 mm de diâmetro. O tempo total de crescimento foi de 120 horas.



Figura 3: Fotografia do cristal cintilador CsI:Pb 5×10^{-4} M.

Na Fig. 4 é mostrado o resultado da espectroscopia alfa para a radiação do ^{241}Am (5,54 MeV) obtido com o cristal cintilador de CsI:Pb.

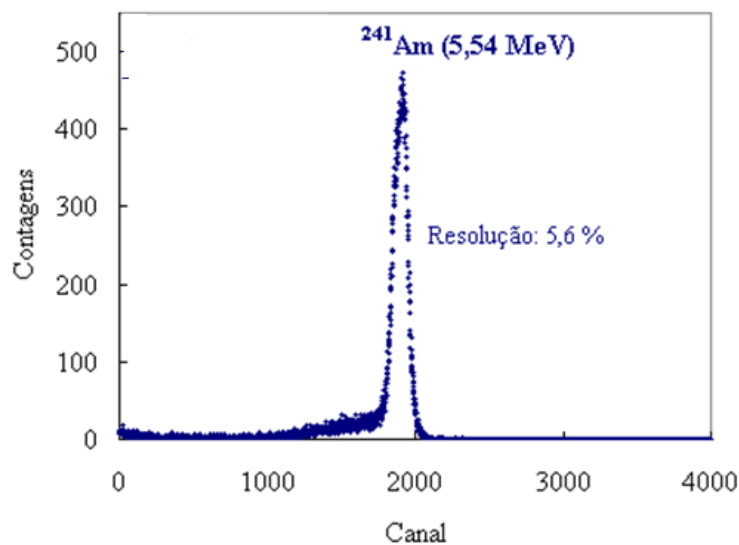


Figura 4: Espectro obtido para a radiação do ^{241}Am (5,54 MeV) com o cristal CsI:Pb 5×10^{-4} M.

Pico definido foi observado para o cristal de CsI dopado com Pb, quando excitado com partículas alfa. A resolução percentual do detector CsI:Pb acoplado ao tubo fotomultiplicador foi de 5,6%.

Na Fig. 6 apresenta-se o resultado da espectroscopia gama para a radiação do ^{137}Cs (662 keV), ^{60}Co (1173 keV e 1333keV), ^{22}Na (511 keV e 1275 keV) e ^{133}Ba (355 keV) obtido com o cristal CsI:Pb. Pode ser observado que o cristal é sensível a estas radiações, entretanto os fotopicos desses radionuclídeos não foram identificados.

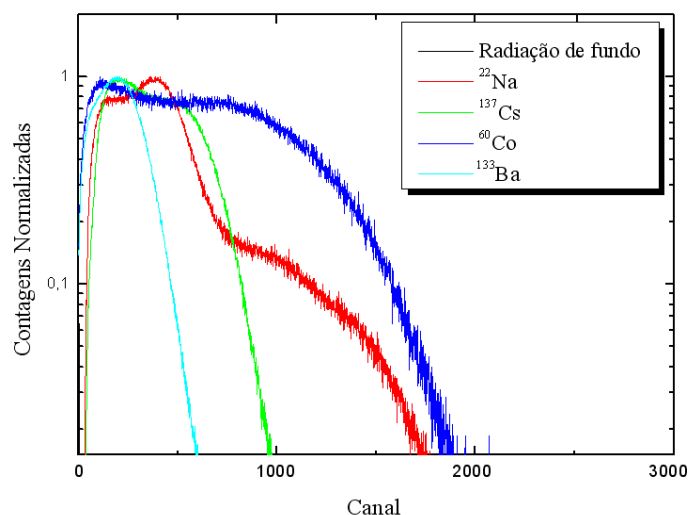


Figura 6: Resultados obtidos para a radiação do ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{22}Na e ^{133}Ba com o cristal $\text{CsI:Pb } 5 \times 10^{-4} \text{ M}$.

A partir das curvas obtidas para o cristal de CsI:Pb utilizando radiação gama das fontes de ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{22}Na e ^{133}Ba não foi possível extrair a resolução deste detector. A baixa capacidade de resolução do cristal de CsI:Pb pode ser atribuída a auto absorção da luminescência no próprio cristal pela presença do Pb nas suas estruturas. No entanto para aplicações onde a resolução energética não seja um item relevante, o cristal CsI:Pb com concentração molar de 5×10^{-4} pode ser utilizado quando se desejar um detector de radiação com custo relativamente baixo de produção e diferentes tamanhos e geometrias.

Essas diferenças observadas entre as respostas dos cristais excitados com partículas alfa e raios gama têm sido atribuídas a mecanismos de transportes diferenciados de elétrons e lacunas para os centros de luminescência. [14,15]

4. CONCLUSÕES

A técnica de Bridgman vertical utilizada neste trabalho para o crescimento do cristal CsI:Pb mostrou-se bastante adequada. Devido ao processo de crescimento de cristais ocorrer em cadinhos selados permitiu um controle mais rigoroso da perda de dopantes voláteis, bem como da pureza dos cristais obtidos.

O elemento dopante chumbo mostrou-se adequado para ser incorporado à matriz CsI . Evidentemente, outras concentrações do dopante chumbo devem ser estudadas.

O cristal de CsI:Pb apresentou sensibilidade à radiação gama detectando as energias das fontes radioativas utilizadas, entretanto para a concentração molar de 5×10^{-4} não foi possível identificar os fotopicos correspondentes.

O cristal CsI:Pb , quando excitado com partículas alfa mostrou espectro com pico definido,

com resolução energética de 5,6%. Os resultados mostraram a viabilidade da utilização dos cristais desenvolvidos neste trabalho para aplicação em física de altas energias.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. G.F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, 4rd edition, John Wiley & Sons, New York, NY, USA, (2010).
2. N. Tsoulfanidis, *Measurement and Detection of Radiation*, New York, N.Y.: Harper & Row (1983).
3. M. Globus, B. Grynyou, J.K. Kim, *Inorganic Scintillators for Modern and Traditional Applications*, Ukraine, Kharkiv, (2005).
4. M.Ishii and M. Kobayashi, “Single crystals for radiation detectors”, *Prog. Cristal Growth and Charact. of Materials*, **v.23**, pp. 245-311 (1992).
5. H. B. NEWMAN, “Precision crystal electromagnetic calorimeters at high energy accelerators and colliders”, in *Heavy Scintillators for Scientific and Industrial Applications. Proc. Crystal 2000 Int. Workshop*, DE NOTARISTEFANI, F.; LECOQ, P.; SCHNEEGANS, M. Eds., Editions Frontieres, Gif-sur-Yvette, Cedex, France, **v.5** (1993).
6. P. LECOQ, V.V. MIKHAILIN, “Inorganic Scintillators and Their Applications”. SCINT 99, Moscow State University, Moscow (2000).
7. R. NOVOYNY, “Inorganic scintillators—a basic material for instrumentation in physics”. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* **v.537**, pp.1-5 (2005).
8. M.J. WEBER, “Inorganic scintillators: today and tomorrow”, *Journal of Luminescence*, **v.100**, pp.35-45 (2002).
9. P.W. Bridgman, *Proc. Amer. Acad. Arts Sci.*, **v. 60**, pp. 303-383 (1925).
10. M.C.C. Pereira, T.M. Filho and M.M.Hamada, “The effect of Pb²⁺ dopant in the crystal of CsI and its application as scintillation detector: a study of alpha particles”. *Radiation Effects and Defects in Solids*, **v. 167**, pp. 921-928 (2012).
11. M.C.C. Pereira, T.M. Filho, M.M.Hamada, “Development of crystals based on cesium iodide for measurements of gamma radiation and alpha particles”. *Nukleonika – International Journal of Nuclear Research*, **v.54**, p.151-155 (2009).
12. N.K. UDAYASHANKAR, H.L. BHAT, “Growth and characterization of indium antimonide and gallium antimonide crystals”, *Bull. Mater. Sci.*, **v. 24**, n°5 pp. 445-453 (2001).
13. I. Garapyn, I. Hud., B. Pavlyk, “Properties of cesium iodide prepared by different purification methods”, *Radiation Measurements*, **v.38**, pp. 475-479, (2004).
14. SCHOTANUS, P.; KAMERMANS, R.; DORENBOS, P. Scintillation characteristics of pure and Tl-doped CsI crystals. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* v. 37 (2), p.177-182 (1990).
15. Q. Sun, B.Qu, J.Shi, “Investigation of relations between absorption band positions and crystalline environment in Pb²⁺ doped alkali halides”, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **v.12**, pp. 4178-4183 (2010).