

029126566

ISSN 0101-3084



CNEN/SP

ipen Instituto de Pesquisas
Energéticas e Nucleares

PROJETO E CONSTRUÇÃO DE DETECTORES METÁLICO HALOGE-
NADOS TIPO GEIGER-MÜLLER COM JANELA DE MICA

Maria Sílvia GORSKI, Wilson A. BRUZINGA

IPEN - PUB - 315.

PUBLICAÇÃO IPEN 315

SETEMBRO/1990

SÃO PAULO

**PROJETO E CONSTRUÇÃO DE DETECTORES METÁLICO HALOGENADOS
TIPO GEIGER-MÜLLER COM JANELA DE MICA**

Maria Sílvia GORSKI, Wilson A. BRUZINGA

DEPARTAMENTO DE APLICAÇÕES NA ENGENHARIA E NA INDÚSTRIA

**CNEN/SP
INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
SÃO PAULO – BRASIL**

Série PUBLICAÇÃO IPEN

INIS Categories and Descriptors

E41.40

**GEIGER-MUELLER COUNTERS
SPECIFICATIONS**

MICA

HALOGENS

IPEN - Doc - 3742

Aprovado para publicação em 11/07/90.

Nota: A redação, ortografia, conceitos e revisão final são responsabilidade do(s) autor(es).

PROJETO E CONSTRUÇÃO DE DETECTORES METÁLICO HALOGENADOS TIPO GEIGER-MÜLLER COM JANELA DE MICA

Maria Sílvia GORSKI, Wilson A. BRUZINGA

COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR-SP
INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Caixa Postal 11049 - Pinheiros
05499 - São Paulo - BRASIL

RESUMO

O trabalho tem como objetivo o desenvolvimento de um detector tipo Geiger-Müller com características semelhantes ao modelo comercial 7P 1410 Phillips. Geometricamente o protótipo possui um comprimento efetivo de 37mm, com diâmetro útil de janela de mica de 19,8mm. Para estas janelas, com espessuras de 1,5 a 2,0mg/cm, desenvolveu-se uma técnica delicada de corte. Estudou-se basicamente dois tipos de agente "quenching": bromo e cloro. Devido à natureza corrosiva desses materiais, tornou-se necessário o tratamento da superfície interna do cátodo e do ânodo. Trabalhou-se com eletropolimento, passivação química, niquelação, cromeação e nitretação. Esses detectores são desgaseificados em alto vácuo com pressão da ordem de 10^{-6} mbar. Para isso, desenvolveu-se um vidro de solda ajustado aos coeficientes de expansão dos materiais envolvidos para as junções: vidro-metal e mica-metal. As características operacionais pretendidas para o detector são: patamar acima de 200V, tensão de trabalho em torno de 600V e sensibilidade de 320cont/s à 10^{-1} mGy/h.

4

GEIGER-MÜLLER WITH A MICA WINDOW HALOGEN-QUENCHED
COUNTERS ASPECTS

Maria Sílvia GORSKI, Wilson A. BRUZINGA

COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR-SP
INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Caixa Postal 11049 - Pinheiros
05499 - São Paulo - BRASIL

ABSTRACT

In this work, we present the development of a model of a Geiger-Müller with likeness the model ZP 1410 Phyllips. The prototype has a cylindrical shape with 37mm of effective length and a mica window of 1,5 to 2,0mg/cm² thickness with a useful diameter of 19,8mm. For the window preparation and special cutting technique was developed. Basically two types of quenching agents, bromine and chlorine were studied. Due to the high corrosive nature of these gases, we work with treatment of surface of the cathode through electropolishment, chemical passiveness, hard chrome and nickel coating. Our main objective was to get a Geiger-Müller detector with an operational plateau over 200V, working voltage above 600V and a sensitivity of 320counts/sec at 10⁻¹mGy/h.

I. INTRODUÇÃO

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

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

Dentre as vantagens de um Geiger-Müller em suas aplicações, pode-se citar sua utilização como medidor de razão de dose portátil, pois a razão de contagens de radiação de fundo é baixa devido ao fato de ser baixa sua sensibilidade à gama e também pelo seu tamanho e simplicidade de operação. A tensão de trabalho também é baixa e possui um longo tempo de vida. Pode ser usado 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.Müller é utilizado para partículas alfa e às 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), negativo. 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 G.-Müller. O efeito é determinado pela combinação das propriedades do gás halogênio e o valor de resistor do ânodo. Esses contadores operam com resistências relativamente baixas e não produzem descargas contínuas, exceto quando submetidos à alta tensão. Eventos ionizan-

tes começam quando quanta de energia ou partículas penetram no tubo através da janela de mica ou paredes, colidindo com as moléculas do gás.

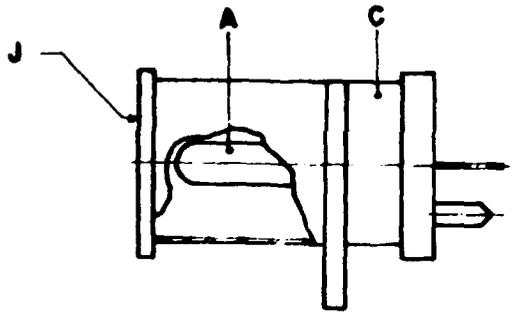


Fig. 1 - Detector Geiger-Müller - (J) - janela de mica, (C) - cátodo, (A) - ânodo.

II. MECANISMO DE FUNCIONAMENTO

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

Descargas elétricas em gases raros são capazes de excitar metaestados de relativa alta energia com tempos de vida longos. Introduzindo-se um outro gás com potencial de ionização menor ou igual à energia do metaestado do gás raro, pode ocorrer ionização por colisão. A probabilidade dessa transferência de energia é alta a ponto de apenas traços 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 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 ser menor que a 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 o cloro. O iodo, quimicamente menos reativo, pode condensar parcialmente nas paredes devido à curva de pressão de vapor (fig. 2).

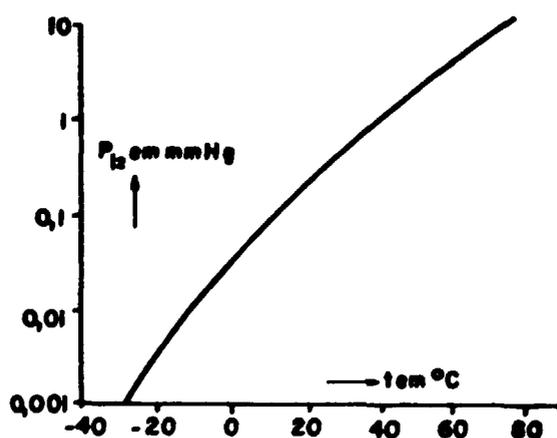
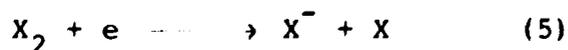


Fig. 2 - Curva de pressão de vapor para o iodo.

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



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	-	-

Tabela 1 - Propriedades dos gases (6).

Pi - potencial de ionização, Em - energia dos metaestados, Ea - eletroafinidade.

O neônio é o gás mais adequado para a confecção de Geiger-Müller (7) com um pouco de argônio para operação do detector em tensões mais baixas. Aumentando-se a sobre tensão de um detector neônio - halogênio, o número de átomos metaestáveis produzidos na descarga aumenta. O argônio pode ser ionizado pelos metaestados, pois, $E_m(\text{Ne}) > P_i(\text{Ar})$ - (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 detectores com tensões iniciais baixas (380V) e patamares longos (220V) antes que o processo de múltiplos pulsos (descargas) ocorra.

O detector Geiger-Müller 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-Müller não é a mesma para todo o volume do detector. Temos então uma região de volume sensível onde uma partícula incidente resulta em um pulso, ou seja, onde a eficiência do detector é constante.

III. PREPARAÇÃO DOS DETECTORES

Devido às propriedades dos coeficientes de expansão

térmica dos materiais envolvidos na confecção do detector, desenvolveu-se um vidro de solda, de baixo ponto de fusão, para as junções vidro-metal e mica-metal.

O metal ideal para cátodo e ânodo é o aço 446, que possui alto teor de cromo, resistente à corrosão dos haio gênios. A composição química desse aço, normalizado pela ASM (American Society for Metals) é a seguinte:

C(%)	Cr(%)	Ni(%)	Mn(%)	Si(%)	P(%)	S(%)	outros(%)
<0,20	23,00 27,00	-	<1,50	<1,00	<0,04	<0,03	- < 0,25

Devido a dificuldade de aquisição desse metal, utilizou-se também o aço 420, apesar do baixo teor de cromo (12 - 14)%, com diferentes tipos de revestimentos: níquel, du rotin e cromo duro e diferentes tratamentos químicos: pas sivação química, eletropolimento e nitretação. A escolha desse aço foi devido ao coeficiente de expansão ser próxi mo ao aço 446 e do vidro alcalino, utilizado na base do de tector, obedecendo as regras de aceitação para junção de materiais. (8,9).

O aço 446 utilizado foi de origem japonesa. Os detec tores fabricados com esse material apresentaram resultados superiores ao aço 420, com os diferentes tipos de revesti mentos.

A análise química, pela técnica de fluorescência de raios X no aço do modelo da Phillips, acusou a presença de 0,5% de níquel na composição do aço 446, que aumenta ain da mais a resistência à corrosão.

A- Confecção de vidro solda

Fez-se diversos tipos de vidro solda para o ajuste per feito das junções (10). As características essenciais para

essas junções são: teste de estanqueidade para 10^{-10} mlbar l/s e temperatura de solda menor que 460°C para evitar comprometimento da mica.

A melhor composição porcentual obtida foi: óxido de chumbo (81,63%), óxido de boro (12,25%), alumina (2,04%), óxido de silício (4,08%). A granulação selecionada foi em peneira de 400 mesh/polegadas.

B- Preparação da base do detector

O vidro alcalino possui coeficiente de expansão da ordem de $10 \cdot 10^{-6} \text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$ e temperatura de amolecimento em torno de 696°C . O vidro é moído em moinho de bolas de alumina e selecionado com peneira de 200 mesh/poleg.. A massa de cada pastilha é aproximadamente 2,6g aglutinada com solução de PVOH a 2%. A prensagem é feita com 5500Kg por um minuto em uma matriz de uma polegada de diâmetro interno. Antes da sinterização essas pastilhas são furadas na parte central para futura introdução do ânodo e lateralmente para o tubo de vidro de enchimento. A 530°C por uma hora é feita a liberação do aglutinante e a 640°C por 50 minutos a pré-sinterização. A etapa seguinte consiste em prender o ânodo na pastilha. Isso é feito a 740°C por uma hora com auxílio de um molde de grafite para evitar deformação e em atmosfera inerte para proteger o molde.

C- Corte e confecção da janela de mica

A escolha de mica de boa qualidade é essencial para o detector. Utilizou-se mica natural, tipo muscovita, brasileira, uma vez que a sintética não é nacionalizada. Escolhe-se as melhores regiões das placas, para evitar problemas de rompimento durante o processo de desgaseificação e enchimento. Isto pode ser feito com auxílio de luz polarizada. Com um bisturi ou agulha de seringa, as placas vão sendo separadas até a espessura desejada (8 a 10) microns.

É conveniente após uma certa espessura, separá-las dentro de uma cuba de água com iluminação adequada. Esta técnica é facilitada com placas de (40 por 50)mm. A seguir são cortadas com vazadores afiados fornecendo diâmetros de janelas de 23,2mm. São medidas, pesadas e catalogadas.

IV. MONTAGEM FINAL DOS DETECTORES

É feita a limpeza dos componentes com dese. xante , água deionizada, acetona e tricloroetileno no ultrassom. O vidro solda é pincelado na forma de pasta nas junções: vidro-metal e mica-metal. A temperatura de fusão é feita a 420°C, ocasionando uma ligeira oxidação no detetor que não chega a comprometer as características funcionais.

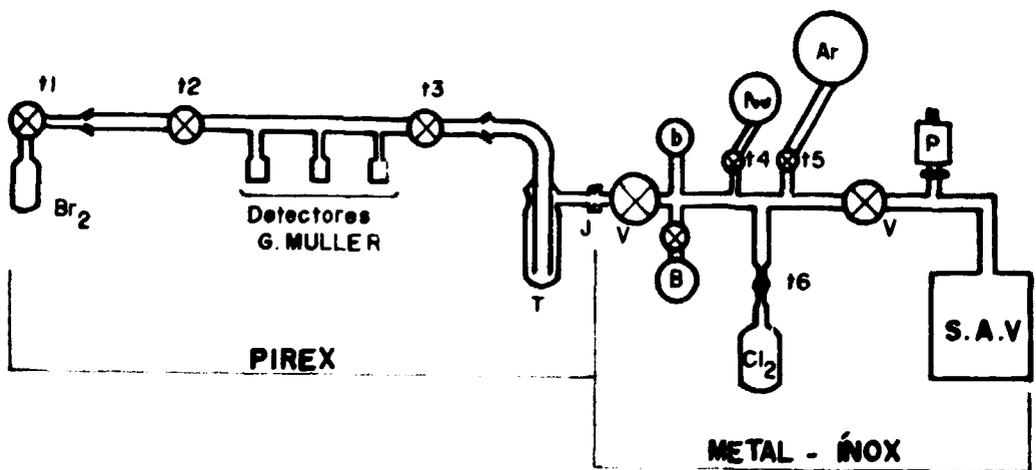


Fig. 3 - Sistema de desgaseificação e enchimento.

T_1, T_2, T_3 - válvulas de teflon e pirex, T - trap removível
 T_4, T_5, T_6 - válvulas de 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 Baraton MKS - 77.

Acopla-se o detector ao sistema de alto vácuo (fig. 3). A pressão desse sistema é da ordem de $(10^{-6} - 10^{-7})$ mbar. O detector é desgaseificado por um dia a 200°C . Faz-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 T_1 e T_3 por algumas horas sob atmosfera do halogênio para saturar o vidro e o metal, evitando possíveis absorções após o enchimento final. Finalmente, procede-se ao enchimento e sela-se.

Foram feitos detectores com cloro, bromo e misturas halógenas. Trabalhou-se com várias pressões parciais de neônio e argônio. As pressões do bromo (0,05 à 1,00)mmHg foram estimadas através do controle de temperatura de um gel com nitrogênio líquido e álcool ao redor do reservatório. A faixa de temperatura foi de $(-82$ a $-50)^{\circ}\text{C}$. Durante a remoção de resíduos do halogênio, usa-se nitrogênio líquido no trap removível. No caso do cloro e argônio, as pressões foram medidas pelo sensor baratron MKS 77, na faixa de (0,01 a 30)mbar. Para o neônio, usou-se o sensor EMV 251 da Edwards. O circuito associado ao detector para o "quenching" eletrônico e medições está representado na fig. 4. Com auxílio de um osciloscópio 7633 Tektronix, verificou-se a altura e início dos pulsos que variaram de 100mV a 3,0V. O contador de partículas utilizado não possui sensibilidade para pulsos com alturas menores que 500mV.

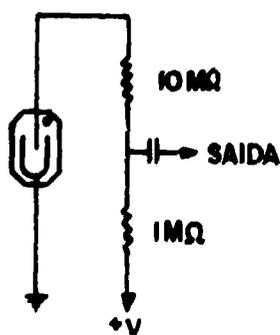


Fig. 4 - Circuito associado.

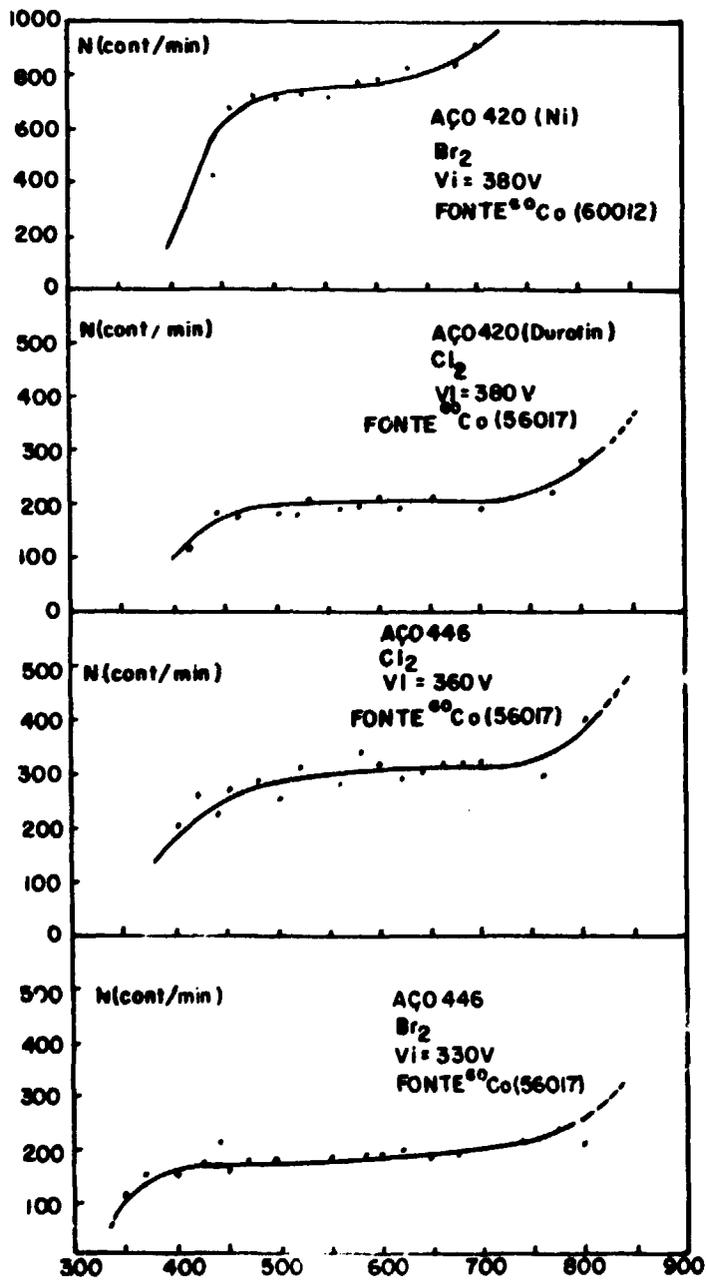


Fig. 5 - Curvas de patamares.

V. RESULTADOS

A relação 4:1 entre argônio e o halogênio, predita por LIEBSON (11), mostrou-se ideal para as boas características do detector mas acima de uma certa pressão parcial de argônio (0,8)mmHg, os detectores apresentaram um aumento de tensão inicial. Comprovou-se também a diminuição na razão de contagens com o aumento da concentração do halogênio. Provavelmente o volume efetivo do contador diminuiu 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 do detector são críticas. Tentativas de reenchimento, após a morte do detector, mesmo com aquecimento à alto vácuo, mostraram resultados distorcidos: 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 alguns dias antes das caracterizações serem feitas.

Impurezas como N_2 , O_2 e H_2O comprometem a inclinação do patamar. No caso da água aumenta a corrosão do material, provavelmente pela formação de ácidos pela ação do contador. É imprescindível a utilização de gases ultrapuros (12).

O aço 420 não se mostrou adequado para confecção de Geiger-Müller. Apesar dos diversos tipos de revestimentos: cromo duro, durotin e níquel, ocorreu o envelhecimento precoce dos detectores com redução dos patamares após algum tempo de uso. Análise das carcaças mostrou o ataque das superfícies internas dos detectores.

O aço 446 é a melhor opção. Detectores selados há mais de cinco meses continuam operando com patamares acima de 200v. As carcaças desse aço são mais resistentes à corrosão do halogênio.

As pressões parciais que apresentaram os melhores resultados foram: bromo/argônio na relação de 1/4 e argônio/neônio na relação de 1/500.

O bromo apresenta várias vantagens sobre o cloro: a corrosão é menor, o manuseio é mais fácil, pois é líquido à temperatura ambiente e o processo de enchimento mais fácil devido à sua curva de pressão de vapor. (13)

Realizou-se alguns testes com compostos clorados, não corrosivos, convenientes para agentes "quenching" (14); diclometano, dicloroetano, tricloroetano, tetracloreto de carbono e tricloroetilano. 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 fotoeletrons no cátodo (5,0eV). Aumentando-se a função trabalho do cátodo, alguns desses compostos tornam-se promissores na confecção de detectores Geiger-Müller.

VI. COMENTÁRIOS FINAIS

O modelo escolhido é utilizado na área de Proteção Radiológica, com capacidade para detectar e avaliar campos de radiação ionizantes, seguindo recomendações referentes às normas básicas de segurança, seja em hospitais, indústrias ou laboratórios em geral. Trata-se de um modelo de detector que possa atender aos requisitos comerciais e industriais no mercado nacional.

Atualmente, os detectores tipo Geiger-Müller tem como maior fornecedor mundial a Philips. O Brasil, bem como outros países da América do Sul não dominam a tecnologia de fabricação em escala industrial desse tipo de detector. O custo unitário do ZP 1410, importado é da ordem de 25 dola

res.

A tecnologia disponível no mercado nacional para uma possível fabricação em escala comercial desse componente não é favorável no momento. Uma análise de custo desse modelo, envolve três partes: a base de vidro e o vidro solda, a preparação da mica e o aço.

Para fabricação em série, a base de vidro deveria ser fundida com o tubo de enchimento e o ânodo centralizado. As firmas que trabalham com vidro fundido, consultadas, não dispõem de máquinas para isso. A preparação da base, na forma sinterizada envolve etapas delicadas e artesanais, que aumentam o custo do detector.

O vidro solda é composto por materiais de alta pureza e a fusão é feita em cadinho de platina. A massa após moagem à mão e seleção granulométrica é de 10 gramas para um cadinho de 20ml. A importação do vidro solda equivalente da Schott é de U\$ 500 para 100 gramas.

O manuseio e preparação da janela de mica é delicado. A mica muscovita natural possui regiões com deposições metálicas e "stress" resultantes dos veios de crescimento. O selecionamento das regiões adequadas deve ser rigoroso. O coeficiente de expansão térmica é de $3,6 \cdot 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$, diferente do metal. A aderência pelo vidro solda é resultante da baixa espessura da janela e sua grande flexibilidade. Durante o processo de desgaseificação, feito em alto vácuo pode ocorrer o rompimento da mesma.

A fabricação do aço adequado na confecção do detector é feita sob encomenda na forma de tarugo com diâmetro de uma polegada ao preço aproximado de U\$ 20 por quilo, para um pedido mínimo de 0,5 tonelada.

Baseando-se nas considerações acima, o custo unitário estimado, envolvendo mão de obra especializada, seria acima de 150 dólares, sem considerar a infraestrutura, que para uma produção de 30 detectores por mês, seria em torno de U\$ 220.000.

Salienta-se porém, que os parâmetros de fabricação re

ferentes ao funcionamento e caracterização envolvidos na confecção do detector acham-se dominados para possíveis aplicações futuras.

VII. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. PRESENT, R.D. On Self-Quenching Halogen Counters. Phys.Rev., 72:243, 1947.
2. LIEBSON, S.H. The discharge mechanism of self-quenching G. Müller counters, Phys. Rev., 72:181, 1947.
3. KORFF, S.A. & PRESENT, R.D. On the role of polyatomic gases in fast counters. Phys. Rev., 65:274, 1944.
4. LIEBSON, S.H. & FRIEDMAN, H. Self quenching halogen filled counters. Rev. Sci. Instrum., 19:303, 1948.
5. VAN ZOONEN, D. & PRAST JR., G. Properties of argon-bromine counters. Appl. Sci. Res., B3:1, 1953.
6. LOEB, L.B. Fundamentals process of electrical discharge in gases. N.Y., 1939.
7. LE CROISSETTE, D.H. & YARWOOD, J. The gas filling and some characteristics of bromine-quenched G.M. counters. J. Sci. Instrum., 28:225, 1951.
8. BOLETIN Informativo Schott - 4823/2e.
9. THERMAL expansion Mismatch and Stress in Seals, Electronic Packaging and Production. July 1978, p.182-90.
10. DALTON, R.H. Solder glass sealing. J. Amer. Ceram. Soc., 39(3):109, 1956.
11. LIEBSON, S. Characteristics of halogen counters. Rev. Instrum., 20:483, 1949.

12. SRDOC, D. Gas discharge mechanism and properties of halogen-quenched counters. Nucl. Instrum. Methods, 99:321, 1972.
13. PERRY, R.H. & CHILTON, C.H. Chemical engineers had book. 5.ed. New York, Mc GrawHill, 1973.
14. MEUNIER, R.; BONPASS, M.; LEGRAND, J.P. Les compteurs de G. Müller. A melange binaire: gas rares, vapeur organique. J. Phys. Radium., 14:630, 1953.