

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES

AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

BR9024435

INIS-BR--2264

CONTRIBUIÇÃO PARA A APLICAÇÃO DO DETECTOR PHOSWICH
NA ANÁLISE DE AMOSTRAS AMBIENTAIS

9

LEONARDO DALAQUA JUNIOR

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

Orientador: Dr. José Roberto Rogeiro



SÃO PAULO

1989

AGRADECIMENTOS

- Ao Dr. José Roberto Rogero, por ter acreditado que a vontade so brepuja as adversidades e, principalmente pela demonstração de respeito pessoal e profissional.
- À Cibele que teve um papel fundamental para que este trabalho fosse concluído.
- À Promon Engenharia S/A. pela contribuição dada na fase final deste trabalho.
- À Lucia e Dna. Vina pelo apoio em todos os passos que eu dei.

*Em todas as coisas, existe
algo de bom que às vezes de
pendem de sabermos procurar.
Elas existem,
e isso é o que importa*

L.D.J.

*Para Cibele
Lucia e Dna. Vina.*

RESUMO

CONTRIBUIÇÃO PARA A APLICAÇÃO DE UM DETECTOR PHOSWICH NA ANÁLISE DE AMOSTRAS AMBIENTAIS.

Leonardo Dalaqua Junior

Neste trabalho é feita a avaliação das características de um detector phoswich e a determinação dos parâmetros operacionais do sistema de discriminação da forma de pulsos, com vistas à aplicação na análise de amostras ambientais por espectrometria gama direta na região de energia baixa.

Apresentam-se as curvas de calibração, os ajustes do sistemas de discriminação da forma de pulsos, as medidas da resolução e da homogeneidade do detector, a avaliação da capacidade de redução da radiação de fundo e a eficiência para detecção de ^{210}Pb em fontes preparadas por evaporação.

Os resultados obtidos mostraram a potencialidade da aplicação dos detectores phoswich na análise de amostras ambientais devido à alta eficiência e boas condições de geometria de medida.

A B S T R A C T

CONTRIBUTIONS FOR THE APPLICATION OF A PHOSWICH DETECTOR ON THE ANALYSIS OF ENVIRONMENTAL SAMPLES

Leonardo Dalaqua Junior

The characteristics of a phoswich detector and the parameters of the pulse shape discrimination system are evaluated aiming the application on environmental analysis by direct low level gamma ray spectrometry.

The calibration curves and adjustments for the pulse discrimination, detector resolution and homogeneity measurements are presented. Background reduction and the ^{210}Pb detection efficiency on evaporated sources are evaluated.

The results obtained demonstrates the application potentiality on the analysis of environmental samples due to a high detection efficiency and good geometry conditions to the measurements.

LISTA DE FIGURAS

- II.1 - Coeficientes de atenuação de massa para o cristal de NaI(Tl).
- II.2 - Regiões de predominância dos processos de interação da radiação com a matéria.
- II.3 - Espectro teórico da deposição de energia por efeito fotoelétrico.
- II.4 - Representação esquemática do espalhamento Compton.
- II.5 - Espectro da distribuição energética dos elétrons para uma dada energia dos fótons incidentes.
- II.6 - Espectro típico da radiação freamento (Bremsstrahlung).
- II.7 - Representação esquemática das bandas de energia em um cristal.
- II.8 - Representação esquemática dos níveis de energia criados em um cristal ativado.
- II.9 - Representação da técnica de cruzamento do nível zero.
- II.10 - Representação da técnica de fração constante do pulso.
- III.1 - Curvas de calibração canal versus energia.
- III.2 - Curvas de calibração de amplificação versus canal.
- III.3 - Diagrama de blocos da montagem para obtenção do espectro da distribuição dos tempos de decaimento das cintilações.
- III.4 - Espectros dos tempos de decaimento das cintilações do detector phoswich.
- III.5 - Diagrama de blocos da montagem utilizadas para determinação do tempo de atraso e ajuste das coincidências.

- III.6 - Diagrama de blocos da montagem utilizada para espectrometria.
- III.7 - Espectros da radiação de fundo
- III.8 - Espectro dos raios-X e gama do ^{241}Am .
- III.9 - Espectro dos raios-X do ^{239}Pu
- III.10 - Espectro dos raios-X do ^{210}Pb
- III.11 - Espectro dos raios-X do ^{131}I
- III.12 - Espectro dos raios-X e γ do ^{137}Cs .
- III.13 - Posições de medida da eficiência relativa sobre a superfície do detector.
- III.14 - Espectro dos raios-X do ^{137}Cs em duas posições do detector.

LISTA DE TABELAS

- III.1 - Fontes de radiação utilizadas para levantamento das curvas de calibração.
- III.2 - Posição do pico para várias energias e amplificação no espectro do NaI(Tl).
- III.3 - Posição do pico para várias energias e ampliações no espectro de CsI(Tl).
- III.4 - Contagens registradas em coincidência em função do tempo de atraso.
- III.5 - Eficiência relativa de detecção sobre a superfície do detector.
- III.6 - Variação da eficiência relativa com o diâmetro das fontes planas de ^{210}Pb .
- III.7 - Resolução do cristal de NaI(Tl) do detector phoswich para várias energias.

Í N D I C E

	Pag.
CAPÍTULO I	
Introdução.....	01
CAPÍTULO II	
Aspectos Teóricos	
II.1. Interação de Radiação Eletromagnética com a Matéria....	06
II.1.1. Efeito Fotoelétrico.....	10
II.1.2. Espalhamento Compton.....	12
II.1.3. Produção de Pares.....	14
II.2. Radiação de Freamento.....	15
II.3. Mecanismo de Cintilação.....	16
II.4. Análise do Tempo do Decaimento das Cintilações.....	20
CAPÍTULO III	
Desenvolvimento	
III.1. Detector e Arranjo Experimental.....	24
III.2. Curvas de Calibração.....	25
III.3. Distribuição dos Tempos de Decaimento das Cintilações..	28
III.4. Avaliação da Capacidade de Descriminação do Analisa- dor de Forma de Pulsos.....	32
III.5. Ajuste das Condições de Coincidência.....	35
III.6. Discriminação da Radiação de Fundo.....	38
III.7. Espectros de Emissores de Radiação Gama de Energia Baixa.....	40

	Pag.
III.8. Homogeneidade do Detector.....	42
III.9. Variação do Diâmetro de Fontes Planas.....	51
III.10. Medida da Resolução do Detector.....	52
III.11. Medida da Eficiência de Detecção para o ²¹⁰Pb.....	54
 CAPÍTULO IV	
Discussão dos Resultados.....	55
 CAPÍTULO V	
Conclusão.....	59
REFERÊNCIAS.....	60

CAPÍTULO I

INTRODUÇÃO

A disseminação do uso da energia nuclear e de radioisótopos nas diversas áreas das atividades humanas, bem como a presença de minérios radioativos naturais faz com que seja necessário o conhecimento das interações desses materiais com o meio ambiente⁽²⁰⁾ e seus efeitos sobre o homem. Uma técnica analítica eficiente e amplamente utilizada nesse sentido é a espectrometria das radiações gama, que permite identificar e quantificar a presença de radionuclídeos.

Particularmente, a área de monitoração ambiental envolve geralmente níveis baixos de radioatividade o que dificulta as análises.

No caso da necessidade da detecção de radionuclídeos emissores de radiações gama de energia baixa, tipicamente menores que 300 keV, surge um outro problema associado à radiação de fundo, que é a presença de radionuclídeos emissores de radiações de energias mais altas. O espalhamento Compton e a radiação de freamento (Bremsstrahlung) provocados pelas radiações mais energéticas elevam a radiação de fundo na região de energia baixa e dificultam a interpretação dos espectros de deposição de energia baixa.

Os detectores geralmente empregados para espectrometria gama na região de energia menor do que 300 keV, foram avaliados por Israel⁽²¹⁾, por meio de um estudo comparativo envolvendo cristais e outras de NaI(Tl) pouco espesso, contadores proporcionais e detectores de Si(Li).

As dificuldades na identificação e quantificação nessa região de energia requerem soluções como tempos de contagens lon

gcs, detectores sensíveis à radiações de energia baixa e, na maioria dos casos, técnicas de concentração e preparação de amostras⁽²⁷⁾ que permitam melhorar as condições de análise.

Um radionuclídeo presente no ambiente que apresenta dificuldades para detecção é o isótopo do chumbo de número de massa 210, produto de decaimento da série do ^{238}U .

O ^{210}Pb é depositado nos solos a partir do decaimento do ^{222}Rn que, por ser gasoso, se espalha na atmosfera. Um dos produtos do decaimento do ^{210}Pb é o ^{210}Po , que é bem absorvido em certos vegetais, como o fumo, sendo introduzido na cadeia alimentar de homem⁽¹¹⁾. Dessa forma é importante conhecer as concentrações do ^{210}Pb no ambiente para poder associar o risco ao ser humano.

Uma outra área onde os níveis de atividade são baixos e há a necessidade de identificação e quantificação de radionuclídeos emissores de radiações X ou gama de energia baixa, como ^{210}Pb , ^{239}Pu e ^{241}Am , é a detecção desses radionuclídeos depositados internamente no corpo humano.

Nessa área existem estudos envolvendo detectores sensíveis à radiações de energia baixa, como os cristais pouco espessos de $\text{NaI}(\text{Tl})$ ^{31,38}, contadores proporcionais^(9,10,13,31), detectores de Germânio hiperpuro⁽⁴⁾ e $\text{Si}(\text{Li})$ ^(19,25,30), bem como estudos comparativos entre os mesmos^(2,5,37) e avaliação das tendências de desenvolvimento⁽⁶⁾.

No trabalho de Clemente e Della Site⁽⁷⁾ foi apresentado um levantamento extenso das técnicas utilizadas para detecção de radionuclídeos depositados internamente ao corpo humano e das dificuldades associadas à sua determinação.

Laurer e Eisenbud⁽²⁴⁾ utilizam um detector que consiste de uma cristal cintilador pouco espesso acoplado a outro, de maior

espessura, vistos por um único tubo fotomultiplicador.

Esse tipo de detector recebeu o nome de phoswich, proveniente de "phosphorous sandwich"⁽²³⁾, ganhando boa aceitação em contadores de corpo inteiro^(14,16,29,36,41,42) devido à sua capacidade de reduzir a interferência das radiações de energia alta na região de energia baixa.

Além disso os cintilantes utilizados, geralmente NaI(Tl) e CsI(Tl), são disponíveis em dimensões grandes⁽³⁾ favorecendo as condições de geometria da medida.

O princípio de operação desses detectores é que as radiações gama de energia mais baixas tendem a interagir com o primeiro cristal, de menor espessura, enquanto que as radiações mais energéticas tendem a depositar sua energia no segundo cristal, mais espesso.

Pode-se identificar o cristal onde houve a deposição de energia por meio da análise dos tempos de decaimento das cintilações visto que estes são característicos do cintilador.

Utilizando-se sistemas de medidas em coincidência pode-se rejeitar os sinais que tenham tempo de decaimento da cintilação característico do cristal mais espesso e registrar somente o espectro de deposição de energia baixa no cristal de menor espessura.

Mesmo com esse tipo de detector, existem alguns problemas inerentes à detecção de radionuclídeos depositados internamente ao corpo humano, como:

- a atenuação sofrida pelas radiações de energia baixa nos tecidos de corpo;
- a incerteza da homogeneidade da distribuição dos radionuclídeos nos órgãos;

- a condição de geometria de medida desfavorável e,
- a radiação de fundo inerente ao corpo humano.

Tendo por base os problemas citados e os resultados publicados sobre o emprego de detectores phoswich na área de dosimetria de corpo inteiro e em radioastronomia^(17 '6) e, considerando-se que ao trabalhar com amostras preparadas em laboratório a maioria desses problemas pode ser evitada, decidiu-se avaliar as características de um detector phoswich acoplado a um sistema de análise da forma dos pulsos, para aplicação na análise de amostras ambientais.

Desta forma, neste trabalho procurou-se determinar as condições operacionais do sistema de análises dos tempos de decaimento das cintilações bem como as características do detector com relação a:

- resposta às radiações de energia baixa,
- capacidade do mesmo na redução da interferência da radiação de fundo de energias mais altas,
- resolução,
- homogeneidade ao longo da sua superfície,
- diâmetro mais favorável para fontes planas e,
- eficiência de detecção para os fótons de 46,5 keV do ²¹⁰Pb.

Nos capítulos seguintes estão apresentados os aspectos teóricos relevantes para o desenvolvimento deste trabalho, o desenvolvimento experimental efetuado, a discussão dos resultados obtidos e a conclusão.

As equações, tabelas e figuras estão numeradas de forma sequencial em cada capítulo, sendo que o algarismo romano identifica o capítulo enquanto que o algarismo arábico identifica o número sequencial.

C A P Í T U L O II

ASPECTOS TEÓRICOS

A primeira condição para detecção das radiações é que estas devem interagir com o meio detector e, nessa interação, transferir sua energia para o meio.

Os produtos da interação devem ser detectados através de alguma modificação no próprio meio detector ou, em alguns casos em um meio associado à ele.

A perda de energia da radiação é, aproximadamente, independente das propriedades químicas do meio pois depende somente da composição atômica deste.

Por outro lado, a detecção dos íons ou dos estados excitados produzidos pela interação da radiação com o meio, depende das propriedades do mesmo.

Dessa forma, a escolha de um meio detector bem como sua aplicação em espectroscopia, dependem do conhecimento dos modos de interação da radiação com a matéria e dos efeitos que ela produz.

II.1 Interação da Radiação Eletromagnética com a Matéria

Ao contrário das partículas carregadas que, ao incidirem em um meio transferem continuamente sua energia para ele, as radiações eletromagnéticas interagem transferindo uma parte ou toda sua energia em eventos discretos.

Assim, para um feixe de fótons com intensidade de I

fótons por intervalo de tempo, a fração destes que interage com o meio é proporcional à espessura Δx percorrida.

$$\frac{\Delta I}{I} \propto \Delta x \quad \text{II.1}$$

A constante de proporcionalidade é chamada de coeficiente de atenuação linear, μ , característica de cada material absorvedor e dependente da energia da radiação.

Dessa forma a expressão II.1 é expressa por:

$$-\frac{\Delta I}{I} = \mu \cdot \Delta x \quad \text{II.2}$$

onde μ é expresso em $[\text{comp}]^{-1}$.

Admitindo-se um feixe incidente monoenergético e o meio absorvedor homogêneo, pode-se integrar a expressão II.2 obtendo-se:

$$I = I_0 \cdot e^{-\mu x} \quad \text{II.3}$$

onde I_0 representa a intensidade do feixe antes da interação com o meio e, I a intensidade do mesmo feixe após percorrer a distância x de material absorvedor.

No intervalo compreendido entre 10 keV e 10 MeV, ocorrem, de forma predominante, tres processos de interação da radiação eletromagnética com a materia:

- efeito fotoelétrico,
- espalhamento Compton e,
- produção de pares.

Como esses processos são independentes entre si, o coeficiente de atenuação linear, μ , corresponde à soma dos coeficiente de atenuação linear de cada um dos processos citados, ou seja:

$$\mu = \tau + \sigma + K \quad \text{II.4}$$

onde τ , σ e K correspondem ao coeficiente de atenuação linear do efeito fotoelétrico, do espalhamento Compton e da produção de pares, respectivamente.

A figura II.1 mostra uma curva dos coeficientes de absorção linear citados, para o cristal de NaI(Tl), divididos pela densidade, ρ , do mesmo. Esse valor, μ/ρ , é chamado de coeficiente de atenuação de massa e independe do estado de agregação do material

Cada um dos coeficientes de atenuação varia também com o número atômico do material observado sendo que, para um dado meio, em algumas regiões de energia existe o predomínio de um processo sobre os outros, conforme mostrado na figura II.2.

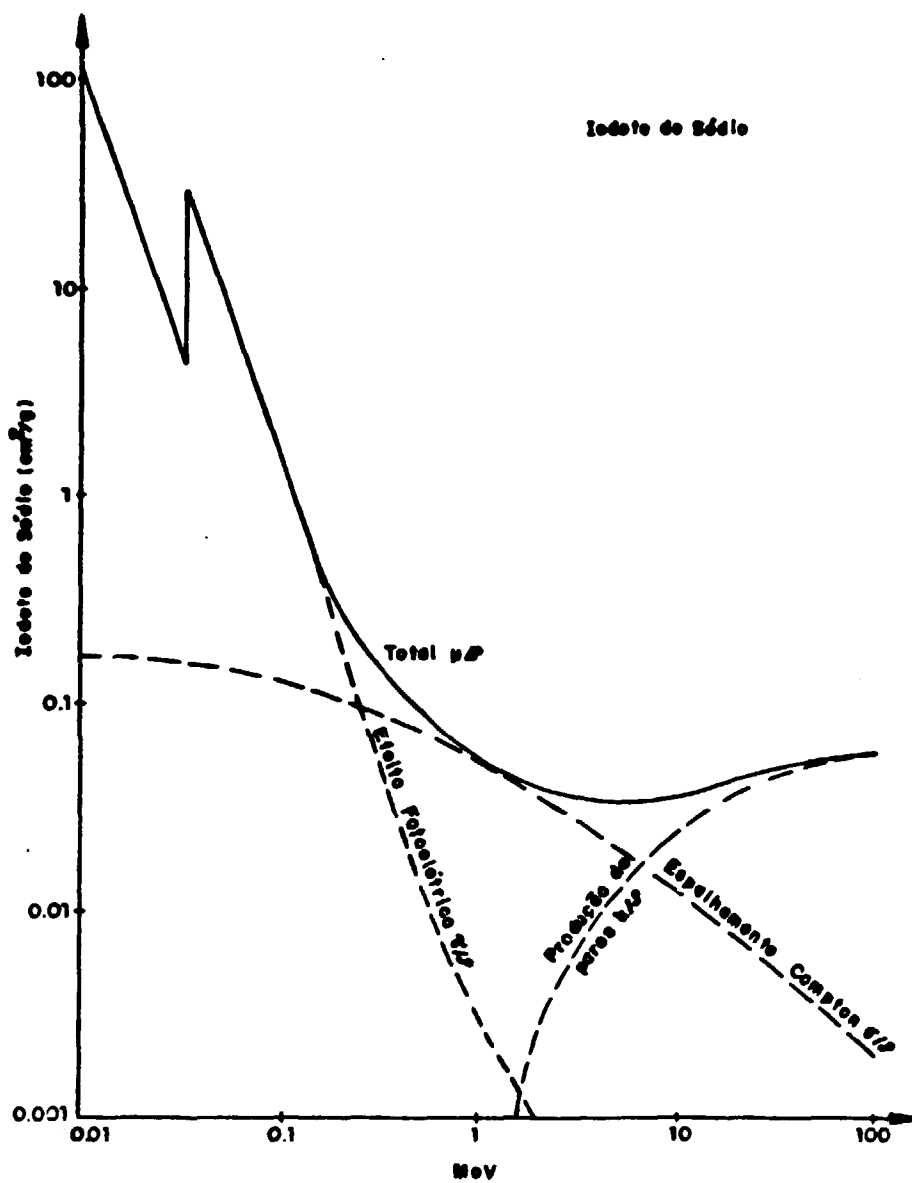


Figura II.1 - Coeficientes de atenuação de massa para o cristal de NaI(Tl).

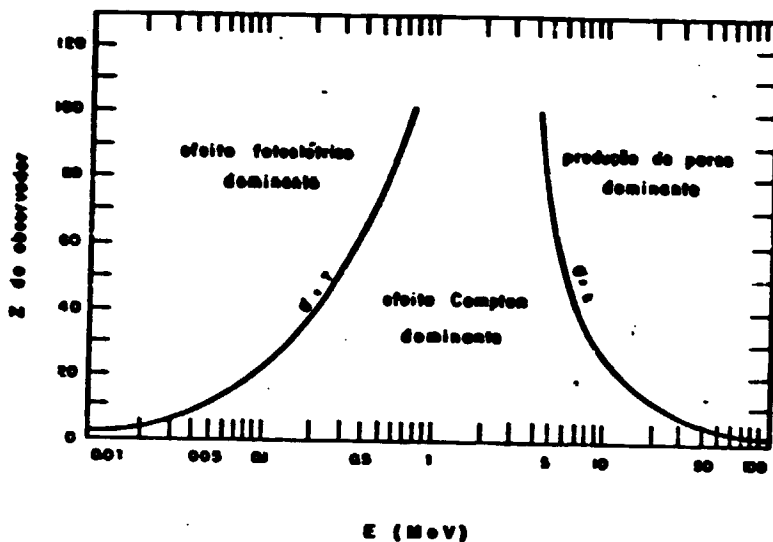


Figura II.2 - Regiões de predominância dos processos de interação da radiação com a matéria ⁽²³⁾.

Assim, na região de energia baixa ocorrem de forma predominante as interações por efeitos fotoelétrico.

Em uma região de energia intermediária, entre algumas centenas de keV e 5 a 10 MeV ⁽²³⁾, predomina o espalhamento Compton, sendo que para energias superiores a 1,022 MeV manifesta-se o processo de interação por produção de pares.

A seguir apresenta-se uma descrição dos tres processos citados de interação da radiação eletromagnéticas com a matéria.

II.1.1 - EFEITO FOTOELÉTRICO

O efeito fotoelétrico é o processo onde o fóton incidente transfere praticamente toda a sua energia para um elétron, ligado ao núcleo, do material absorvedor.

Uma fração pequena da energia do fóton é transferida para o núcleo como energia de recuo.

A energia cinética, E_c , do elétron ejetado é dada por:

$$E_c = h\nu_0 - b_e$$

onde $h\nu_0$ é a energia do fóton incidente e b_e é a energia de ligação do elétron.

A energia de recuo do núcleo é praticamente desprezível devido à sua massa elevada.

O efeito fotoelétrico ocorre predominantemente com elétrons da camada K ou L do átomo e, os elétrons mais externos deslocam-se para preencher a vacância deixada pelo elétron ejetado.

A diferença de energia entre os níveis eletrônicos aparece sob a forma de raios X ou de elétrons Auger.

Os elétrons Auger percorrem distâncias relativamente curtas no meio e são facilmente absorvidos mas, ao contrário, os raios X apresentam certa probabilidade de não interagir novamente com o meio, devido à natureza probabilística da interação.

Assim, existe a probabilidade do raio X produzido escapar do meio absorvedor. Essa probabilidade é maior quando a energia dos fótons incidentes é baixa pois a interação destes ocorre próximo à superfície do absorvedor.

Em termos de espectroscopia, pode-se observar nos espectros de deposição de energia menores do que 200 keV⁽¹⁸⁾ picos de absorção com energia menor do que o pico de absorção total de energia, também chamado de fotopico.

Essa defasagem deve-se ao escape dos raios X, mencionada anteriormente, que impede a deposição total da energia no meio absorvedor.

Para energias superiores a 200 keV as interações tendem a ocorrer em uma região mais distante da superfície do absorvedor devido ao maior poder de penetração da radiação.

Esse fato minimiza o escape dos raios X e permite a absorção total da energia do fóton incidente.

Teoricamente o espectro de deposição de energia por efeito fotoelétrico pode ser representado por:

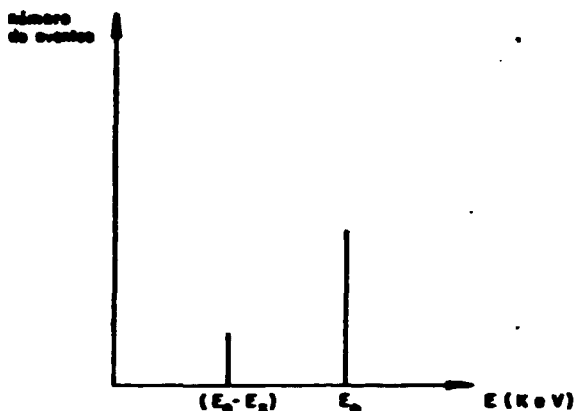


Figura II.3 - Espectro teórico da deposição de energia por efeito fotoelétrico.

Na figura II.3 E_0 corresponde à energia do fóton incidente e E_x à energia dos raios X produzidos.

II.1.2 - ESPALHAMENTO COMPTON

O espalhamento Compton é o resultado de uma colisão entre o fóton incidente e um elétron fracamente ligado ao núcleo do átomo.

O processo é tratado como uma colisão elástica entre um fóton e um elétron livre, onde há conservação de energia e momento.

Para haver conservação do momento o elétron deve absorver um momento igual à diferença vetorial entre os momentos do fóton incidente e espalhado.

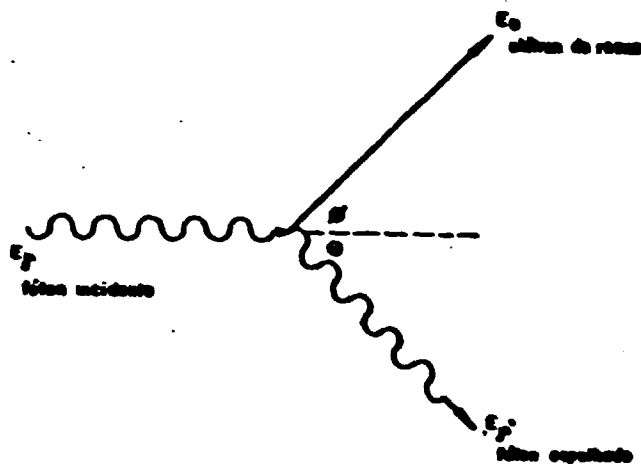


Figura II.4 - Representação esquemática do espalhamento Compton.

As expressões a seguir expressam a energia do fóton espalhado em função da energia do fóton incidente e do ângulo de espalhamento (expressão II.6) e a energia do elétron de recuo em função dos mesmos parâmetros (expressão II.7).

$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + E_0(1 - \cos \theta)} \quad \text{II.6}$$

$$E_e = E_\gamma - E'_\gamma \quad \text{II.7}$$

com

$$E_0 = \frac{E_\gamma}{m_0 c^2} \quad \text{II.8}$$

onde $m_0 c^2$ corresponde à energia de repouso do elétron.

Pode-se notar que quanto maior o ângulo de espalhamento, θ , maior a quantidade de energia transferida do fóton para o elétron.

A seção de choque para ocorrência do espalhamento Compton varia com a energia do fóton incidente e com o ângulo de espalhamento. Integrando-se a seção de choque sobre todos os ângu-

los de espalhamento para uma dada energia de fótons incidentes, obtém-se o espectro teórico da distribuição de energia dos elétrons de recuo, mostrada na figura II.5.

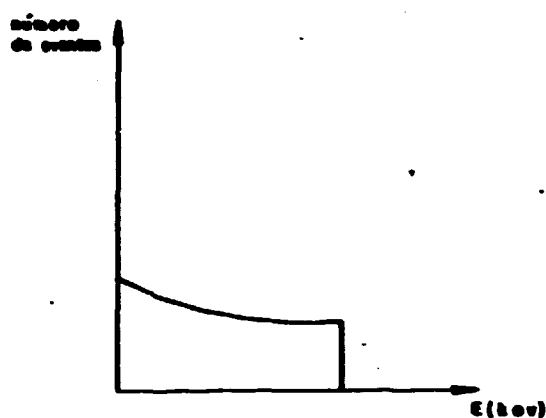


Figura II.5 - Espectro teórico da distribuição energética dos elétrons para uma dada energia dos fótons incidentes.

II.1.3 - PRODUÇÃO DE PARES

Para fótons incidentes com energia superior a $2m_0c^2$, também chamada de energia de limiar, onde m_0c^2 é a energia de repouso do elétron, o processo de produção de pares passa a competir com os processos de interação por espalhamento Compton e efeito fotoelétrico.

O processo de produção de pares consiste na criação de um par pósitron-elétron quando a radiação incidente interage com o campo nuclear dos elementos constituintes do meio absorvedor.

A diferença de energia do fóton incidente e a energia de limiar é distribuída como energia cinética entre o pósitron e o elétron.

O pósitron criado, após a perda de sua energia cinética pode interagir com um elétron do meio absorvedor num proces-

so de aniquilação dos mesmos. Esse processo dá origem a dois fótons com $0,511 \text{ MeV}$ ($m_0 c^2$) cada, emitidos na mesma direção e em sentidos opostos.

Estes, podem interagir com o meio absorvedor por espalhamento Compton ou efeito fotoelétrico. Pode ainda haver escape, de um ou dos dois fótons, do meio absorvedor sem que ocorra interação.

Dessa forma observa-se nos espectros de deposição de energias superiores a $1,022 \text{ MeV}$, picos de absorção defasados em $0,511 \text{ MeV}$ e $1,022 \text{ MeV}$ do pico de absorção total. Essa defasagem corresponde ao escape de um ou dos dois fótons gerados.

II.2 - RADIAÇÃO DE FREAMENTO

Em termos de espectroscopia a radiação eletromagnética é detectada transferindo sua energia para os elétrons do meio absorvedor.

As partículas carregadas, como os elétrons, ao interagirem com o meio absorvedor dissipam sua energia principalmente por ionização e excitação de átomos ou moléculas.

Uma fração da energia das partículas carregadas pode ser perdida também por emissão de radiação. Esse processo é chamado de Bremsstrahlung ou radiação de freamento.

A perda de energia cinética das partículas carregadas se dá por desaceleração dos mesmos no campo coulombiano do núcleo e, a energia cinética perdida é convertida em radiação eletromagnética emitida sob a forma de raios X.

A energia dos raios X produzidos estende-se desde zero até a energia cinética inicial da partícula carregada, de forma

contínua.

A principal fonte de Bremsstrahlung é o elétron pois a probabilidade de ocorrência desse processo de perda de energia decresce com o quadrado da massa da partícula carregada.

Assim, os isótopos emissores de partículas β^- e mesmo os elétrons liberados na interação da radiação eletromagnética com o meio absorvedor, constituem uma fonte significativa de Bremsstrahlung nos espectros de deposição de energia.

A figura II.6 mostra o espectro típico correspondente à distribuição de energia dos raios X produzidos pelo freamento de partículas carregadas no meio absorvedor, onde E_{max} corresponde à energia inicial da partícula carregada.

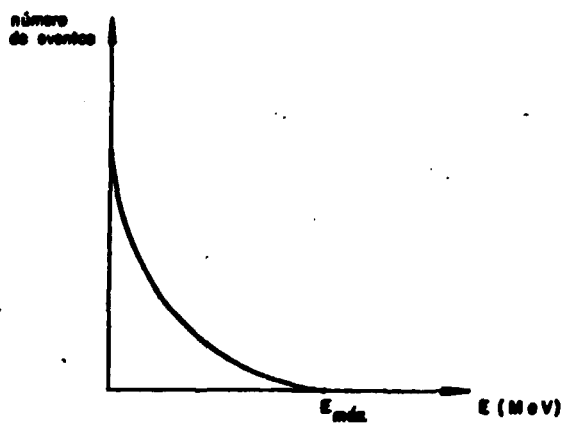


Figura II.6 - Espectro típico da radiação de freamento (Bremsstrahlung)

II.3 - MECANISMO DE CINTILAÇÃO

Alguns materiais, excitados pela absorção da energia das radiações eletromagnéticas, sofrem um processo de desexcitação por emissão de luz.

A esse processo é dado o nome de cintilação e os materiais que apresentam essas propriedades são amplamente empregados como detectores de radiação.

Entre os cintiladores, os cristais inorgânicos de NaI(Tl) e CsI(Tl) são aqueles que ganharam maior aplicação desde o seu desenvolvimento.

Os mecanismos da cintilação em cristais inorgânicos são tão relacionados com os estados de energia determinados pela rede cristalina do material.

Em um material isolante ou semicondutor os elétrons podem ocupar determinadas bandas de energia, que podem ser representadas conforme mostrado na figura II.7

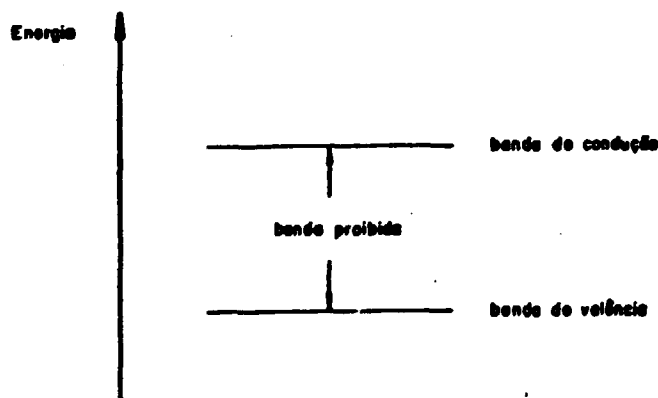


Figura II.7 - Representação esquemática das bandas de energia em um cristal.

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 em que os elétrons não podem ocupar no cristal puro.

Ao absorver energia os elétrons podem ser promovidos da banda de valência para a banda de condução e, no retorno ao estado fundamental parte dessa energia é absorvida como energia térmica ou vibracional da rede cristalina e parte é emitida sob a forma de luz.

Entretanto, devido à diferença de energia relativamente alta entre as bandas, os cristais puros são de importância prática limitada.

Além da diferença de energia, os espectros de absorção e emissão de energia dos cristais puros são muito próximos, o que provoca a absorção da própria energia emitida, impondo uma restrição à sua aplicação como detectores.

A adição de pequenas quantidades de impurezas, chamadas ativadores, aos cristais puros cria bandas adicionais de energia que permitem transições eletrônicas dentro do intervalo proibido.

Dessa forma os elétrons excitados podem sofrer desexcitação através dos estados de energia criados pelo ativador, mostrados na figura II.8, o que leva a espectros de emissão e de absorção de energia diferentes entre si e permite a utilização do cristal como detector.

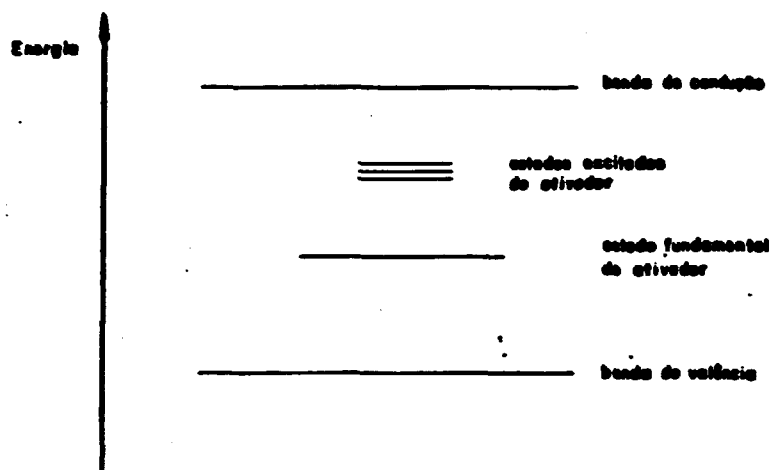


Figura II.8 - Representação esquemática dos níveis de energia criados em um cristal ativado.

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 pares elétron-vacância na estrutura cristalina.

A vacância pode difundir até uma posição do ativador e ionizá-lo, pois o potencial de ionização do mesmo é escolhido de forma a ser menor que o potencial da vacância na rede cristalina.

O elétron, por sua vez, pode interagir com um ativador ionizado criando uma configuração neutra que possui seus próprios estados excitados. Esses estados excitados tem valores de meia vida que variam entre 10^{-6} e 10^{-9} segundos.

Como o tempo de migração dos elétrons na rede cristalina é menor do que este, as configurações excitadas do ativador formam-se praticamente ao mesmo tempo e o tempo de desexcitação, τ , determina o tempo de decaimento do estado excitado, ou seja, o tempo de decaimento da cintilação.

A intensidade, I_0 , da luz produzida na cintilação decresce exponencialmente em função do tempo.

Embora tenha-se observado comportamentos mais complexos⁽²³⁾, o decaimento da intensidade luminosa pode ser representado por uma exponencial simples:

$$I = I_0 \times e^{-t/\tau} \quad \text{II.9}$$

onde:

I = intensidade da cintilação no tempo t , em segundos e,

τ = tempo de meia-vida da cintilação em s^{-1} .

O comportamento mais complexo, que corresponde a uma combinação de exponenciais, deve-se a processos de desexcitação mais rápidos ou mais lentos do que aquele previsto pela equação II.9.

Apesar disso existe um tempo de desexcitação, τ , que predomina sobre os demais e caracteriza o cintilador.

II.4 - ANÁLISE DO TEMPO DE DECAIMENTO DAS CINTILAÇÕES

Através da medida do tempo de decaimento da cintilação pode-se identificar o cintilador onde ocorreu a cintilação.

Essa característica ganhou aplicação na utilização de dois cintiladores, com tempos de decaimento suficientemente distintos para permitir sua diferenciação, formando um único detector.

Através da escolha adequada dos dois cintiladores e de suas espessuras, pode-se utilizar a técnica de análise dos tempos de decaimento das cintilações para distinguir radiações que tenham poder de penetração diferentes.

Nesse sentido encontra-se o trabalho de Winyard e outros⁽⁴³⁾ utilizando cintiladores orgânicos e inorgânicos em campos mistos de radiação, para distinguir:

- radiações gama de neutrons,
- partículas α de prótons,
- radiação γ de partículas α e,
- partículas α de radiações γ e prótons.

Laurer e Eisenbud⁽²⁴⁾ utilizaram a técnica de discriminação da forma dos pulsos em um detector phoswich para diferenciar radiações gama com diferentes poderes de penetração.

Entre as maneiras de distinguir os tempos de decaimento das cintilações pode-se citar também aquelas utilizadas por Berger e outros⁽⁵⁾, Malkar e Kunte⁽²⁵⁾ e Shoffner⁽³⁹⁾.

Essas montagens utilizam a técnica de medir o tempo gasto por um pulso bipolar proveniente do amplificador, para cruzar o nível zero conforme mostrado na figura II.9

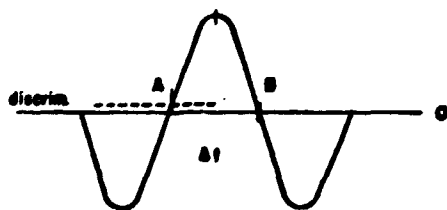


Figura II.9 - Representação da técnica de cruzamento do nível zero.

A técnica consiste em posicionar um discriminador ligeiramente acima do nível zero e outro que determine a passagem do pulso pelo nível zero, no momento da inversão da sua polaridade.

O primeiro discriminador é utilizado para acionar um conversor de tempo para amplitude de pulsos e o segundo é utilizado para desligá-lo.

O intervalo de tempo decorrido entre os sinais dos dois discriminadores é convertido em um pulso com amplitude proporcional ao intervalo.

Para distinguir cintilações com tempos de decaimento diferentes, utiliza-se um analisador monocanal que seleciona a amplitude dos pulsos correspondentes ao tempo de decaimento de interesse.

Outra forma de medir o tempo de decaimento das cintilações, é aquela utilizada por Lossner⁽²⁵⁾ e Schmitt e outros⁽³⁶⁾ através da medida de uma fração constante, entre 90% e 10%, da amplitude de um pulso unipolar.

Essa situação é ilustrada pela figura II.10.

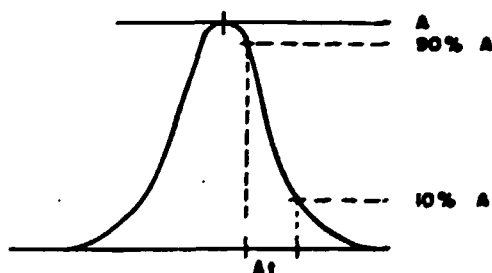


Figura II.10 - Representação esquemática da técnica de fração constante do pulso.

43.

O sinal do discriminador posicionado em 90% da amplitude de aciona um conversor de tempo para amplitude de pulso enquanto que o sinal do discriminador posicionado em 10% é utilizado para desliga-lo.

O intervalo de tempo entre os dois sinais é convertido em um pulso com amplitude proporcional ao tempo gasto.

Segundo Lossner⁽²⁵⁾ essa técnica apresenta um desempenho superior àquela descrita anteriormente, por estar menos sujeita às flutuações originadas na formação dos sinais a serem analisados.

CAPÍTULO III

DESENVOLVIMENTO

III.1 - DETECTOR E ARRANJO EXPERIMENTAL

O detector phoswich utilizado neste trabalho consiste de um cristal de NaI(Tl) com 0,15 cm de espessura acoplado opticamente a um cristal de Cs(Tl) com 5,00 cm de espessura, ambos com 14,00cm de diâmetro, vistos por um único tubo fotomultiplicador.

Os tempos de decaimento das cintilações dos cristais de NaI(Tl) e Cs(Tl), $0,25\mu\text{s}$ e $1,20\mu\text{s}$ respectivamente, são suficientemente distintos para permitir a discriminação através dos vários arranjos eletrônicos citados no capítulo II deste trabalho.

Os equipamentos utilizados no desenvolvimento deste trabalho foram:

- uma fonte de alta tensão conectada ao tubo fotomultiplicador;
- um pré-amplificador ORTEC 113;
- um amplificador ORTEC 460;
- um amplificador de linha de atraso ORTEC 427A, que permite um atraso dos sinais provenientes do amplificador sem alterar suas características;
- um analisador de forma de pulsos ORTEC 458, que faz a análise dos tempos de decaimento das cintilações.

Este equipamento opera com a técnica de medida do tempo gasto em uma fração constante, entre 90% e 10%, da amplitude dos pulsos unipolares provenientes do amplificador (ORTEC 460) e agrega duas funções simultaneamente. Essas duas funções são a de conversor de tempo em amplitude de pulso (TAC) e de analisador monocanal (SCA).

Através do TAC é possível obter o espectro da distribuição dos tempos de decaimento das cintilações em um analisador multicanal enquanto que, a função de analisador monocanal (SCA) permite selecionar os pulsos que possuam amplitude correspondente ao tempo de decaimento desejado.

Os sinais provenientes do amplificador são enviados para um analisador multicanal (AMC) para obtenção dos espectros de altura de pulsos. O AMC utilizado possui uma entrada de coincidência a fim de selecionar quais os sinais a serem analisados.

Os resultados são impressos em uma impressora do próprio analisador multicanal.

II.2 - CURVAS DE CALIBRAÇÃO

Uma das dificuldades iniciais encontradas na interpretação dos espectros obtidos com o detector phoswich foi o fato de que algumas energias intermediárias (aproximadamente 300 keV) interagem tanto com o cristal de NaI(Tl) quanto com o cristal de CsI(Tl), produzindo dois picos para uma mesma energia.

Os dois picos, em posições diferentes de espectro, devem-se à diferença no rendimento de luz por quantidade de energia depositada nos dois cristais.

Como o sinal processado depende da cintilação produzi-

da no detector e o cristal de NaI(Tl) apresenta rendimento de luz maior do que o cristal de CsI(Tl)⁽²³⁾, os picos correspondentes às interações no NaI(Tl) apresentam sempre uma amplitude maior do que os correspondentes no cristal de CsI(Tl).

Essa interpretação está baseada nas medidas efetuadas por Laurer e Eisenbud⁽²⁴⁾ trabalhando com um detector semelhante.

A confirmação foi efetuada utilizando-se as fontes de radiação mostrados na tabela III.1.

Radionuclídeo	Energia (keV)	cristal predominante
²⁴¹ Am	16 (raios X)	NaI(Tl)
	60 (raios γ)	NaI(Tl)
⁵¹ Cr	320	CsI(Tl)
¹³¹ I	30	NaI(Tl)
	80	NaI(Tl)
	364	CsI(Tl)
¹³⁷ Cs	32	NaI(Tl)
	662	CsI(Tl)

TABELA III.1 - Fontes de radiações utilizadas para levantamento das curvas de calibração.

Utilizando-se essas fontes levantou-se as curvas de canal versus energia para uma condição de amplificação constante e,

posteriormente curvas de amplificação versus canal para energia constante.

Os dados obtidos estão apresentados nas tabelas III.2 e III.3, cujas pontas foram ajustados pelo método dos mínimos quadrados.

Amplificação	Energia (keV)				
	16	30	32	60	80
600	210	360	385	710	945
700	227	415	445	800	1075
800	260	470	505	905	1225
900	280	535	575	1010	1385

> TABELA III.2.1 - Posição do pico para várias energias e amplificações no espectro de NaI(Tl).

Amplificação	Energia (keV)		
	320	364	662
600	745	840	1515
700	860	975	1725
800	980	1105	1970
900	1110	1265	-

TABELA III.3 - Posição do pico para várias energias e amplificação no espectro de CsI(Tl).

Com os dados apresentados foram traçadas as curvas de calibração mostradas nas figuras III.1 e III.2.

As curvas apresentadas foram obtidas utilizando-se fontes de radiações de mesma geometria e atividades próximas a fim de manter as mesmas condições de medida.

III.3 - DISTRIBUIÇÃO DOS TEMPOS DE DECAIMENTO DAS CINTILAÇÕES

O espectro do tempo de decaimento das cintilações do detector phoswich utilizado foi obtido no analisador multicanal, utilizando-se a saída linear do equipamento ORTEC 458, Pulse-Shape Analyzer, que corresponde ao conversor de tempo para amplitude de pulsos (TAC).

Para isso, utilizou-se a montagem apresentada na figura III.3.

Utilizou-se uma fonte de ^{137}Cs e de ^{210}Pb para obtenção dos espectros mostrados nas figuras III.4.a e III.4.b.

Utilizando-se a saída do analisador monocanal do ORTEC 458 Pulse-Shape Analyzer (SCA) em coincidência com a saída linear (TAC) é possível selecionar os pulsos provenientes do cristal de NaI(Tl) que correspondem às interações das radiações gama de energia baixa.

A região em destaque na figura III.4 mostra o posicionamento da janela do analisador monocanal (SCA) para essa finalidade.

Em todas as medidas efetuadas a janela do analisador monocanal foi ajustada para a seleção da região de interesse.

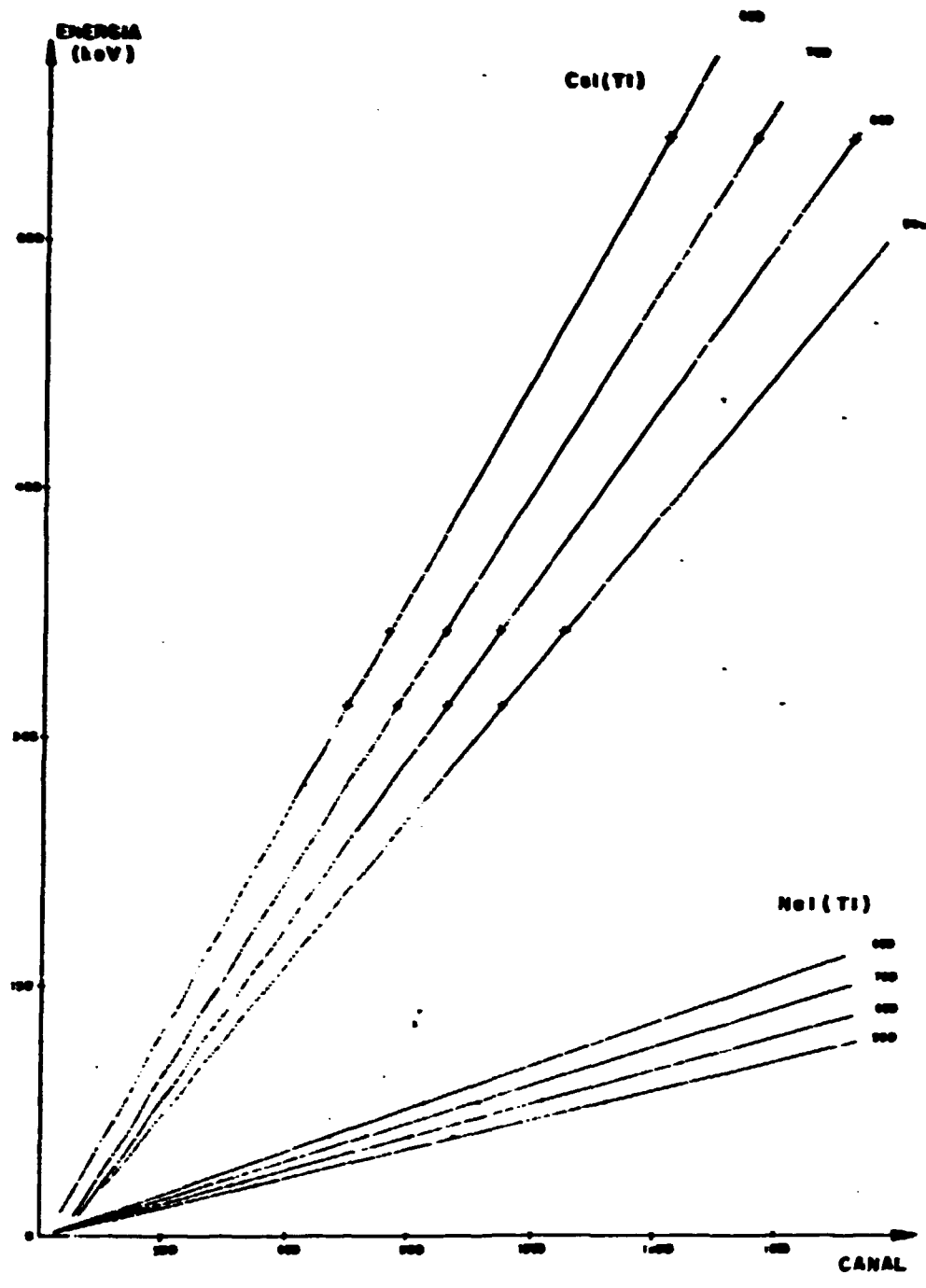


Figura III.1 - Curvas de calibração canal versus energia

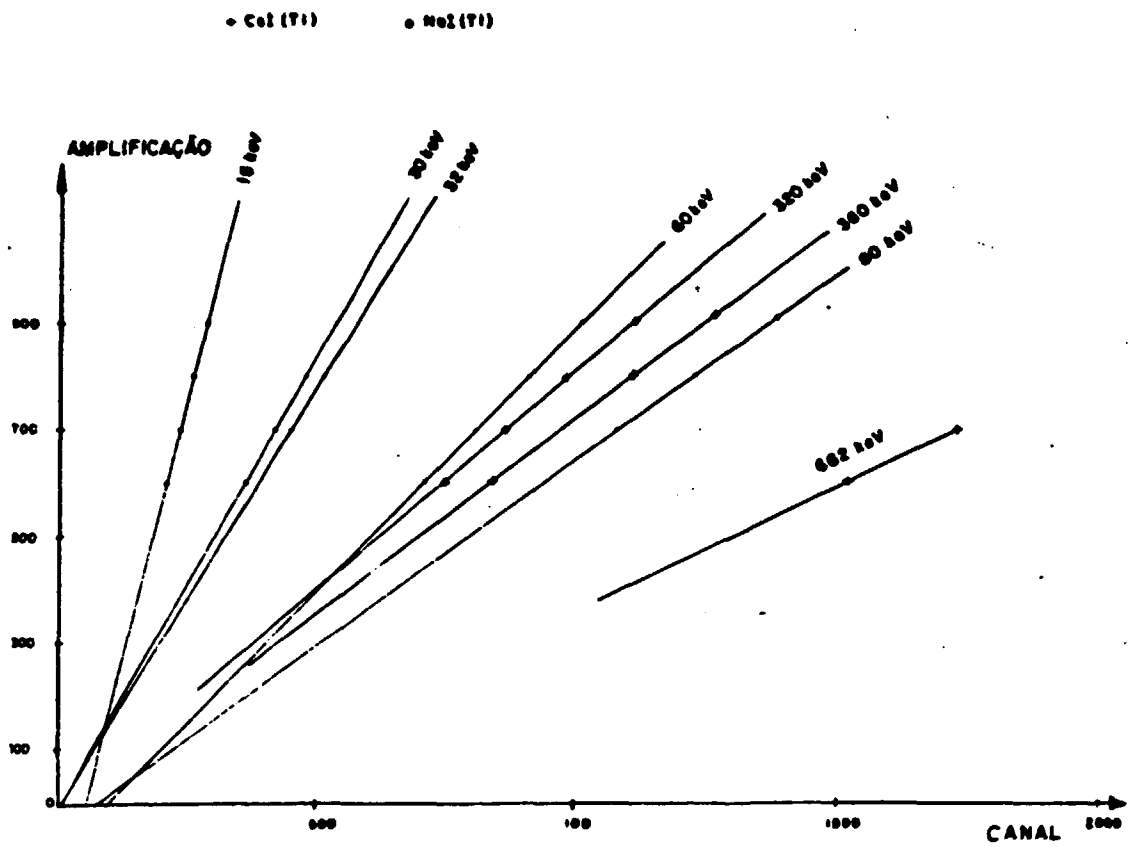


Figura III.2 - Curvas de calibração de amplificação versus canal.

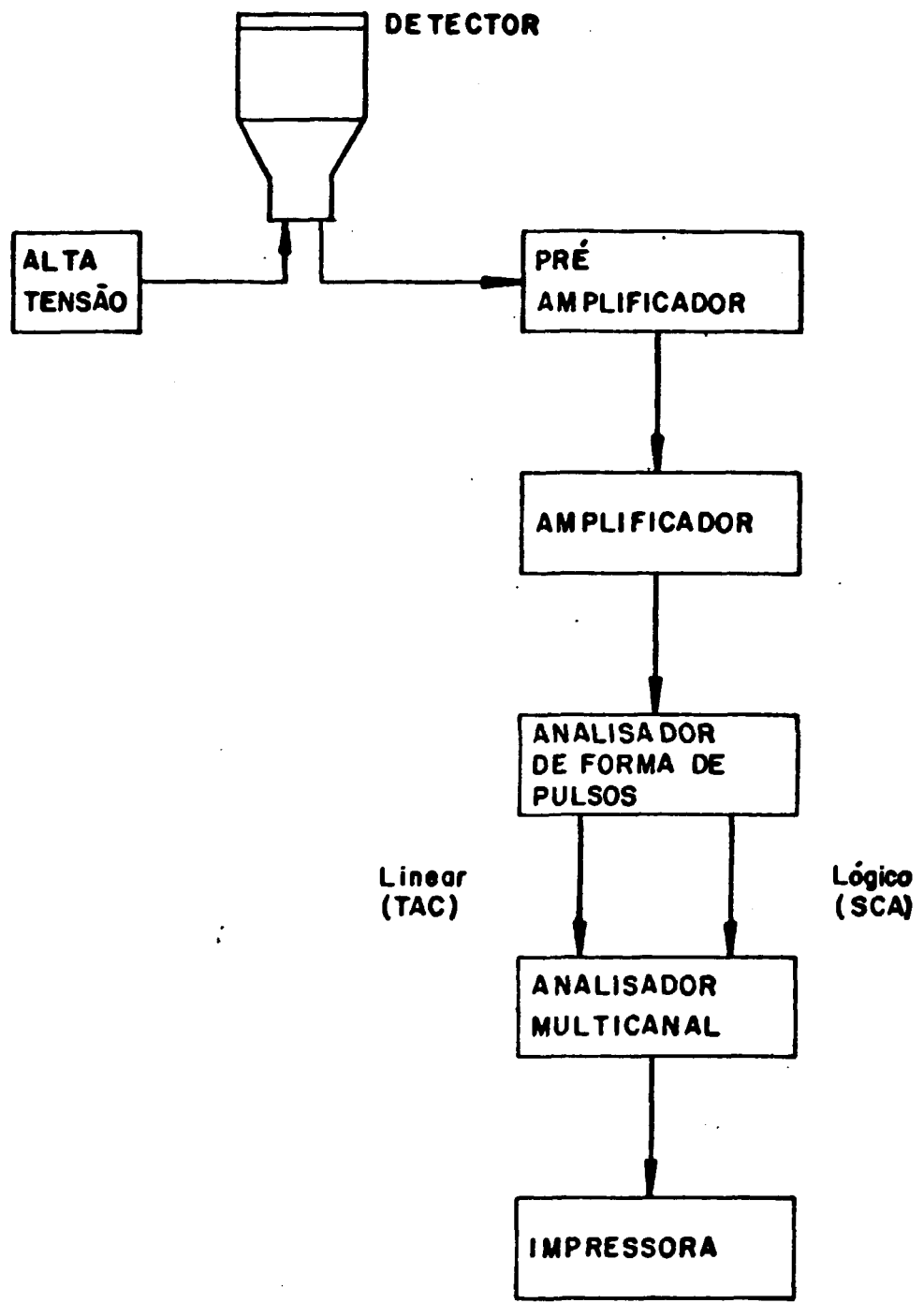


Figura III.3 - Diagrama de blocos da montagem para obtenção dos espectros da distribuição dos tempos de decaimento das cintilações.

III.4 - AVALIAÇÃO DA CAPACIDADE DE DISCRIMINAÇÃO DO ANALIZADOR DE FORMA DE PULSOS

A eficácia da técnica de discriminação da forma de pulsos, para permitir a redução da contribuição das radiações de energia alta na região de energia baixa, depende da capacidade do analisador de forma de pulsos diferenciar os sinais provenientes do NaI(Tl), tipicamente de energia baixa, daqueles provenientes do cristal de CsI(Tl).

Wingard, Lutkin e McBeth⁽⁴³⁾ definem uma figura de mérito ($M_{a,b}$) que permite avaliar essa capacidade.

$$M_{a,b} = \frac{T}{t_a + t_b}$$

onde:

- T é a distância entre as centróides dos picos de distribuição de tempo;
- t_a e t_b correspondem aos valores de largura à meia altura dos picos de distribuição de tempo.

O cálculo de ($M_{a,b}$) com base na figura III.4.a e III.4.b apresentam valores de 1,31 e de 1,50 para as fontes de ^{137}Cs e ^{210}Pb , respectivamente, o que permite uma boa discriminação eletrônica dos sinais⁽⁴³⁾.

É importante notar que a grandeza da figura de mérito está condicionada à razão entre as intensidades das radiações de energia alta e baixa como demonstram os valores obtidos e, também à atividade da fonte de radiações.

A relação entre as intensidades das radiações de energia alta e baixa sofre uma limitação pelo próprio analisador de

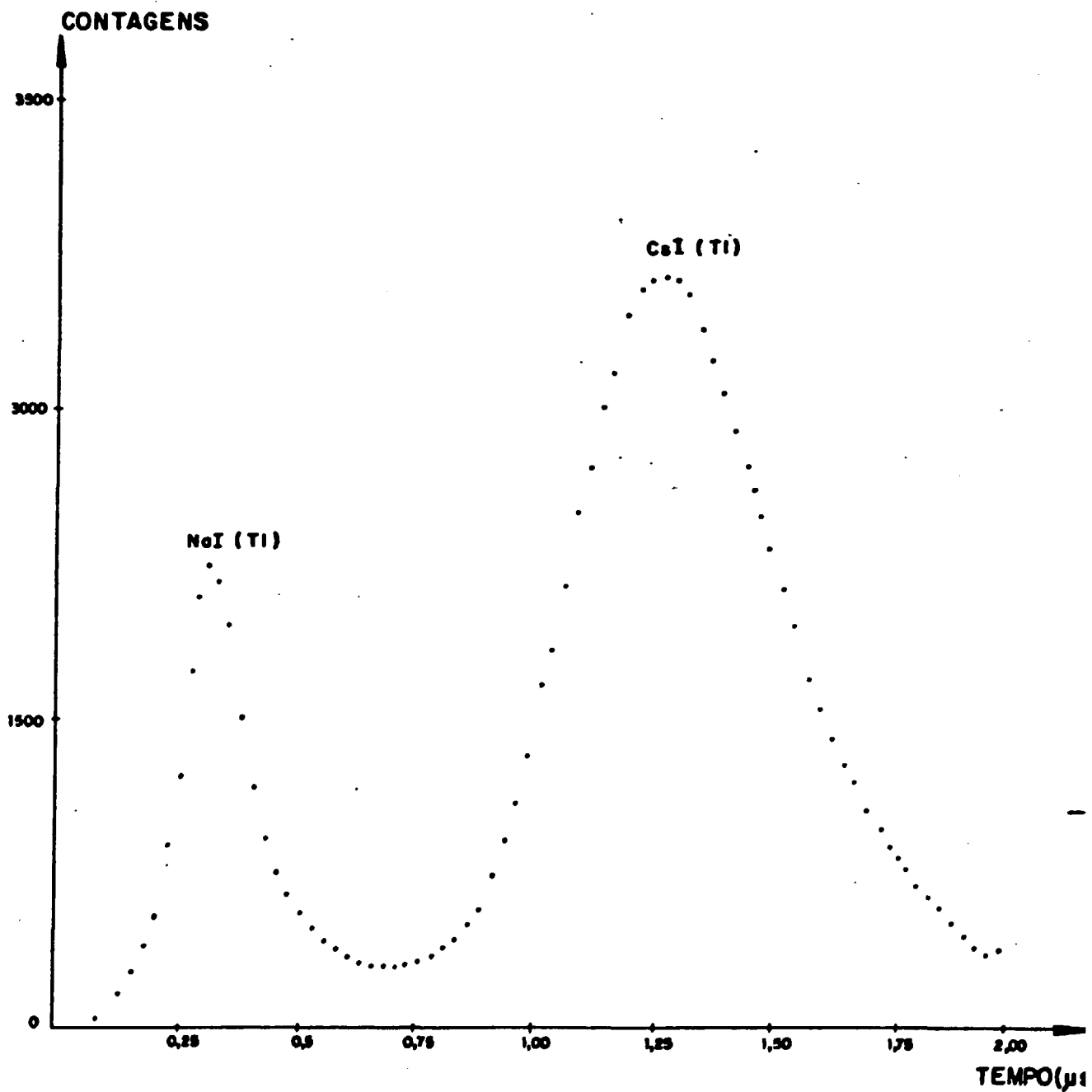


Figura III.4.a - Espectro dos tempos de decaimento das cintilações do detector phoswich utilizando fonte de ^{137}Cs .

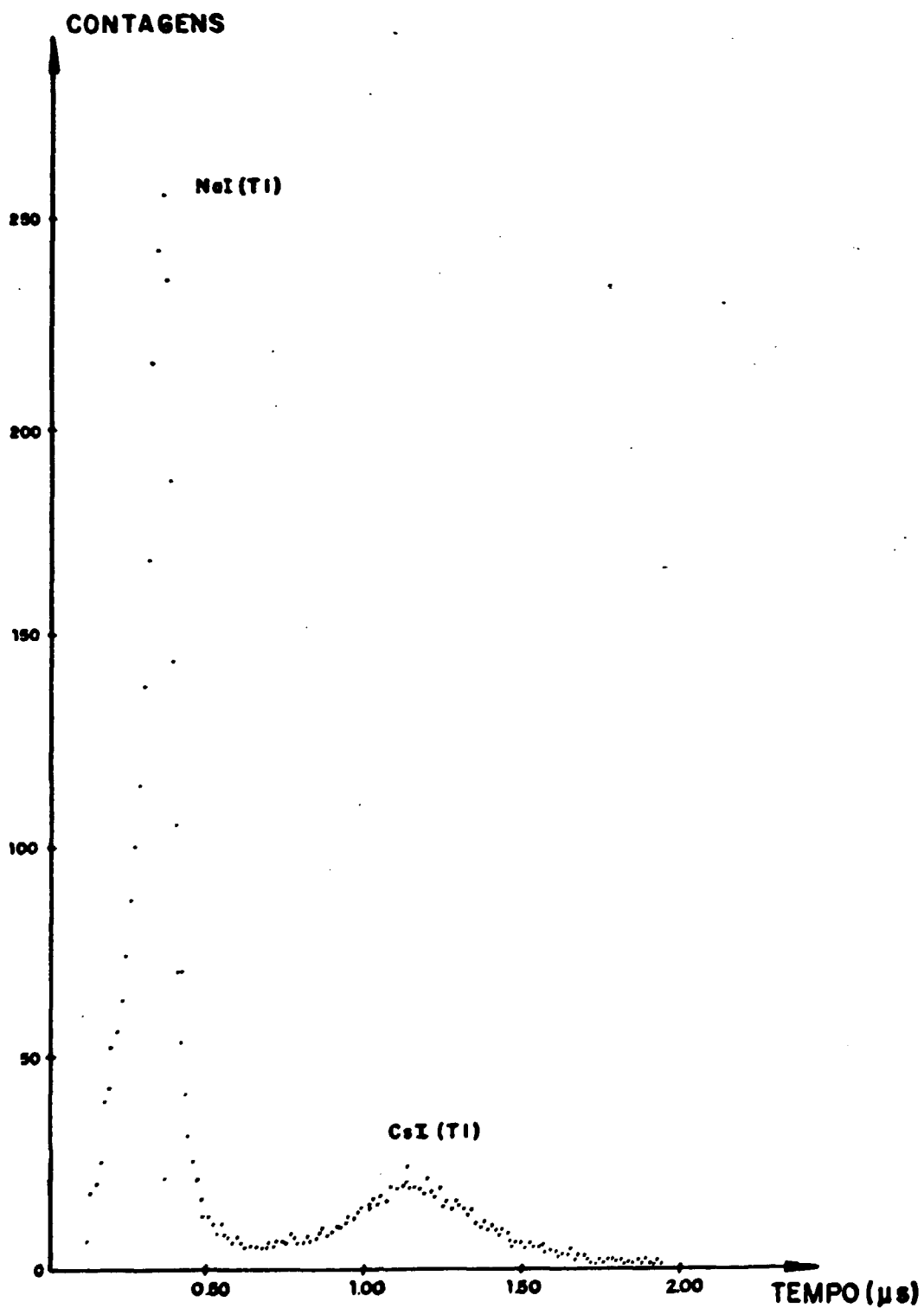


Figura III.4.b - Espectro dos tempos de decaimento das cintilações do detector phoswich utilizando fonte de ^{210}Pb .

forma de pulsos que opera satisfatoriamente dentro de certos limites.

No caso de equipamento utilizado essa relação característica é de 400:1.

Por outro lado, taxas altas de contagens podem dar origem à pulsos espúrios, por sobreposição dos mesmos, além do aumento da probabilidade de interações simultâneas nos dois cristais⁽³⁹⁾.

Em alguns casos o espectro dos tempos de decaimento das cintilações torna-se menos definido e a capacidade de discriminação do analisador de forma de pulsos fica comprometida.

III.5 - AJUSTE DAS CONDIÇÕES DE COINCIDÊNCIA

A fim de obter os espectros de deposição de energia baixa no cristal de NaI(Tl) e rejeitar os sinais provenientes das radiações mais energéticas é necessário que os sinais provenientes do detector phoswich cheguem ao analisador multicanal em coincidência temporal com os sinais que são analisados pelo ORTEC 458 Pulse-Shape Analyzer.

Para compensar o tempo gasto na análise dos tempos de decaimento das cintilações, foi utilizado o amplificador de linha de atraso ORTEC 427A Delay Amplifier.

O atraso a ser dado nos sinais foi determinado utilizando-se a montagem mostrada na figura III.5.

Nessa montagem utilizou-se um pulsador para simular os sinais do detector. Após a amplificação, os sinais do pulsador são enviados para o analisador da forma de pulsos.

O amplificador de linha de atraso ORTEC 427A Delay Amplifier permite atrasos em intervalos de 0,25 μ s, desde 0,25 μ s até

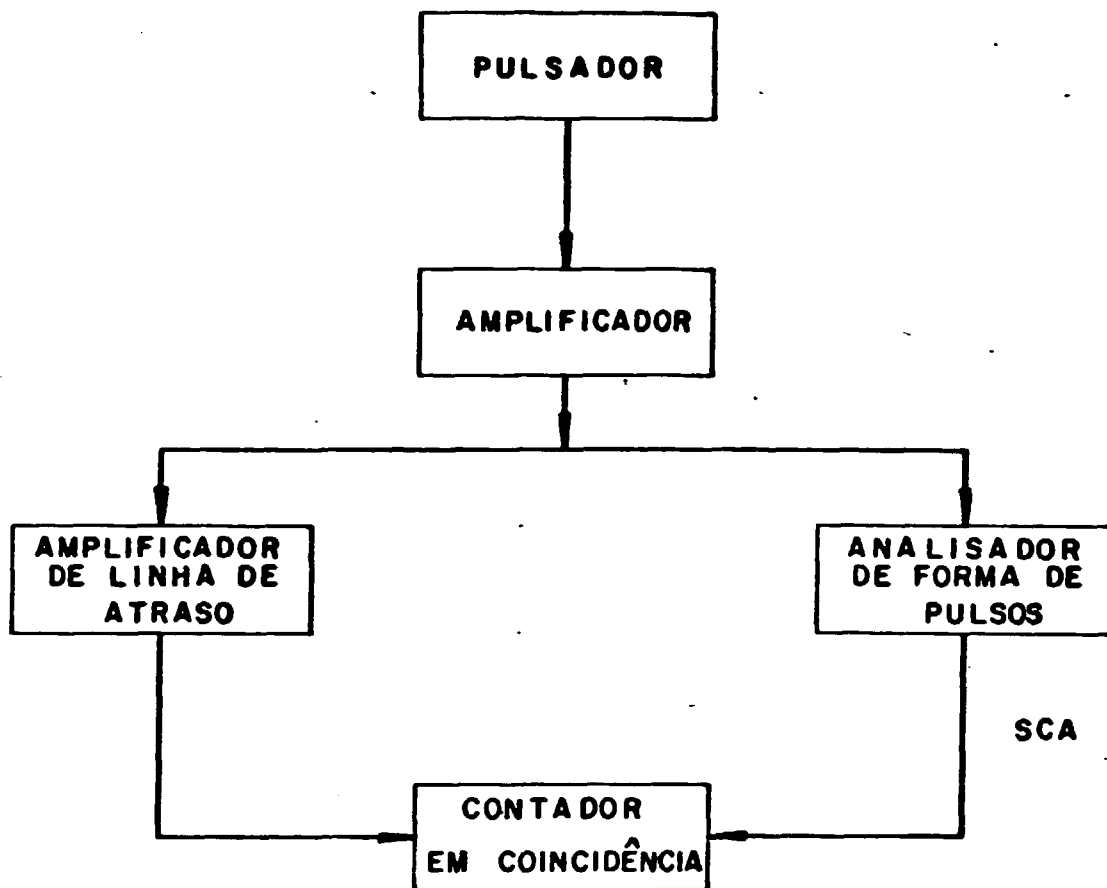


Figura III.5 - Diagrama de blocos da montagem utilizada para determinação do tempo de atraso e ajuste das coincidências.

4,75 μ s, sem alterar as características do pulso.

As saídas do analisador de forma de pulsos e do amplificador de linha de atraso foram enviadas para um "scaler" que registra o número de contagens em coincidência entre as duas entradas.

Os resultados obtidos são apresentados na tabela III.4, mantendo-se o mesmo tempo de contagem para todos os atrasos

ATRASO (μ s)	CONTAGENS
1,00	27
1,25	23
1,50	7218
1,75	11977
2,00	18984
2,25	21352
2,50	21616
2,75	19846
3,00	12806
3,25	5434
3,50	538
3,75	89
4,00	50

TABELA III.4 - Contagens registradas em coincidência em função do tempo de atraso.

Dessa forma, manteve-se o atraso em 2,50 μ s por ser o ponto onde obteve-se maior número de coincidência. Entretanto, o número de pulsos emitidos pelo pulsador foi de 23138 pulsos o que representa que houve uma perda de 6% dos pulsos emitidos.

Tomlinson⁽⁴²⁾ obteve uma perda de 6%, aproximadamente, quando operado com um sistema de discriminação de forma de pulsos acoplado a um detector phoswich e, Berger e colaboradores⁽⁵⁾ utilizam um atraso de aproximadamente 3 μ s para otimizar as coincidências, para um arranjo operando com a mesma técnica.

Esses resultados mostram concordância com os obtidos neste trabalho.

Após o ajuste do tempo de atraso para otimização das coincidências, utilizou-se o arranjo mostrado na figura III.6 para a obtenção dos resultados apresentados nos tópicos seguintes.

III.6 - DISCRIMINAÇÃO DA RADIAÇÃO DE FUNDO

A principal característica e o fundamento para aplicação dos detectores phoswich é a utilização de um cristal, no caso o CSI(Tl), onde ocorrem as interações das radiações de energia mais alta que, através de sistemas de análise de forma de pulsos, possam ser rejeitadas do espectro.

O próprio ambiente consiste em uma fonte de radiações, independente da amostra, que contribui para dificultar a análise dos espectros de deposição de energia.

Utilizando-se o arranjo mostrado na figura III.6, ajustou-se a janela (SCA) do analisador de forma de pulsos a fins de obter os espectros da radiação de fundo em duas situações:

- para obter o espectro na região de energia baixa, correspondente ao cristal de NaI(Tl) e,
- para obter o espectro na região de energia alta, correspondente ao cristal de CsI(Tl).

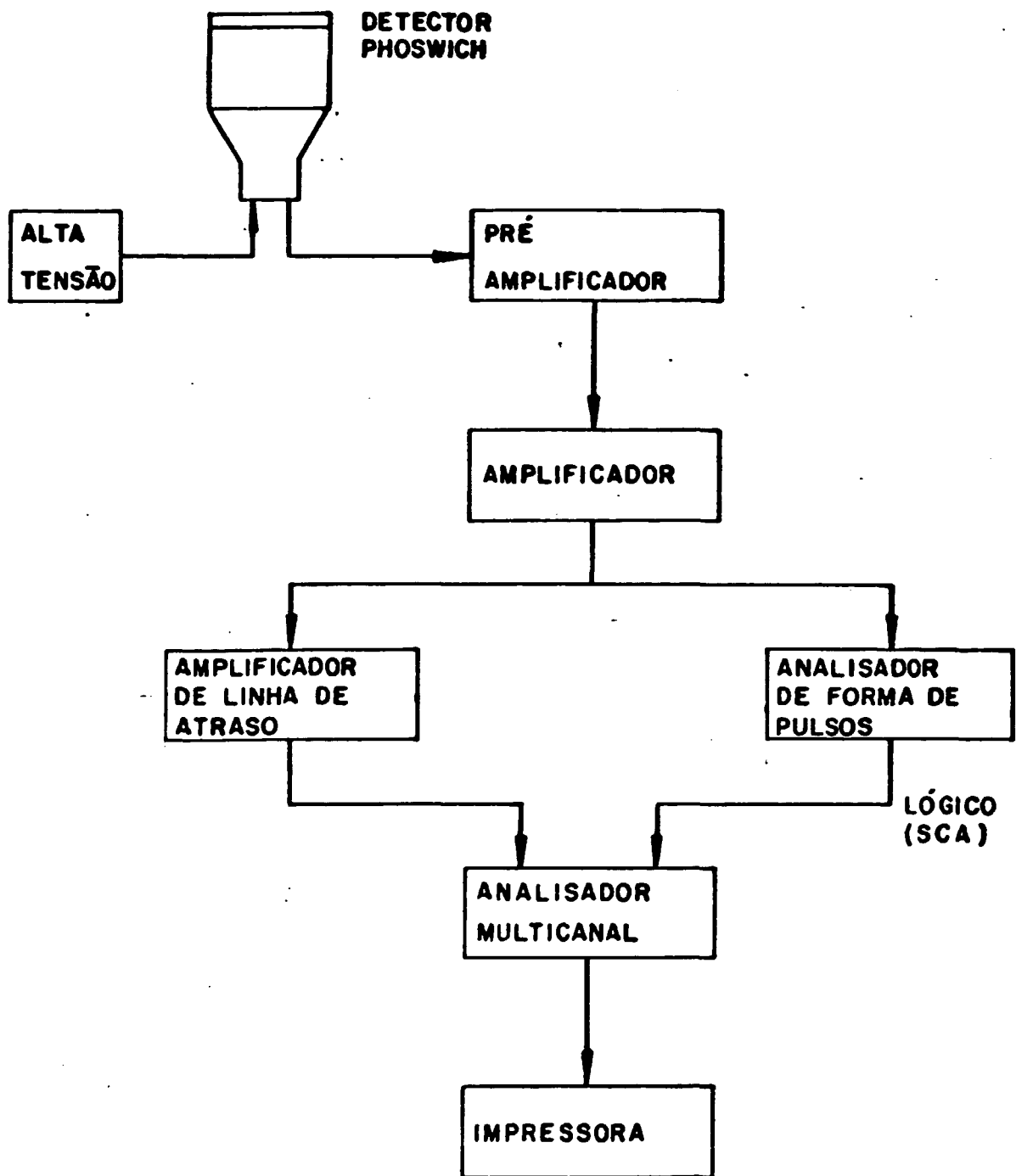


Figura III.6 - Diagrama de blocos da montagem utilizada para espectrometria

Uma terceira medida da radiação de fundo foi efetuada com o sistema de discriminação de forma de pulsos desligados, ou seja, obtendo-se o espectro dos dois cristais.

Os espectros obtidos estão apresentados na figura III.7.

A curva (a) foi obtida selecionando-se os sinais provenientes do cristal de NaI(Tl); a curva (b) foi obtida selecionando-se os sinais provenientes do cristal de CsI(Tl) e a curva (c) corresponde ao espectro sem a utilização do sistema de análise da forma dos pulsos.

Os tres espectros foram obtidos com o detector colocado dentro de uma blindagem de chumbo em locm de espessura.

É interessante notar uma queda nas contagens da radiação de fundo na região abaixo de 140 keV para o cristal de CsI (Tl)

Esse fato é devido à alta eficiência de detecção do NaI(Tl), nessa região de energia, que atua como uma blindagem para o cristal de CsI(Tl).

Os espectros mostrados evidenciam a redução da interferência das radiações mais energéticas e a consequente melhora nas condições de análise do espectro de radiação de energia baixa.

III.7 - ESPECTROS DE EMISSORES DE RADIAÇÕES DE ENERGIA BAIXA

A fim de verificar o comportamento do detector, foram registrados os espectros de alguns radionuclídeos que emitem radiações de energia baixa.

As fontes utilizadas para essas medidas foram preparadas por evaporação a fim de evitar problemas de auto-absorção

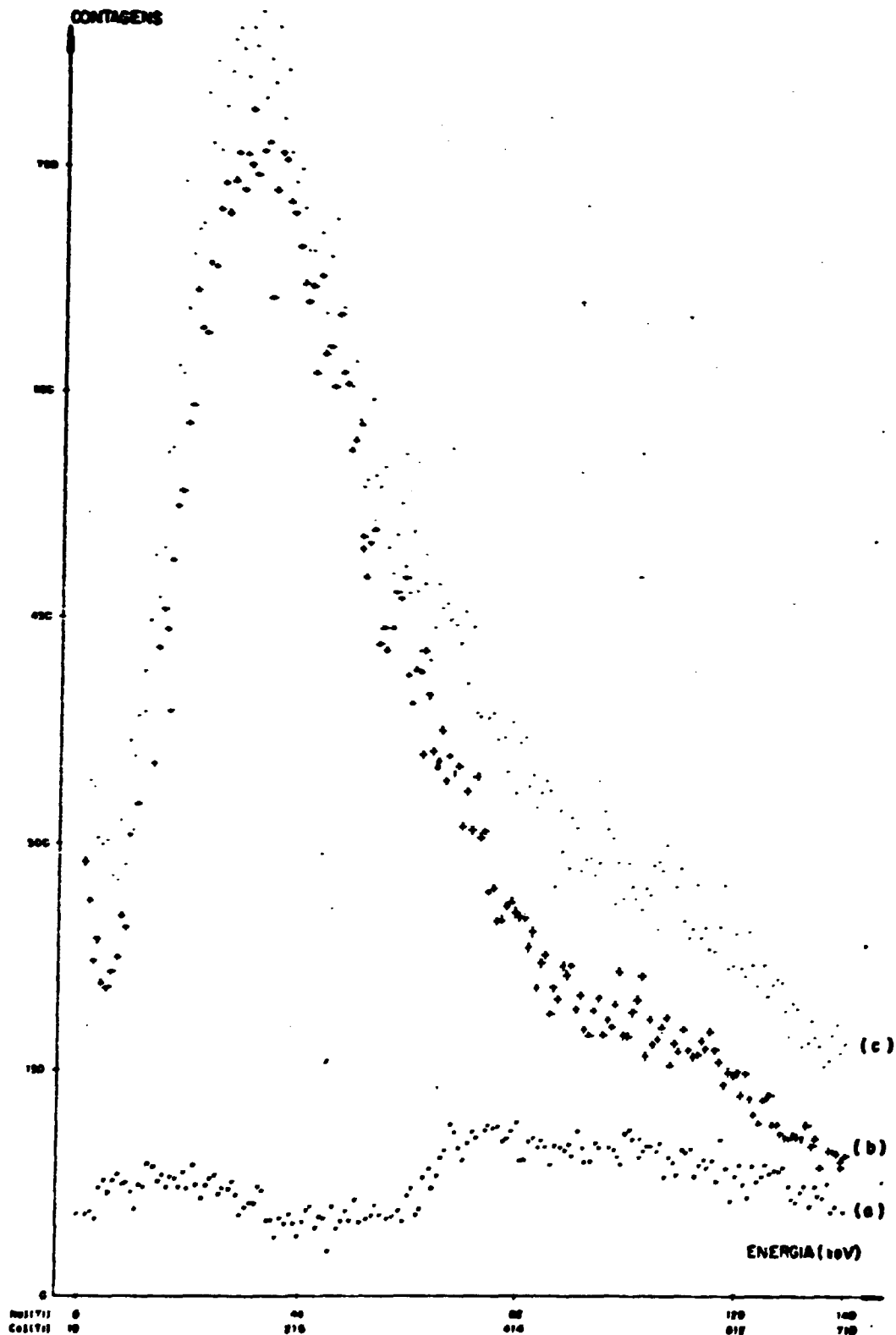


Figura III.7 - Espectros da radiação de fundo

Os espectros obtidos estão mostrados nas figuras III.8, III.9, III.10, III.11 e III.12.

Os espectros do ^{137}Cs (figura III.12) foram gravados em tres condições diferentes, mantendo-se a geometria e o tempo de medida constantes. Essas tres condições foram:

- região de energia baixa onde aparece o pico de absorção dos raios X de 32 keV no cristal de NaI(Tl) (curva a)
- região de energia alta onde aparece o pico de absorção dos raios γ de 662 keV no cristal de CsI(Tl) curva b) e,
- com o sistema de análise da forma de pulsos desligado mostrando as interações com os dois cristais.

III.8 - HOMOGENEIDADE DO DETECTOR

A formação de um cristal mensurável a partir da interação da radiação com o detector envolve uma série de processos como:

- interação da radiação com o meio detector;
- emissão dos fótons na cintilação;
- interação desses fótons com o fotocátodo;
- emissão de fotoelétrons e,
- multiplicação dos elétrons no tubo fotomultiplicador.

Todos esses processos estão sujeitos à flutuação estatística e perdas que podem ocorrer por não uniformidade do cintilador, do acoplado óptico ou do fotocátodo.

Em detectores de dimensões grandes é maior a probabilidade de não uniformidade pois torna-se mais difícil manter a homogeneidade dos meios que compõem o detector.

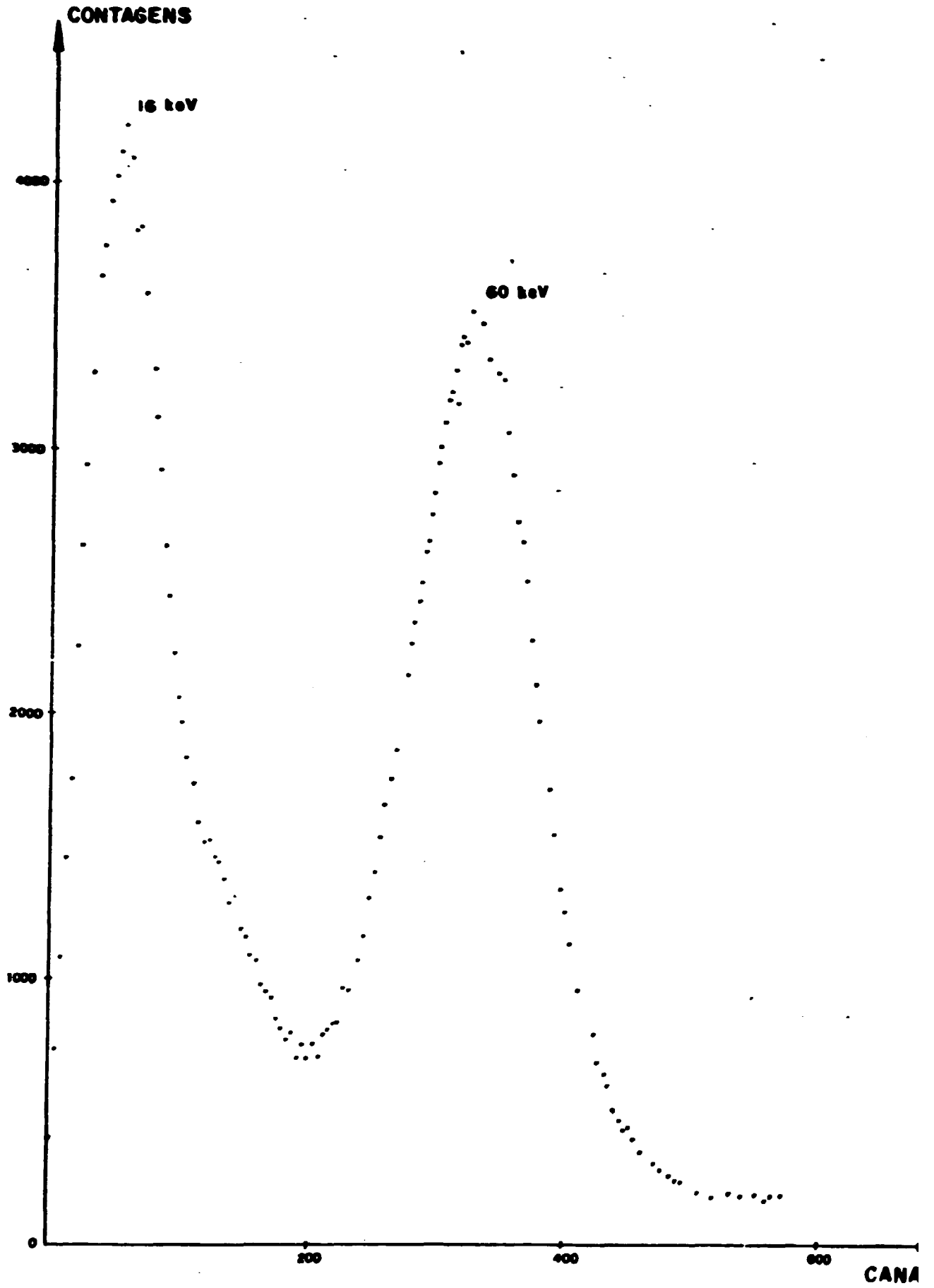


Figura III.8 - Espectro dos raios-X e gama do ²⁴¹Am

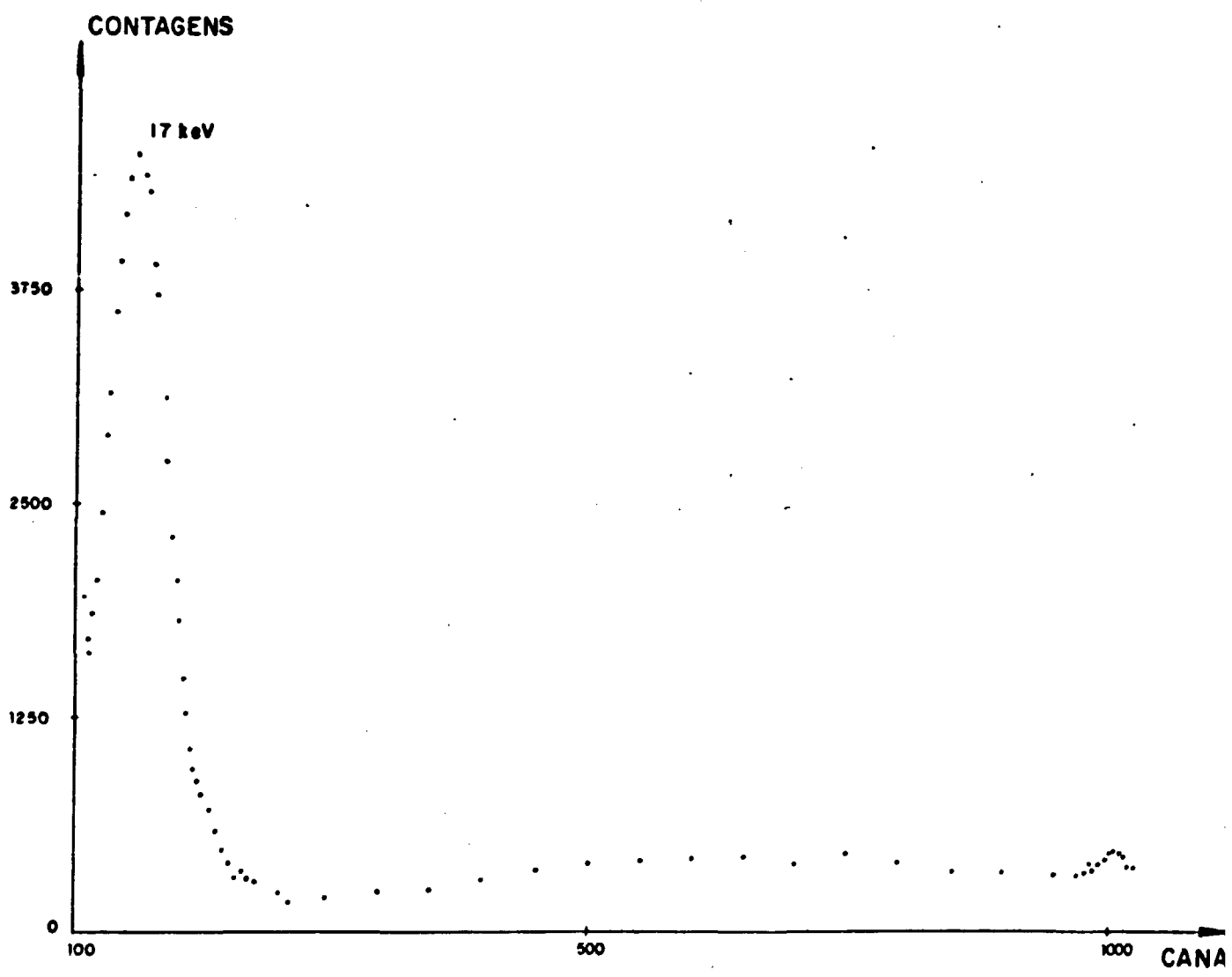


Figura III.9 - Espectro dos raios-X do ^{239}Pu .

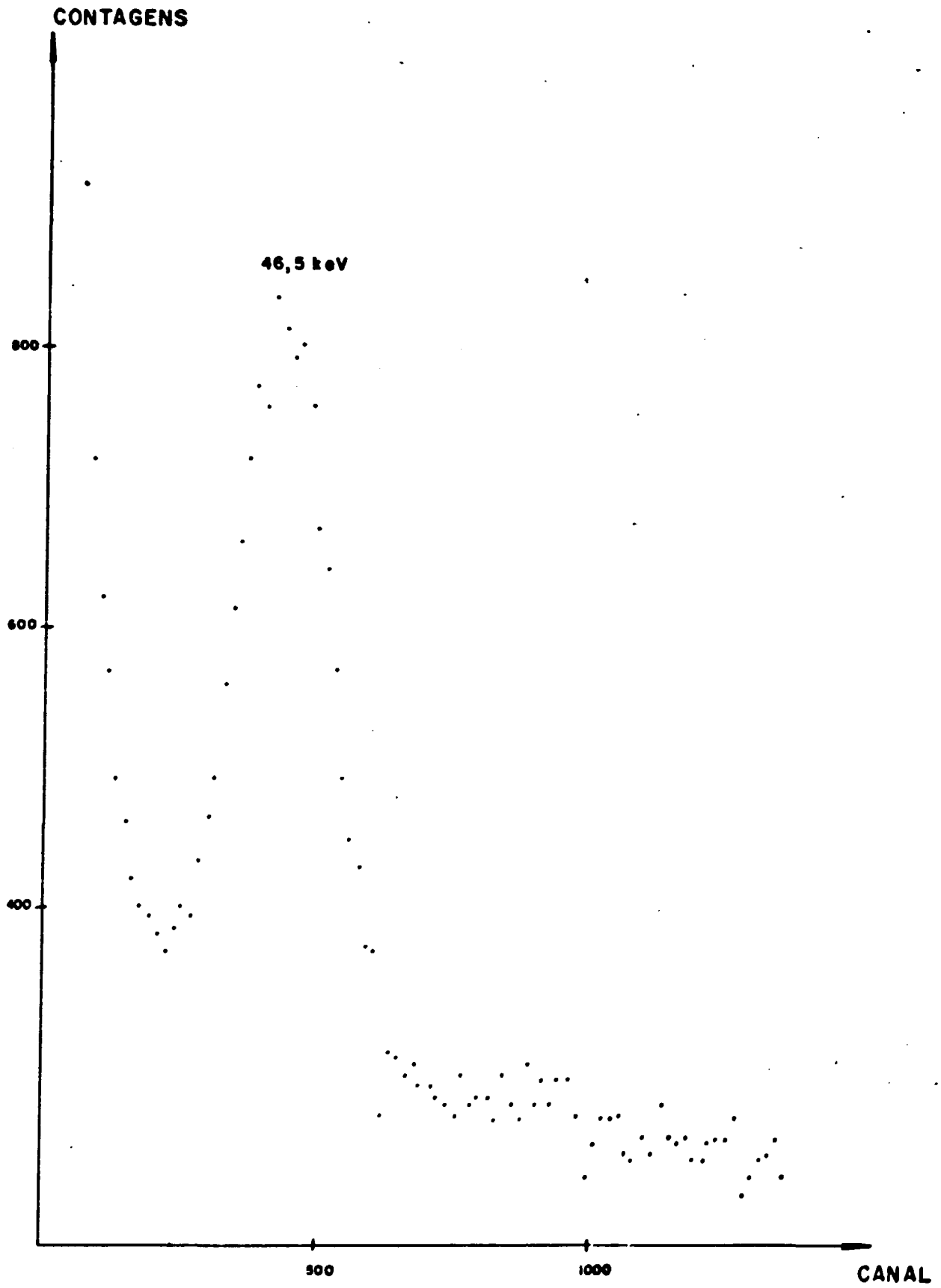


Figura III.10 - Espectro dos raios gama do ^{210}Pb .

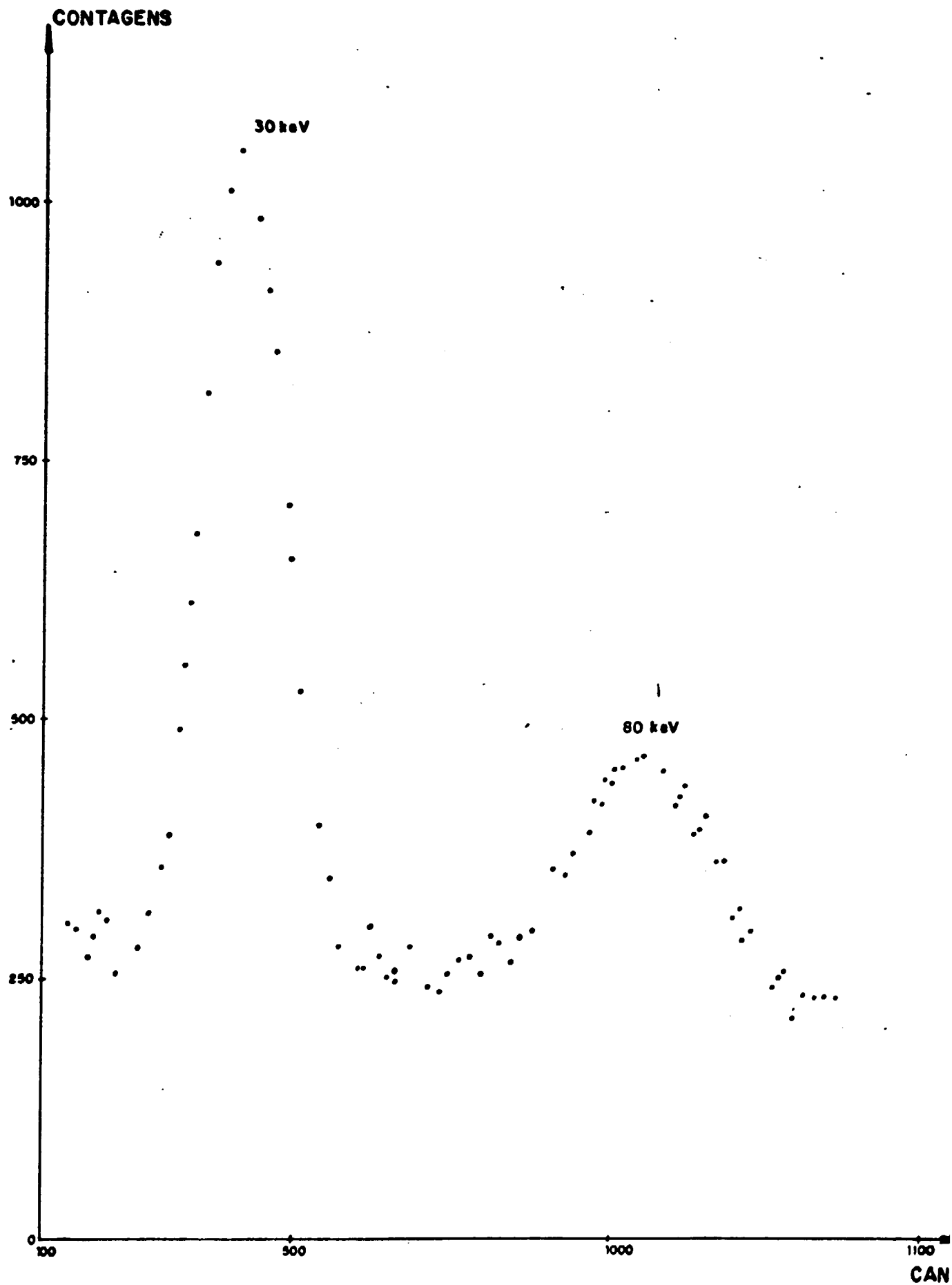


Figura III.11 - Espectro dos raios-X do ^{131}I

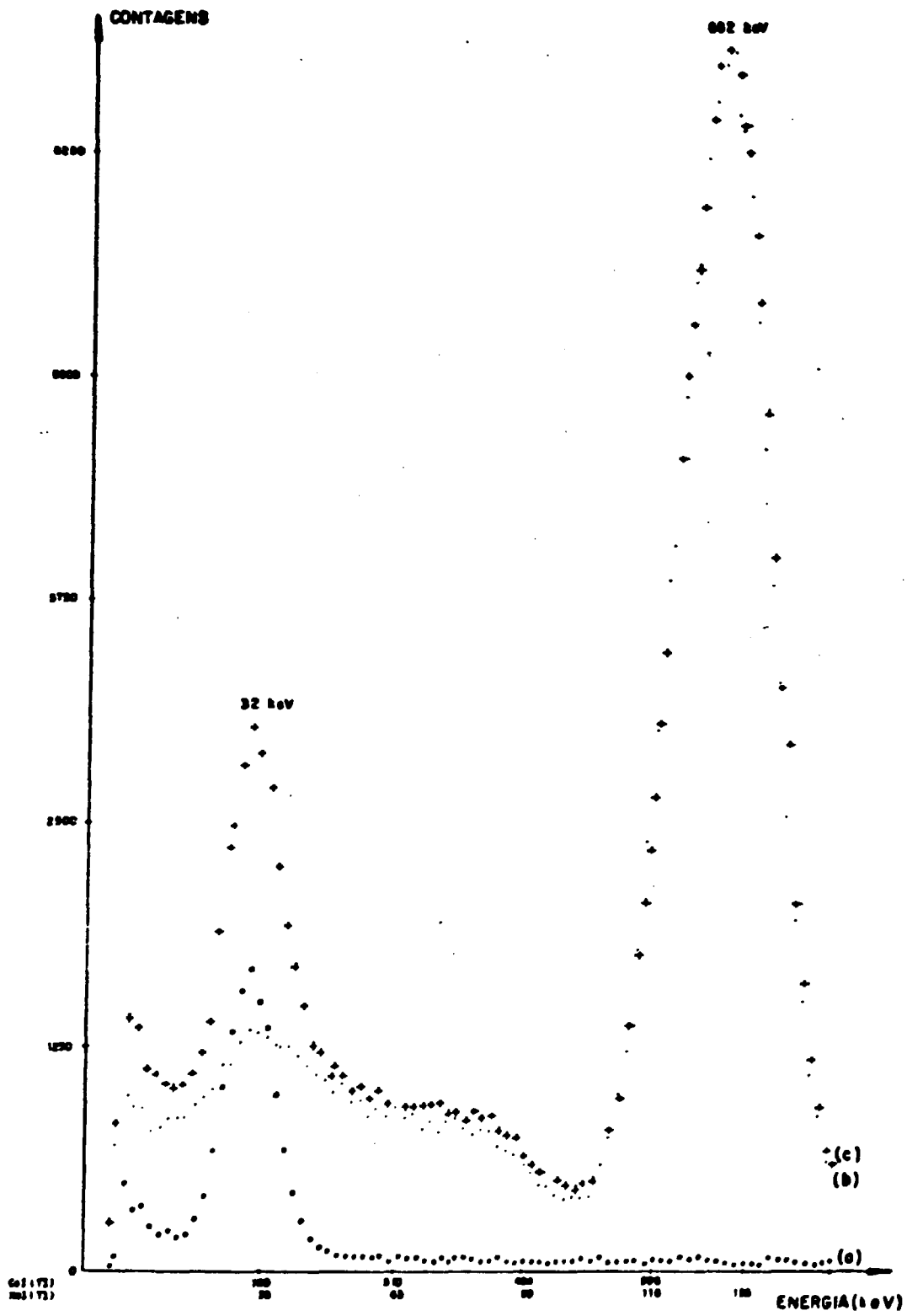


Figura III.12 - Espectros dos raios-X e gama do ^{137}Cs .

A fim de avaliar a homogeneidade do detector utilizado neste trabalho, utilizou-se uma fonte de ^{137}Cs medindo-se a eficiência relativa na detecção dos raios X de 32 KeV emitidos.

Utilizou-se uma placa com 0,5 cm de espessura de Alumínio, colocada sobre o detector, com furos de 1/16" de modo a permitir a incidência dos raios X em áreas pequenas do detector.

Na figura III.13 mostra-se as posições dos furos, sobre as quais foi colocada a fonte de ^{137}Cs , e na tabela III.5 apresentam-se as eficiências relativas de detecção em cada ponto, utilizando-se arbitrariamente a posição central como referência.

POSIÇÃO	EFICIÊNCIA RELATIVA
0	1,0000
1A	0,9480
2A	1,0118
1B	1,0273
2B	0,3342
1C	0,6499
2C	0,5292
1D	1,0257
2D	0,3488

TABELA III.5 - Eficiência relativa de detecção sobre a superfície do detector.

A figura III.14 mostra os espectros obtidos nas posições "0" e 2B, onde houve maior diferença dos resultados de eficiência.

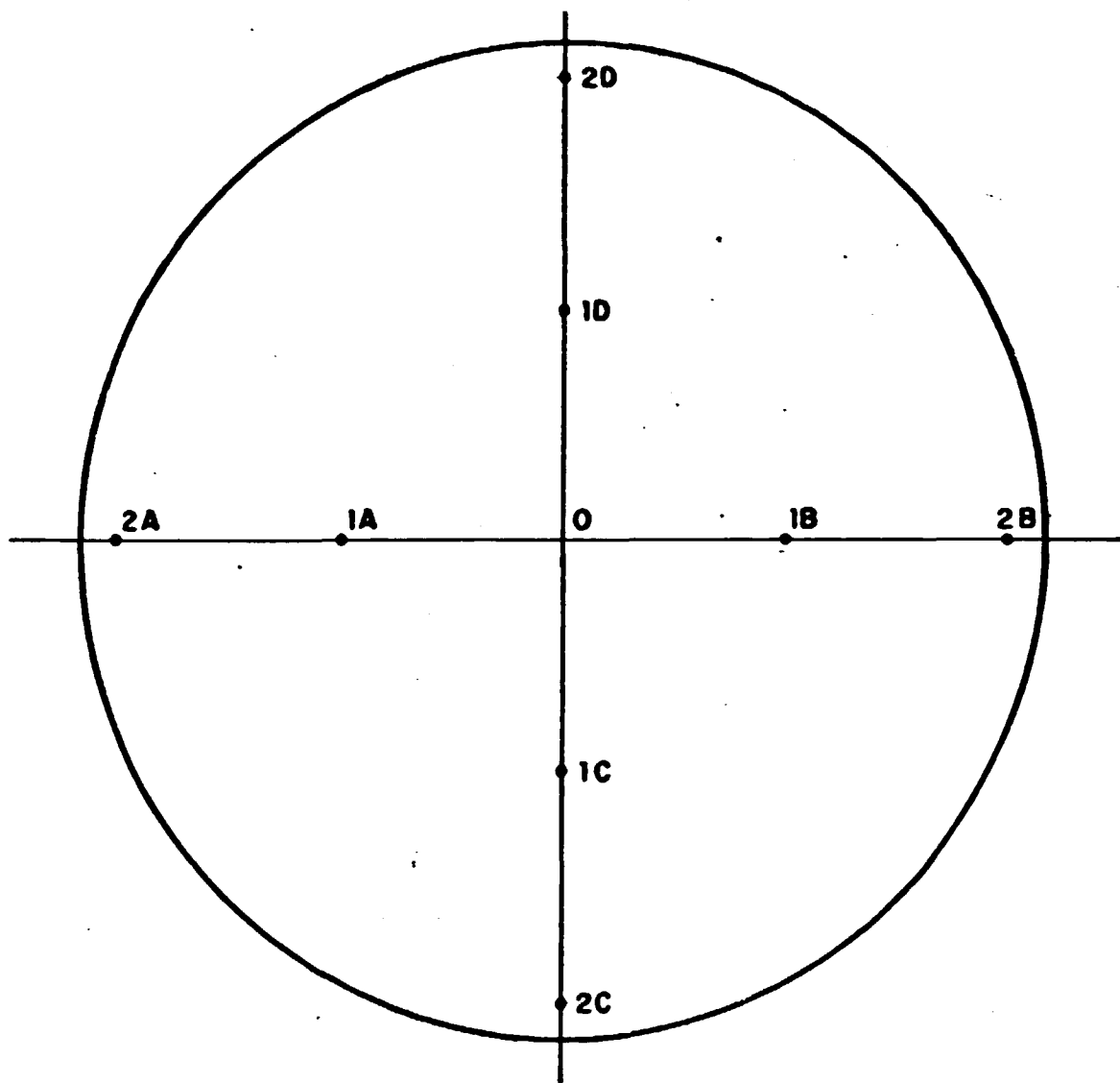


Figura III.13 - Posições de medida da eficiência relativa sobre a superfície do detector.

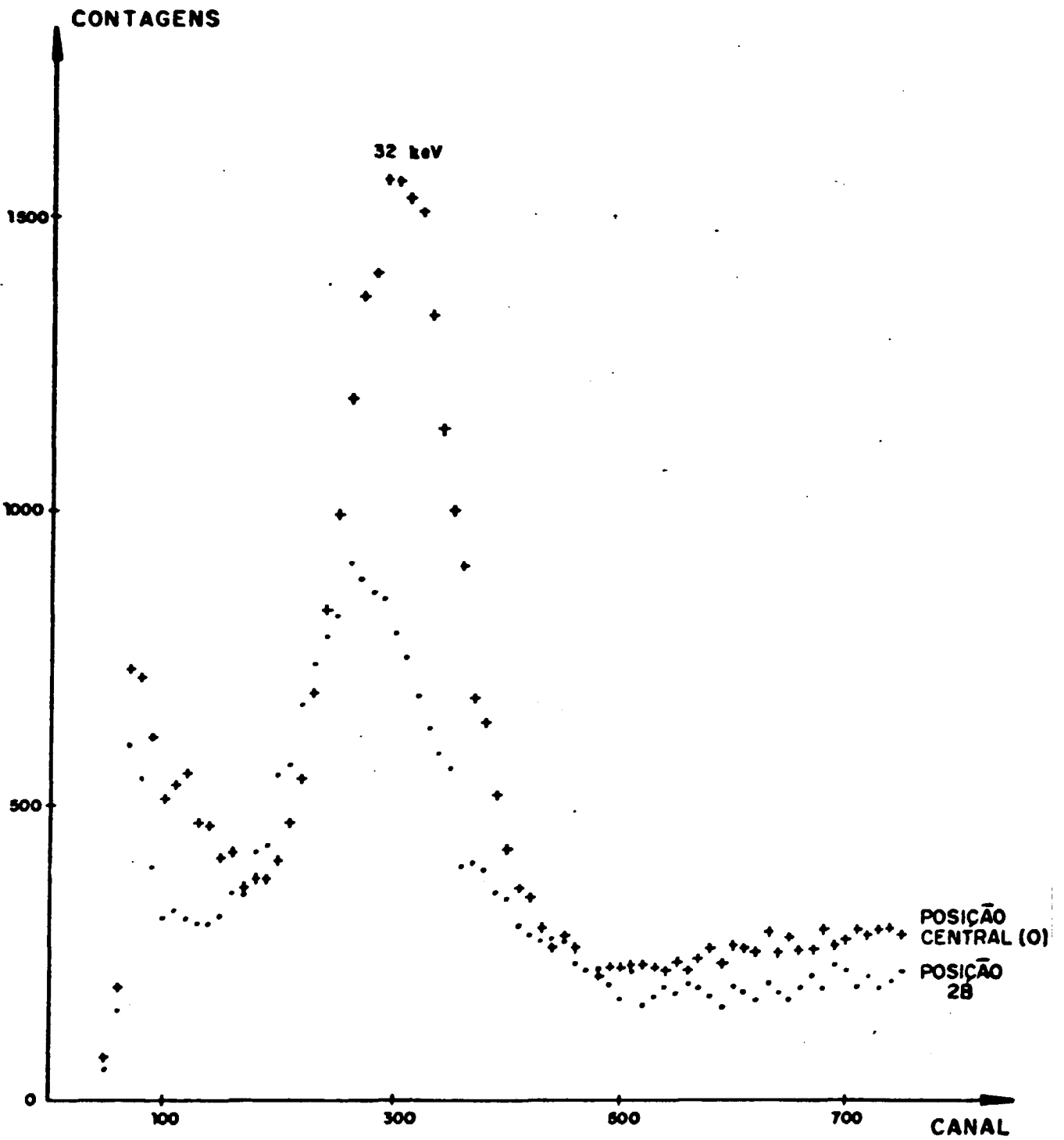


Figura III.14 - Espectros dos raios-X e gama do ^{137}Cs em duas posições do detector.

Pode-se notar, na figura III.14, como a eficiência de detecção e a resolução são afetadas pela não homogeneidade do detector uma vez que empregou-se a mesma fonte e o mesmo tempo de contagem.

III.9 - VARIAÇÃO DO DIÂMETRO DE FONTES PLANAS

Após a verificação de comportamento do detector utilizando uma fonte de diâmetro pequeno, praticamente puntiforme, procurou-se avaliar o efeito da não homogeneidade sobre fontes dispersas.

Para isso preparou-se fontes a partir de uma solução de ^{210}Pb , por evaporação, com a mesma atividade dispersa sobre áreas diferentes e mediu-se a variação da eficiência de detecção dos fótons de 46,5 KeV.

As fontes foram preparadas dispersando-se a solução de ^{210}Pb sobre papeis de filtro, suportados em discos de Alumínio, com diâmetros distintos e evaporando-se até a secura para evitar correções devido à auto-absorção da amostra (30,8).

A dispersão da solução de ^{210}Pb sobre os papeis de filtro foi efetuada lentamente a fim de se obter homogeneidade na preparação.

Após a evaporação completa da solução as fontes foram cobertas com uma camada de plástico fino para evitar a contaminação durante seu manuseio.

Essa medida foi efetuada com o objetivo de encontrar um diâmetro de fonte onde a melhora no fator de geometria compense a não homogeneidade do detector.

Os resultados obtidos com quatro diâmetros diferentes são apresentados na tabela III.6

DIÂMETRO (CM)	EFICIÊNCIA RELATIVA
3,2	0,82
6,4	0,96
9,6	1,00
12,8	0,93

TABELA III.6 - Variação da eficiência relativa com o diâmetro das fontes planas de ^{210}Pb .

O diâmetro da fonte que apresentou melhor resultado foi o de 9,6 cm, sendo adotado como referência para a determinação das eficiências relativas dos outros diâmetros.

A fim de verificar a possível não homogeneidade no preparo das fontes por evaporação, cada medida foi efetuada tres vezes girando-se a fonte sobre o detector.

Os resultados obtidos nas posições medidas apresentaram variações menores do que 1% entre elas.

Dessa forma, para as medidas seguintes utilizou-se a mesma técnica de preparo das amostras e o diâmetro foi mantido em 9,6 cm.

III.10 - MEDIDA DA RESOLUÇÃO DO DETECTOR

Com o objetivo de avaliar a capacidade de discriminar duas radiações de energias próximas incidindo sobre o detector e, como consequência, sua capacidade para aplicação na análise de amostras complexas, mediu-se a resolução do mesmo.

A medida foi efetuada somente para o cristal de NaI(Tl) utilizando-se fontes preparadas por evaporação e com diâmetro de 9,6 cm.

Os resultados obtidos e as fontes utilizadas são mostradas na tabela III.7.

RADIONUCLÍDEO	ENERGIA (keV)	$\frac{\Delta E}{E} \times 100$ (%)
^{99m}Tc	18	50,91
^{131}I	30	42,53
^{210}Pb	46,5	32,88
^{198}Au	72	29,21
^{131}I	80	25,66
^{99m}Tc	140	19,76

TABELA III.7 - Resolução do cristal de NaI(Tl) do detector phoswich para várias energias.

Ajustando-se os resultados pelo método dos mínimos quadrados obteve-se a equação:

$$R(\%) = \frac{212,34}{E} + 2,60$$

cujo coeficiente de correlação linear é de 0,99

III.11 - MEDIDA DA EFICIÊNCIA DE DETECÇÃO PARA O ^{210}Pb .

Devido ao coeficiente de atenuação linear alto do NaI(Tl) e do predomínio da deposição de energia por efeito fotoelétrico na região de energia baixa, esses detectores apresentam valores altos de eficiência de detecção.

Esses fatos favorecem a aplicação de detectores phoswich para elementos que emitem radiações de energia baixa, como o ^{210}Pb .

Esse radionuclídeo pode ser determinado através das radiações gama de 46,5 keV (1,44,8,10,15,22,28,35) emitidas em 4% de suas desintegrações, dispondo de detectores que apresentam eficiências alta de detecção para compensar a porcentagem baixa de emissão das radiações gama.

Mediu-se a eficiência absoluta de detecção do ^{210}Pb , utilizando-se fontes planas com 9,6 cm de diâmetro, preparadas por evaporação a partir de uma solução padronizada pelo Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD-CNEN).

A amostra, evaporada em papel de filtro suportado em um disco de Alumínio e coberta com um plástico fino, foi colocada a 0,3 cm da superfície do detector procedendo-se a contagem.

Obteve-se nessa condição, 29,5% de eficiência absoluta de detecção.

Repetiu-se a medida 10 dias e 30 dias após, para verificar a possível interferência do Bremsstrahlung causado pelo crescimento do ^{210}Bi (28), obtendo-se o mesmo resultado anterior, ou seja, a variação entre eles foi menor do que 1%.

CAPÍTULO IV

DISCUSSÃO DOS RESULTADOS

Os resultados publicados sobre a utilização de detectores phoswich estão associados basicamente à sua aplicação na detecção de radionuclídeos depositados internamente no corpo humano, principalmente ^{238}Pu , ^{239}Pu e ^{241}Am (5,7,10,17,19,29, 30, 36, 40,41,42).

Dolquirev e colaboradores^(9,10) apresentam também os resultados para detecção de ^{210}Pb depositado nos ossos, utilizando contadores proporcionais e NaI(Tl) pouco espesso.

Entretanto, os procedimentos desenvolvidos nesse tipo de trabalho estão associados a estudos de técnicas de calibração⁽¹⁴⁾ e redução da influência da radiação de fundo^(37,16) nos limites de detecção.

Malkar e Kunte⁽²⁶⁾ citam as aplicações dos detectores phoswich em radioastronomia e apresentam os resultados avaliando a capacidade de um sistema de análise de forma dos pulsos em condições variadas de temperatura e campos de radiações.

Frontera e colaboradores⁽¹²⁾ avaliaram o desempenho de quatro detectores phoswich em diferentes configurações, para aplicação em astronomia de raios X acima de 15 KeV.

Os resultados obtidos neste trabalho mostram a aplicabilidade do detector estudado na análise de amostras ambientais, considerando-se as restrições com relação à resolução.

Essa desvantagem é compensada pela eficiência alta na detecção das radiações de energia baixa e, principalmente, pela capacidade de discriminação da radiação de fundo.

O ^{210}Pb , em particular, apresenta características que favorecem sua análise pela técnica apresentada, uma vez que ocorrem poucos emissores de radiação gama na região de 46,5 KeV⁽³⁵⁾.

O ^{210}Pb pode ser determinado por espectrometria α através do ^{210}Po ou, por espectrometria β^- através do ^{210}Bi .

Segundo Yang⁽⁴⁴⁾ essas duas técnicas envolvem separações radioquímicas e períodos de tempo que podem variar de dias até semanas, dependendo do nuclídeo a ser medido, pois o ^{210}Bi tem meia-vida de 5 dias e o ^{210}Po de 138 dias. Nesse sentido Amáral⁽¹⁾ utiliza um tempo de 35 dias de espera para efetuar a análise por espectrometria β^- .

Yang⁽⁴⁴⁾ estudou a técnica de determinação de ^{210}Pb por espectrometria gama utilizando um detector Ge(Li), com eficiência absoluta de 0,2% e comparando com o método por espectrometria β^- com eficiência de 28%, concluindo que utilizando-se uma massa maior de amostra e em condições de geometria mais favoráveis, os resultados podem ser equivalentes.

A eficiência absoluta para detecção do ^{210}Pb do detector utilizado neste trabalho é de 29,5%, sendo portanto superior aos resultados obtidos por Yang⁽⁴⁴⁾ empregando separações radioquímicas e espectrometria β^- .

Schery⁽³⁵⁾ avaliou a aplicação de um detector de germânio hiperpuro para análise do ^{210}Pb em amostras de solos, concluindo que as limitações principais são a porcentagem baixa de emissão dos fótons de 46,5 KeV e o volume sensível pequeno do detector que não permite trabalhar com amostras maiores.

Entretanto, sugere que a rapidez e a simplicidade da análise são adequados para os casos onde a sensibilidade seja menos preponderante.

O detector utilizado neste trabalho tem uma área de 137cm^2 o que permite a dispersão da amostra a ser analisada e, por conseguinte, o emprego de uma massa maior da mesma.

Cutshall⁽⁸⁾ avaliou também os custos envolvidos nas separações radioquímicas provocados pelo tempo despendido e o ganho em termos do número de análises que podem ser efetuados por espectrometria gama sem a separação radioquímica.

Oliveira⁽²⁸⁾ estudou a interferência do Bremsstrahlung provocado pelo ^{210}Bi e a influência da quantidade de amostra em termos de auto-absorção dos fótons de 46,5 KeV, concluindo que após aproximadamente 25 dias a interferência do ^{210}Bi é praticamente constante e determinou os fatores de correção para a auto-absorção.

No desenvolvimento deste trabalho, mediu-se uma amostra de ^{210}Pb repetindo-se a medida 10 dias e 30 dias após obtendo-se o mesmo resultado, o que mostra a não interferência do Bremsstrahlung do ^{210}Bi nas análises realizadas como o detector phoswich. Assim, as análises podem ser efetuadas sem considerar o fator de correção para o equilíbrio entre o ^{210}Pb e o ^{210}Bi .

Cutshall⁽⁸⁾ e Godoy⁽¹⁵⁾ estudaram a técnica de espectrometria gama direta de amostras de solos e sedimentos, determinando os fatores de correção para auto-absorção das amostras.

O problema da auto-absorção está relacionado à dispersão da amostra sobre uma superfície pequena do detector. No caso do detector phoswich utilizando neste trabalho pode-se dispersar a amostra em uma superfície maior, como citado anteriormente, reduzindo assim os problemas de auto-absorção.

Kim⁽²²⁾, utilizou a técnica de espectrometria gama para determinação dos nuclídeos da série do Urânio em sedimentos marinhos sugerindo que essa técnica pode substituir as separações ra-

diquímicas e o uso de espectrometria α e β^- por estas consumirem maior tempo.

Combinando-se as vantagens citadas do detector phoswich com a técnica de concentração de volumes grandes de amostras líquidas propostas por Roy e colaboradores^(33,34), obtem-se uma técnica analítica bastante sensível e rápida que pode ser aplicada rotineiramente.

CAPÍTULO V

CONCLUSÃO

Comparando-se os resultados obtidos neste trabalho com aqueles publicados sobre espectrometria gama direta, pode-se concluir que o detector estudado apresenta vantagens como:

- Uma alta eficiência de detecção para os fótons de 46,5 keV do ^{210}Pb ,
- Uma maior área de medida do que os detectores semicondutores, criando condições mais favoráveis de geometria e aumentando com isso a quantidade de amostras a ser analisada sem os problemas de auto-absorção.

Neste trabalho, determinaram-se os parâmetros e as condições básicas de operação do sistema eletrônico associado ao detector phoswich, permitindo sua aplicação em contadores de corpo inteiro, além de contribuir para uma nova aplicação do detector na área de amostras ambientais.

REFERÊNCIAS

- 1) AMARAL, E.C.S. Comportamento do ^{226}Ra no ambiente aquático da região da mina de Urânio, Poços de Caldas, M.G. Rio de Janeiro 1982. (Dissertação de mestrado, Instituto de Biofísica, Universidade Federal do Rio de Janeiro.
- 2) ANDERSEN, B.U.; BRAMSON, P.E.; UNRUH, C.M.. Comparison of Germanium and Sodium Iodide: in vivo measurement system. In: International Atomic Energy Agency. Advances in physical and biological detectors: proceedings of a symposium on... held in Vienna, Nov. 23-27, 1970. Vienna, 1971.
- 3) ARMANTROUT, G.A. Radiation detectors: needs and projects. Nucl. Instrum Methods, 193: 41 - 7, 1982.
- 4) BEMIS JR., C.E.; GOANS, R.E.; GOOD, W.M.; Warner, g.g.. Detection of internally deposited actinides. Part IV: Preliminary considerations in the use of large, planar intrinsic Ge detectors. In: Health physics Society. Operational health physics: proceedings of 9. Midyear topical symposium on..., held at Denver, Co., Feb. 9, 19 (Separata).
- 5) BERGER, C.D.; GOANS, R.E. A comparison of the NaI - CsI phoswich and a hiperpure germanium array for in vivo detection of the actinides. Health. Phys., 40: 535 - 42, 1981.
- 6) BRUNNER, H. Recent advances in radiation protection measurements techniques. In: International Atomic Energy Agency. Advances in physical and biological radiation detectors: proceedings of a symposium on... held in Vienna, Nov. 23-27, 1970. Vienna, 1971.
- 7) CLEMENTE, G.F. & SITE, D.A. Assessment of Plutonium internal contamination in man. Luxemburg. Commission of the European

communities, 1982. p 36-40 (EUR 7157 EN).

- 8) CUTSHALL, N.H.; LARSEN, I.L.; OLSEN, C.R.. Direct analysis of ^{210}Pb in sediment samples: self absorption corrections. Nucl. Instrum. Methods, 206: 309-12, 1983.
- 9) DOLGUIREV, E.I.; KAJDANOVSKI, G.N.; POROZOV, N.V.; SHAMOV, V. M.. Monitoring of Coroenergy X-ray radio nuclide content in human body. In: Snyder, W.S., ed. International Radiation Protection Association: proceedings of the 3rd. international congress, held in Washington, D.C., Sept. 9-14, 1973 Springfield, VA., NTIS, 1974. (CONF 730907).
- 10) DOLGUIREV, E.; KAIDA NOVSKY, G.N; POROZOV, N.V. and SHAMOV, V. P.. The methods of absolute calibration of equipment for measurement of Pb-210, Pu-239 and Am-241 in humar body. In: Snyder, W.S., ed. International Radiation Protection Association: proceedings of the 3rd. international congress, held in Washington, D.C., Sept. 9-14, 1973 Springfield, V.A., NTIS, 1974 (CONF 730907).
- 11) EISENBUD, M.. Radionuclides in the enviran ment. In: KORNBERG , H.A. & NORWOOD, W.D., eds. Diagnosis and tratment of deposited radionuclides: proceedings of a Symposium on... held at Richland, Wash., May 15-17, 1967. Amsterdam, Excerpta Medica Foundation, 1968.
- 12) FRONTERA, F.; CATANI, O.; COSTA, E.; DAL FIUME, D.; LANDINE, G.; MORELLI, E.; RUBINI, A.; SILVESTRI, S.; SPADA, G. and TRIFOGLIO, M.. Performance of diferent phoswich configurations in a balloon flight experiment. Nucl. Instrum. Methods, 235: 573-81, 1985.
- 13) FRY, F.. In vivo measurements exposure to ^{133}Xe and associated dose assessment procedures. In: Sinyder. W.S., ed.

International Radiation Protection Association: proceedings of the 3rd. international congress, held in Washington, D. C., Sept. 9-14, 1973 Springfield, V.A., NTIS, 1974 (CONF. 730907).

- 14) GOANS, R.E. and GOOD, W.M.. Calibration techniques and error analysis for phoswich counting of actinide nuclides at Oak Ridge National Laboratory. In: Swint, K.L., ed. Measurements of heavy elements in-vivo: proceedings of the workshop on..., held in in Seattle, of the workshop on..., held in Seattle, WA, june 24-25, 1976, Richland, wash. , Battelle Pacific Northwest Labs. Sept. 1976 (ENWL - 2088).
- 15) GODOY, J.M.; MENDONÇA, A.H. e SACHETT, I.A. Determinação de Pb-210 e U-238 em amostras ambientais por medida direta usando espectrometria gama de baixa energia. Rio Janeiro, Instituto de Radioproteção e Dosimetria - CNEN., 1985. (IRD - CNEN-NT-005/85).
- 16) GOOD, W.M.; BEMIS, C.E.; GOANS, R.E. Detection of internally deposited actinides Parte III recent background studies at ORNL. In: HEALTH PHYSICS SOCIETY. Operational health physics: proceedings of a. midyear topical symposium on..., held at Denver, Co, Feb. 9, 1976. (separata).
- 17) GORDON, J. In-vivo monitoring of nuclear fuel workers. In: Snyder, W.S., ed. International Radiation Protection Association: Proceedings of the 3rd. international congress, held in Washington, D.C., Sept. 9-14, 1973 Springfield, V.A., NTIS, 1974 (CONF. 730907).
- 18) HEATH, R.L. Scintillation spectrometry gamma ray spectrum catalogue. 2. ed. Idaho Falls, U.S.A.F.C. Idaho Operations office, Aug. 1964. V.1 (IDO 16880-1).

- 19) HUTH, G.C. & MULDOFSKI, P.J. In vivo measurements of Plutonium and others very low level emitters. In: International ATOMIC ENERGY AGENCY. Diagnosis and biological radiation detectors: proceedings of a symposium on... .. held in Vienna, Nov.23-27 , 1970. Vienna, 1971.
- 20) International Atomic Energy Agency. Objetives and design of environmental monitoring programmes for radioactive contaminantes.. Vienna, 1975 (Sapty series, 41)
- 21) ISRAEL, H.I.; LIER, D.W.; STORN, E. Comparison of detectors used in measurement of 10 to 300 KeV X-ray spectra. Nucl. Instrum. Methods, 91: 141-57, 1971
- 22) KIM, K.H. & BURNETT, W.E. γ -ray spectrometric determination of Uranium-series nuclides in marine phosphorites. Anal. Chem, 55: 1796 - 800, 1983.
- 23) KNOLL, G.F. Radiation detection and measurements. New York, Wiley, 1979.
- 24) LAURER, G.R. & EISENBUD, M. In vivo measurements of nuclides emitting soft penetrating radiation. In KORNBERG, H.A. & NORWOOD, W. D., eds Diagnosis and treatment of deposited radionuclides: proceedings of a symposium on..., held at Richland, wash., May 15-17, 1967. Amsterdam, Exerpta Medica Foundation, 1968.
- 25) LOSSNER, V. High-sensitive detection of low-energy photon emitters in man by pulse-shape analysis. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Diagnosis and treatment of incorporated Radionuclides: proceedings of a seminar..., held in Vienna, Dec. 8-12, 1985. Vienna, 1986.

- 26) MALKAR, J.P. & KUNTE, P.K. Pulse shape discrimination technique in a NaI(Tl) - CsI(Na) X - ray detector. Nucl. Instrum. Methods, 202: 465-8, 1982
- 27) National Council on Radiation Protection and Measurements. A handbook of radioactivity measurements procedures. Nov. 1, 1978 (NCRP-58)
- 28) OLIVEIRA, A.E.. Lixiviação de ^{226}Ra e ^{210}Pb de sedimentos da região da mina e usina de Urânio de Poços de Caldas, com taminação em laboratório por águas de rio e agentes químicos, mobilidade e disponibilidade em solos. Rio de Janeiro, 1982. (Dissertação de mestrado, Instituto de Biofísica, Universidade Federal do Rio de Janeiro).
- 29) OLIVEIRA, C.A.N.; LOURENÇO, M.C.; MENEZES, H.K.B.; FREIRE, B. L.V. e CUNHA, P.G.. A unidade de contador de corpo inteiro do Instituto de Radioproteção e dosimetria. In: ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE ENERGIA NUCLEAR. Energia Nuclear: anais do 1. congresso geral de..., realizado no Rio de Janeiro, mar., 1986. Rio de Janeiro, 1986.
- 30) PALMER, H.E.; Vogman, N.A.; COOPER, J.A. The determination of depth and amount of ^{239}Pu in wounds with Si(Li) detectors, In: KORNBERG, H.A. & NORWOOD, W.D. eds. Diagnosis and treatment of deposited radionuclides: proceedings of a symposium on..., held at Richland, wash. May 15-17, 1967. Amsterdam, Excerpta Medica Foundation, 1968.
- 31) RAMSDEN, D & SPEIGHT, R.G. The measurement of ^{239}Pu in vivo a progress report In: KORNBERG, H.A. & NORWOOD, W.D. eds. of deposited radionuclides: Diagnosis and treatment incorporation radionuclides proceedings of a symposium on..., held at Richland, Wash., may 15-17, 1967 Amsterdam, Excerpta Medica Foundation 1968.

- 32) RIEPPO, R. Absolute low-energy photopeak efficiency values for NaI(Tl) and Si(Li). Phys. Med. Biol., 30(8): 839-44 ; 1985.
- 33) ROY, J.C., BARBEAU, C.; CÔTE, J.E; Turcotte, J. A very sensitive sampling method for the measurement of radioactivity in waters from various sources. Nucl. Instrum. Methods, 160: 187-91, 1979.
- 34) ROY, J.C; TUR COTTE, J.; J.E.; BEAULIEN, P. Fallout of ^{58}Co , ^{60}Co , and ^{54}Mn in Eastern Canada from Nuclear Weapons Testing. Int. J. Appl. Radiat. Isot., 32: 423-8, 1981.
- 35) SCHERY, D.S. Determination of Lead-210 in environmental samples by gamma spectrometry with high - purity germanium detectors. Anal. Chem., 52: 1957-8, 1980.
- 36) SCHMITT, A. & FESSLER, H. Recent developments in lung counting of transuranium nuclides at Karlsruhe In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Diagnosis and treatment incorporation radionuclides: proceedings of a seminar..., held in vienna, Dec. 8-12 1985. Vienna, 1986.
- 37) SHARMA, R.C.; SOMASUNDARAN, S.; KOTRAPPA, P.; HARIDASAN, T. K.; SURENDRAN, T.; KAPUR, D.K.; KRISHNAMACHARI, G.; BHANTT, D.P. and PIMPALE, N.S.. Assessment of chest burdens of Plutonium. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Diagnosis and treatment of incorporated radionuclides: proceedings of a seminar on..., held in Vienna, dec. 1985. Vienna, 1986.
- 38) SHARMA, R.C.; SOMASUNDARAN, S. and SURENDRAN, T. Assessment of Plutonium in human lungs with thin NaI(Tl) detector systems. In: Snyder, W.S., ed. International Radiation