

ESTUDO DO TEMPO DE DECAIMENTO, RESOLUÇÃO ENERGÉTICA, TRANSMITÂNCIA E LUMINESCÊNCIA EM CRISTAIS DE IODETO DE CÉSIO ATIVADOS COM TÁLIO [CsI(Tl)]

Maria da Conceição Costa Pereira, Margarida Mizue Hamada, Tufic Madi Filho e Carlos Henrique de Mesquita

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN-CNEN/SP
Caixa Postal 11049
05422-970, São Paulo, Brasil

RESUMO

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

I. INTRODUÇÃO

O cristal de iodeto de cério ativado com tálio [CsI(Tl)] é utilizado como sensor de radiação devido às suas características favoráveis como cintilador.^[1] Possui boa resistência mecânica, é pouco higroscópico e o seu espectro de emissão luminosa coincide com a região de sensibilidade dos fotodiodos tipo PIN.^[2,3,4]

Até a década passada o uso do cristal de CsI(Tl) acoplado à fotomultiplicadora foi desestimulado pelo cristal de iodeto de sódio [NaI(Tl)] devido a este apresentar melhor sobreposição do espectro de luminescência em função da eficiência quântica das fotomultiplicadoras.^[4,5] O recente desenvolvimento e disponibilidade no mercado de fotodiodos de silício com baixa capacitância e grande área de sensibilidade têm estimulado os projetos de detectores com o CsI(Tl) substituindo as fotomultiplicadoras pelos fotodiodos.^[3,6,7]

Os fotodiodos apresentam vantagens sobre as fotomultiplicadoras em virtude de seu tamanho, peso, resistência mecânica e principalmente por operarem com tensões da ordem de 30V comparados aos 1000 a 2000V de tensão de operação das fotomultiplicadoras.^[3] Adiciona-se

a este fato a possibilidade de desenvolver os cristais de CsI(Tl) sem os problemas de higroscopicidade próprias do cristal de NaI(Tl).

O cristal de CsI(Tl) é considerado um dos cintiladores mais adequados para ser acoplado aos fotodiodos tipo PIN devido ao seu espectro de emissão luminosa coincidir com a distribuição espectral do fotodiodo.^[8,9,10] A combinação do fotodiodo com o cristal de CsI(Tl) reúne as qualidades de alta sensibilidade, eficiência e boa resolução energética nas medidas de radiação X e gama e para identificação de partículas.^[4,11]

O objetivo do presente trabalho foi o estudo do tempo de decaimento de luminescência, transmitância, espectro de luminescência e resolução energética em cristais de iodeto de cério ativados com tálio [CsI(Tl)] com concentração molar de 10^{-3} , crescidos pela técnica de Bridgman.

II. PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

O crescimento dos cristais de CsI(Tl) foi efetuado pela técnica de Bridgman^[9], utilizando-se forno de duas

zonas (quente e fria), tubo de quartzo em vácuo (10^{-6} mbar) e sal de CsI com pureza de 99,99% (Alemanha).

O tempo de decaimento de luminescência, foi determinado pela análise do sinal de anodo da fotomultiplicadora amostrado na tela de um osciloscópio (Philips modelo PM 3295A) e registrado fotograficamente. Com a fotografia do sinal de anodo da fotomultiplicadora foram obtidos os pares: altura de pulso [mV] em função do tempo (μ s). A partir do gráfico dos dados obtidos em escala semi-logarítmica foi calculada a inclinação da reta H. O tempo de decaimento foi determinado pelo inverso deste valor.

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

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

No estudo da espectrometria gama, o cristal foi usado nas dimensões de 20mm de diâmetro por 20mm de altura, polido e acoplado diretamente à fotomultiplicadora bi-alkalina (Amperex modelo XP2202B) usando-se graxa de silicone (Dow Corning) de viscosidade de 0,5McStokes^[12] como interface óptica. As fontes radioativas foram posicionadas no centro da face superior do cristal. Os módulos eletrônicos utilizados para o tratamento dos sinais provenientes da fotomultiplicadora foram os seguintes:

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

Posteriormente, os mesmos cristais de CsI(Tl) foram acoplados opticamente com a graxa de silicone a

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

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

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

A resolução energética do sistema detector cristal de CsI(Tl) acoplado à fotomultiplicadora foi determinada utilizando-se fontes de radiação gama. A tensão de operação da fotomultiplicadora foi de 1300V, e o tempo de acumulação no processo de contagem foi de 300s. Foi estudada também a resolução energética do detector cristal de CsI(Tl) acoplado ao fotodiodo tipo PIN, associado a um gerador de pulsos para determinar o efeito do ruído do sistema eletrônico. A tensão de operação de alimentação do fotodiodo foi de 30V.

A resolução intrínseca foi calculada pela expressão:

$$\text{Resolução intrínseca} = \sqrt{(R_{\text{Bruta}})^2 - (R_{\text{Pulsador}})^2}$$

onde:

R_{Bruta} é a resolução bruta do fotopico;

R_{Pulsador} é a resolução do gerador de pulsos.

III. RESULTADOS E DISCUSSÕES

O valor do tempo de decaimento de luminescência determinado experimentalmente foi de $1,06 \mu\text{s}$. A Figura 1 mostra o registro obtido.

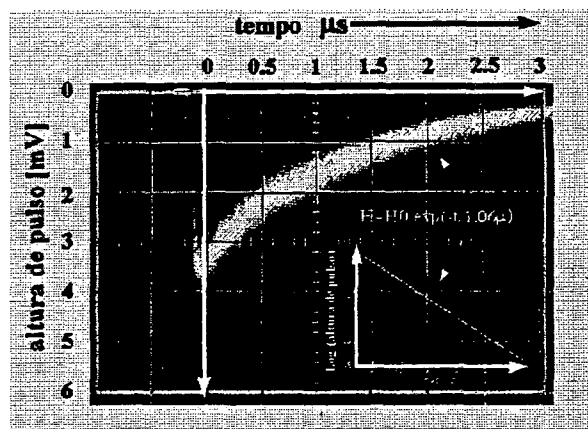


Figura 1. Sinal do Anodo da Fotomultiplicadora no Cristal Cintilador CsI(Tl).

O valor experimental da constante de decaimento da luminescência é compatível com os encontrados na literatura.^[1,13] Esse parâmetro contribui com outro aspecto da qualidade do cristal desenvolvido neste trabalho. O tempo de decaimento da luminescência do cristal de CsI(Tl) de acordo com a literatura está associado com o dopante tálio.^[5,8]

Os espectros de transmitância e emissão de luminescência do cristal de CsI(Tl) desenvolvido pela técnica de Bridgman, estão apresentados conforme o gráfico da Figura 2.

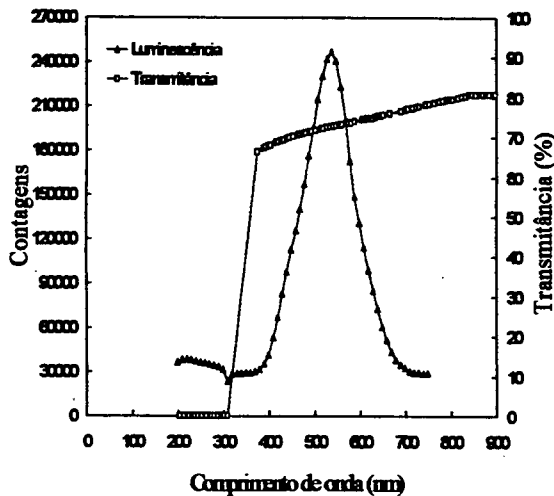


Figura 2. Espectros de Luminescência e Transmitância em Função do Comprimento de Onda para o Cristal de CsI(Tl).

Os aspectos cristalográficos estão intimamente correlacionados com a qualidade de transparência do cristal. O comprimento de onda de máxima luminescência foi de 540nm (Figura 2) cujo valor está de acordo com os apresentados na literatura^[13,14]. O pico de luminescência em 540nm é atribuído à luminescência dos íons tálio no cristal.^[1,13] A transmissão óptica no intervalo de luminescência foi aproximadamente 75% caindo praticamente ao nível de zero para comprimentos de onda abaixo de 320nm. Estes resultados evidenciam a existência de uma adequada sobreposição entre a capacidade de transmitância do cristal e a sua região de luminescência. Em geral, para caminhos ópticos da ordem de alguns centímetros, a atenuação é completamente dominada pela reflexão e pelas perdas por espalhamento nas superfícies. Nessas condições a transmissão não está propriamente correlacionada com a espessura do cristal sendo provavelmente mais fortemente dependente da qualidade do polimento da superfície^[15] e seu acoplamento com o fotosensor.

Os espectros de energia apresentados nas Figuras 3 a 5 ilustram os resultados da espectrometria gama para as radiações do ^{60}Co , ^{137}Cs e ^{54}Mn obtidos com o sistema cristal de CsI(Tl) acoplado à fotomultiplicadora. Os valores percentuais acima do fotopico representam a resolução energética.

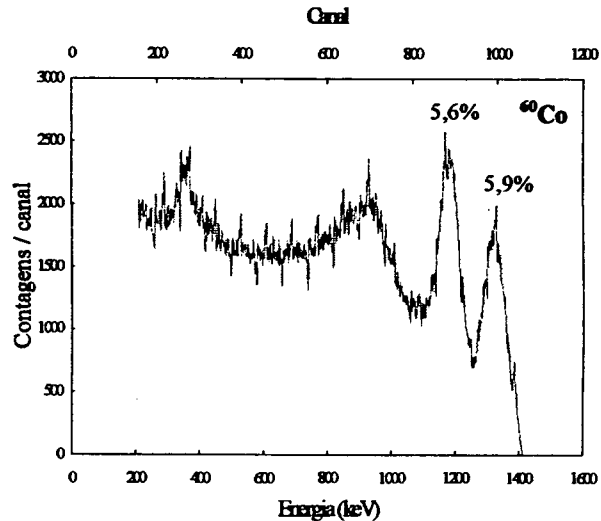


Figura 3. Espectro de Energia Obtido para a Radiação do ^{60}Co com o Cristal de CsI(Tl) Acoplado à Fotomultiplicadora.

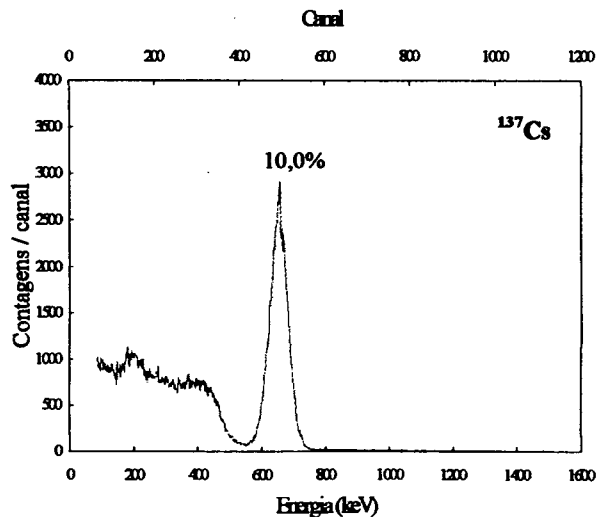


Figura 4. Espectro de Energia Obtido para a Radiação do ^{137}Cs com o Cristal de CsI(Tl) Acoplado à Fotomultiplicadora.

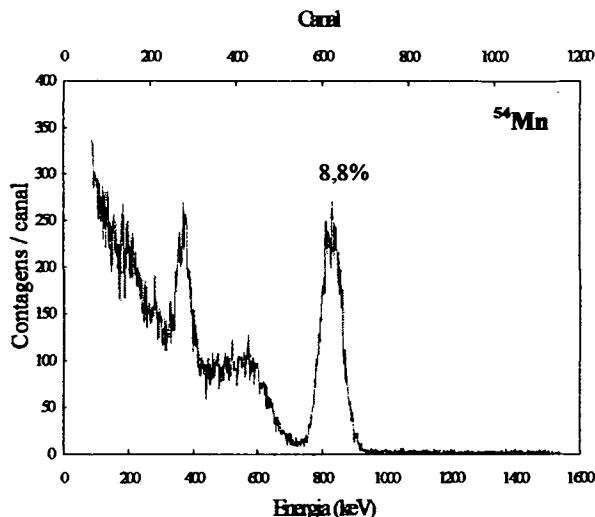


Figura 5. Espectro de Energia Obtido para a Radiação do ^{54}Mn com o Cristal de CsI(Tl) Acoplado à Fotomultiplicadora.

Os espectros de energia apresentados nas Figuras 6 a 8 ilustram os resultados da espectrometria gama para as radiações do ^{60}Co , ^{137}Cs e ^{54}Mn obtidos com o cristal de CsI(Tl) acoplado opticamente ao fotodiodo PIN. Os valores percentuais acima do fotopico representam a resolução energética bruta, os valores entre parênteses representam a resolução intrínseca.

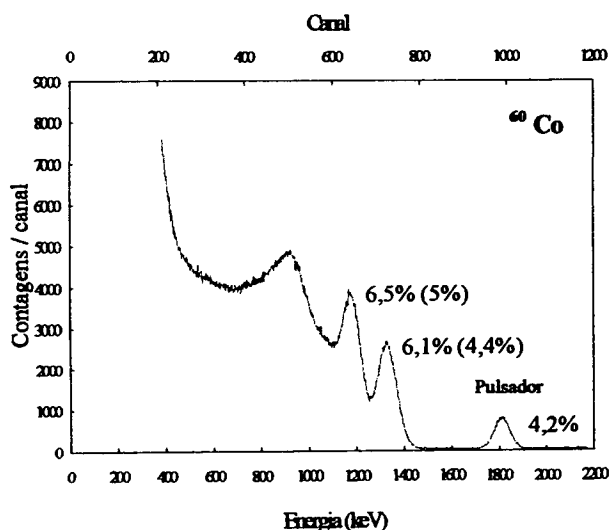


Figura 6. Espectro de Energia Obtido para a Radiação do ^{60}Co com o Cristal de CsI(Tl) Acoplado ao Fotodiodo.

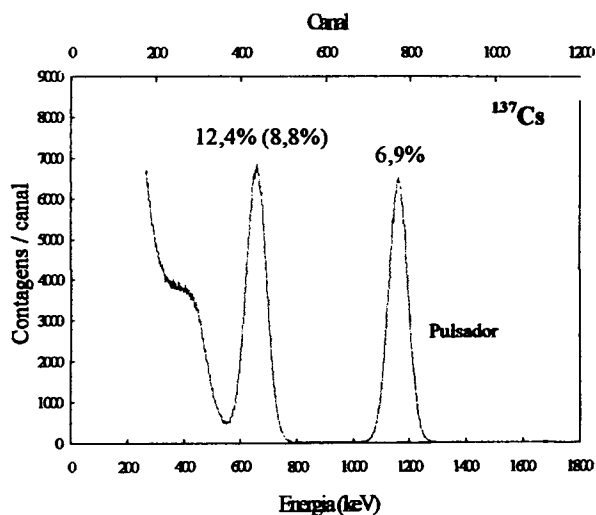


Figura 7. Espectro de Energia Obtido para a Radiação do ^{137}Cs com o Cristal de CsI(Tl) Acoplado ao Fotodiodo.

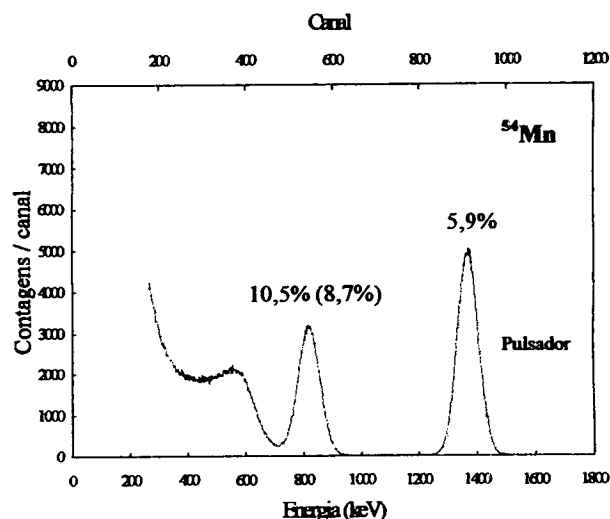


Figura 8. Espectro de Energia Obtido para a Radiação do ^{54}Mn com o Cristal de CsI(Tl) Acoplado ao Fotodiodo.

Nas configurações utilizando-se fotomultiplicadora e fotodiodo, o parâmetro resolução foi avaliado e os valores encontrados foram semelhantes àqueles já descritos na literatura^[2,5,10]

No atual desenvolvimento da tecnologia o uso dos fotodiodos ainda esbarra em algumas dificuldades principalmente no tocante às radiações de baixas energias. Essa limitação está associada ao fato de que os fotodiodos intrinsecamente não dispõem de amplificadores de corrente como nas fotomultiplicadoras. Portanto, para as baixas energias a corrente é relativamente muito baixa sendo

necessários uma instrumentação complementar muito sensível.

A resolução energética é sensível ao ruído de fundo do sistema detector e tem como componente a corrente no escuro a qual é devida a fenômenos termoiônicos. Nesse sentido as modernas fotomultiplicadoras apresentam melhor performance, isto é, a razão sinal ruído é mais favorecida para as fotomultiplicadoras relativamente ao fotodiodo.^[16,17] O ruído termoiônico pode ser reduzido refrigerando-se o ambiente em que se encontra o fotodiodo, pois a corrente no escuro em função da temperatura cresce exponencialmente, portanto é conveniente trabalhar com o sistema detector em ambiente refrigerado principalmente quando se deseja alcançar boa resolução no sistema. Outro componente de ruído tem sua origem na capacitância gerada pela região de depleção do fotodiodo. Esse componente de ruído pode ser minimizado fazendo-se uso de fotodiodos de pequena área sensível e aumentando-se a tensão inversa de polarização. O uso de fotodiodos pequenos apresenta um sério inconveniente pois são pouco eficientes para detectar a radiação ou os fótons de luz do cintilador. Reduzindo-se o volume do cristal cintilador cria-se um conflito de aplicação pois na grande maioria dos usos do detector deseja-se alcançar alta eficiência de contagem dos sinais. Até o momento, os fotodiodos com área de $10 \times 10 \text{ mm}^2$ são os que oferecem o melhor compromisso entre, eficiência de detecção e capacitância intrínseca.^[2,4] O outro recurso que se dispõe para reduzir a capacitância intrínseca consiste em aumentar a tensão reversa. Na prática a tensão reversa dos fotodiodos comerciais encontra-se no limite de aproximadamente 100V. Experimentalmente tensões reversas a partir de 30V não resultam em melhoria significativa na diminuição do ruído de fundo.

IV. CONCLUSÕES

O tempo de decaimento da luminescência obtido neste trabalho foi $1,06 \mu\text{s}$, o qual é compatível com os valores descritos na literatura.

A análise dos espectros de luminescência e transmitância em função do comprimento de onda mostrou uma sobreposição adequada entre a curva de luminescência e a transmitância, garantindo deste modo que o cristal é praticamente transparente à sua própria cintilação. O espectro de luminescência do cristal de CsI(Tl) é o que apresenta a melhor correlação com o espectro de eficiência quântica do fotodiodo PIN dentre os cristais cintiladores conhecidos. Isto demonstra a vantagem em utilizar o cristal de CsI(Tl) acoplado ao fotodiodo, como inicialmente proposto.

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

REFERÊNCIAS

- [1] GRASSMANN, H. ; MOSER, H. G.; DIETL, H. ; EIGEN, G. ; FONSECA, V.; LORENZ, E. ; MAGERAS, G. Improvements in photodiode, readout for small CsI(Tl) crystal. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, v.A234, p.122-124, 1985.
- [2] GONG, W.G.; KIM, Y.D.; POGGI, G.; CHEN, Z.; GELBKE, C.K.; LYNCH, W.G.; MAIER, M.R.; MURAKAMI, T.; TSANG, M.B. and XU, H.M. Resolution tests of CsI(Tl) scintillators readout by PIN diodes. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, v. A268, p.190-199,1988.
- [3] GUNJI, S. ; HANADA, N. ; KOSHINO, T. ; KAMAE, T. ; MIYASAKI, S.; TAKAHASHI, T. ; TAMURA, T. ; YAMAGAMI, T.; MURAKAMI, H. ; MORI, K. ; TANAKA, H.; YAMAMOTO, K. Use of a large area photodiode in CsI(Tl) scintillation counters. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, v.A295, p. 400-404, 1990.
- [4] HAMADA, M.M.; MESQUITA, C. H.; RELA, P. R.; HASHIMOTO, T. ; SHIRAISHI, F. Estudo do desempenho da combinação do cristal de CsI(Tl) com fotodiodo tipo PIN. In: CONGRESSO GERAL DE ENERGIA NUCLEAR, 4º, Julho 5-9, 1992, Rio de Janeiro. *Anais...* Rio de Janeiro: Associação Brasileira de Energia Nuclear, 1992. v.2, p. 611-614.
- [5] HAMADA, M.M. ; HASHIMOTO, T. ; SHIRAISHI, F. Performance of CsI(Tl) crystal coupled to photodiode. In: sixth workshop on radiation detectors and their uses, January 29-30, 1991, Japan. *Proceedings...* Japan: KEK, 1991. p. 55-57.
- [6] KREUTZ, P.; KUHMICHEL, A.; PINKENBURG, C.; POCHODZALLA, J.; GUO, Z.Y.; LYNEN, H.S.; TRAUTMANN, W. and TROCKEL, R. Photodiode readout and pulse analysis of CsI(Tl) scintillator signals. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, v. A260, p.120-123, 1987.
- [7] MOSZYNSKI, M.; WOLSKI, D.; LUDZIEJEWSKI, T. Particle identification by digital charge comparison method applied to CsI(Tl) crystal coupled to photodiode. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, v.A336, p.587-590, 1993.
- [8] HOLL, I.; LORENS, E. ; MAGERAS, G. A measurement of the light yield of common inorganic scintillators. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, v.35 (1), p.105-109, 1988.
- [9] KUBOTA, S. ; SAKURAGUI, S. ; HASHIMOTO, S. ; RUAN, J. A new scintillation material: Pure CsI with 10ns decay time. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, v. A268, p.275-277, 1988.

[10] SAKAI, E Recent measurement scintillator photodetector systems. *IEEE Trans. Nucl.Sci.*, NS-34 (1), p.418-422, 1987.

[11] GUINET, D.; CHAMBON, B.; CHEYNIS, B.; DEMEYER, A.; DRAIN, D.; HU, X.C.; PASTOR, C.; VAGNERON, L.; ZAID, K.; GIORNI, A.; HEUER, D.; LLERES, A.; VIANO, J.B.; Using the combination CsI(Tl) and photodiode for identification and energy measurement of light particles. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, v.A278, p.614-616, 1989.

[12] HAMADA, M. M.; MADI F^o, T.; MESQUITA, C.H. Estudo do acoplamento óptico de detectores plásticos cintiladores: avaliação de diferentes produtos de silicone. In: CONGRESSO GERAL DE ENERGIA NUCLEAR, 3^o, julho 22-27, 1990, Rio de Janeiro. *Anais...* Rio de Janeiro: Associação Brasileira de Energia Nuclear, 1990. v.3, p. 18.

[13] SCHOTANUS, R.; KAMERMANS, R.; DORENBOS. P. Scintillation characteristics of pure and Tl-doped CsI crystals. *IEEE Trans. Nuclear Sci.*, v.37(2), p.177-182, 1990.

[14] KNOLL, G.F. *Radiation detection and measurement*. 2nd.edition, New York, N.Y.:John Wiley, 1989.

[15] VIEHMANN, W.; ARENS, J.F. Optical transmission measurements on monocrystalline and polycrystalline cesium iodide. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, v.A116, p.283-295, 1974.

[16] HAMAMATSU. *Photodiodes*, cat. N^o KPD0001 E05, Aug.1996.

[17] HAMAMATSU. *Photomultiplier Tubes*, Jan.1989.

ABSTRACT

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

the effectiveness of the scintillator CsI(Tl) coupled to a PIN photodiode for applications in the area of radiation detectors.