



**INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES**  
**Autarquia Associada à Universidade de São Paulo**

**Desenvolvimento de detector de nêutrons utilizando cristal cintilador de CsI  
dopado com Li**

**JOSÉ ROBERTO BERRETTA**

**Tese apresentada como parte dos  
requisitos para obtenção do Grau de  
Doutor em Ciências na Área  
de Tecnologia Nuclear - Aplicações**

**Orientador:  
Prof. Dr. Carlos Henrique de Mesquita**

**São Paulo  
2023**

**INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES**  
**Autarquia Associada à Universidade de São Paulo**

**Desenvolvimento de Detector de Nêutrons utilizando cristal cintilador de CsI  
dopado com Li**

**Versão Corrigida**

**Versão Original disponível no IPEN**

**JOSÉ ROBERTO BERRETTA**

**Tese apresentada como parte dos  
requisitos para obtenção do Grau de  
Doutor em Ciências na Área  
de Tecnologia Nuclear- Aplicações**

**Orientador:  
Prof. Dr. Carlos Henrique de Mesquita**

**São Paulo  
2023**

Fonte de Financiamento: IPEN/CNEN

Autorizo a reprodução e divulgação total ou parcial deste trabalho, para fins de estudo e pesquisa, desde que citada a fonte.

Como citar:

BERRETTA, J. R. ***Desenvolvimento de Detector de Nêutrons utilizando cristal cintilador de CsI dopado com Li***. 2023. 112 f. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN-CNEN, São Paulo. Disponível em: <<http://repositorio.ipen.br/>> (data de consulta no formato: dd/mm/aaaa)

Ficha catalográfica elaborada pelo Sistema de geração automática da Biblioteca IPEN, com os dados fornecidos pelo(a) autor(a).

Berretta, José Roberto

Desenvolvimento de Detector de Nêutrons utilizando cristal cintilador de CsI dopado com Li / José Roberto Berretta; orientador Carlos Henrique de Mesquita. -- São Paulo, 2023.

112 f.

Tese (Doutorado) - Programa de Pós-Graduação em Tecnologia Nuclear (Aplicações) -- Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo, 2023.

1. Cristais cintiladores. 2. Detectores de nêutrons. 3. Cristais dopados com Li. 4. Técnica de Monte Carlo. I. Mesquita, Carlos Henrique de, orient. II. Título.

## DEDICATÓRIA

Dedico o trabalho à meus pais Nair e Edon que sempre me incentivaram a trilhar por essa profissão. À minha esposa Valdirene que sempre esteve ao meu lado, pelo apoio e dedicação.

## **AGRADECIMENTOS**

Agradeço em primeiro lugar a Deus por ter tido pais tão maravilhosos.

Agradeço ao meu orientador Dr. Carlos Henrique de Mesquita por dar suporte à conclusão deste trabalho

Agradeço à Dra Maria da Conceição Costa Pereira e ao Dr. Tufic Madi Filho, meus mestres que me incentivaram desde os primeiros momentos da minha carreira no Ipen.

Agradeço ao Dr. Paulo de Tarso Dalledone Siqueira e ao M.Sc Antonio Carlos Iglesias Rodrigues, pelo grande auxílio com o código MCNP.

Agradeço ao colega Davilson Gomes da Silva pelos trabalhos em artes gráficas e fotos.

Aos meus pais Nair e Edon por terem me mostrado o valor da educação.

***“No princípio, Deus criou os céus e a terra”***

## RESUMO

BERRETTA, J. R. **Desenvolvimento de Detector de Nêutrons utilizando cristal cintilador de Csl dopado com Li.** 2023. 112 p. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN-CNEN, São Paulo.

A detecção da radiação e a medida de suas propriedades são requisitos para o desenvolvimento de todas as áreas da tecnologia nuclear e suas aplicações. Entre as suas aplicações, destacam-se: a pesquisa científica, a aplicação médica, a operação de reatores, a área de proteção radiológica e as aplicações industriais. A detecção dos nêutrons não é trivial, tendo em vista a falta de cargas elétricas dessas partículas e a peculiaridade de suas interações com a matéria. Outra dificuldade na detecção de nêutrons é que a radiação emitida pela fonte de nêutrons está sempre acompanhada de radiações de outras naturezas, o que dificulta a discriminação eletrônica dos impulsos gerados pelos nêutrons, dos gerados por outras radiações. Neste trabalho, foram estudados cristais baseados em Csl para aplicação como detectores de nêutrons usando como dopante o Li, avaliando a resposta de detecção de nêutrons em diferentes concentrações de dopantes (entre  $10^{-1}$  M a  $10^{-4}$  M). A reação do nêutron com o Li é dada como:  $n + {}^6\text{Li} \rightarrow {}^3\text{H}(2,75 \text{ MeV}) + {}^4\text{He}(2,05 \text{ MeV})$  com  $\sigma = 940 \text{ b}$ . Foram feitos estudos com nêutrons provenientes da fonte de AmBe incidindo em blocos de parafina e avaliando a resposta dos detectores aos nêutrons termalizados incidentes no cristal. Um cristal puro de Csl foi usado como referência para avaliar o ganho de eficiência com o aumento da concentração de dopante na matriz Csl. O código MCNP foi usado para avaliar qual a melhor espessura do cristal cintilador para a obtenção de maior eficiência de detecção de nêutrons.

Palavras-chave: cristal cintilador, detector de nêutrons, lítio-6, MCNP

## ABSTRACT

BERRETTA, J. R. **Development of Neutron Detector Using Li-Doped CsI Scintillator Crystal**. 2023. 112 p. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN-CNEN, São Paulo.

The detection of radiation and the measurement of its properties are requirements for the development of all areas of nuclear technology and its applications. Among its applications, the following stand out: scientific research, medical application, reactor operation, radiation protection and industrial applications. The detection of neutrons is not trivial, considering the lack of electric charges of these particles and the peculiarity of their interactions with matter. Another difficulty in detecting neutrons is that the radiation emitted by the neutron source is always accompanied by radiation of other natures, which makes it difficult to electronically discriminate impulses generated by neutrons from those generated by other radiations. In this work, crystals based on CsI were studied for application as neutron detectors using Li as a dopant, evaluating the neutron detection response to different concentrations of dopants (from  $10^{-1}$  M to  $10^{-4}$  M). The reaction of the neutron with Li is given as:  $n + {}^6\text{Li} \rightarrow {}^3\text{H}(2.75 \text{ MeV}) + {}^4\text{He}(2.05 \text{ MeV})$  with  $\sigma = 940 \text{ b}$ . Studies were carried out with neutrons from the AmBe source focusing on paraffin blocks and evaluating the response of the detectors to thermalized neutrons incident on the crystal. A pure CsI crystal was used as a reference to evaluate the efficiency gain with increasing dopant concentration in the CsI matrix. The MCNP code was used to evaluate the best thickness of the scintillator crystal to obtain the highest neutron detection efficiency.

Keywords: scintillator crystal, neutron detector, lithium-6, MCNP.



## LISTA DE TABELAS

Tabela 3.1 - Nêutrons Produzidos em Aceleradores.....	29
Tabela 4.1 - Fontes de radiação usadas neste trabalho.....	55
Tabela 5.1 - Tabela de Transmitância em função do comprimento de onda para os cristais de CsI puro e CsI:Li.....	61
Tabela 5.2 - Valores de energia da <i>band gap</i> .....	64
Tabela 5.3 - Contagens obtidas com os cristais estudados neste trabalho à incidência de nêutrons.....	92

## LISTA DE ILUSTRAÇÕES

Figura 3.1 - Participação de cada tipo de interação da radiação eletromagnética com a variação do número atômico Z e da energia dos fótons.....	24
Figura 3.2 - Núcleo do reator IEA-R1 operando a potência de 3,5 MW.....	25
Figura 3.3 - Composição das componentes de um espectro típico de energia dos nêutrons de um reator nuclear.....	26
Figura 3.4 - Espectro de Energia dos nêutrons do Reator IPEN/MB-01.....	27
Figura 3.5 - Esquema de detector de nêutrons e seus componentes.....	34
Figura 3.6 - Montagem típica de um detector cintilador com fotomultiplicadora....	35
Figura 3.7 - Estrutura de banda de energia em um cristal cintilador: a) Cristal puro e b) Cristal com ativador.....	36
Figura 3.8 - Crescimento de cristais por solidificação normal pelo método Bridgman.....	42
Figura 4.1 - Esquema de corte do cristal de CsI:Li $10^{-3}$ M.....	45
Figura 4.2 - Cristal de CsI:Li revestido com fita de teflon.....	47
Figura 4.3 - Montagem do cristal acoplado com a fotomultiplicadora com graxa de silicone Dow Corning.....	48
Figura 4.4 - Montagem Experimental., Base da fotomultiplicadora, Fotomultiplicadora + cristal de CsI:Li, capa de cádmio, moderador de parafina e blindagem.....	49
Figura 4.5 - Montagem Experimental: Fotomultiplicadora, base, cristal e fonte de nêutrons.....	49
Figura 4.6 - Arranjo eletrônico usado no experimento.....	50
Figura 4.7 - Montagem esquemática do experimento.....	51

Figura 4.8 - Identificação da fonte de nêutrons usada neste trabalho.....	52
Figura 4.9 - Fonte de nêutrons, detalhe lateral.....	52
Figura 4.10 - Fonte de nêutrons, detalhe superior.....	53
Figura 4.11 - Desenho da cápsula da fonte de nêutrons.....	53
Figura 4.12 - Espectro de energia de nêutrons da fonte de AmBe de acordo com o padrão ISO 8529.....	54
Figura 4.13 - Caminho aleatório de um nêutron rápido em processo de termalização com átomos do meio material até ser absorvido, conforme simulação com o código MCNP – versão 6.....	57
Figura 5.1 - Cristal de CsI:Li; a) $10^{-2}$ M; b) $10^{-3}$ M e c) $10^{-4}$ M.....	58
Figura 5.2 - Curvas de transmitância em função do comprimento de onda para os cristais de CsI puro e de CsI:Li com concentrações de dopante de $10^{-4}$ M a $10^{-1}$ M.....	60
Figura 5.3 - Curva de eficiência quântica da fotomultiplicadora RCA 8575.....	62
Figura 5.4 - Espectros de luminescência para os cristais de CsI puro e de CsI:Li $10^{-4}$ M, $10^{-3}$ M, $10^{-2}$ M e $10^{-1}$ M utilizando radiação gama do $^{137}\text{Cs}$ .....	63
Figura 5.5 - Distribuição da concentração de lítio no volume cristalino.....	65
Figura 5.6 - Difratograma de raio X do cristal de CsI puro.....	66
Figura 5.7 - Difratograma de raio X do cristal de CsI:Li de $10^{-3}$ M.....	67
Figura 5.8 - Medida de BG para o cristal de CsI:Li de $10^{-2}$ M.....	68
Figura 5.9 - Medida de BG para o cristal puro utilizado como referência.....	69
Figura 5.10 - Espectro de $\gamma$ do $^{137}\text{Cs}$ com o cristal de CsI puro utilizado como referência.....	70
Figura 5.11 - Espectro de $\gamma$ do $^{137}\text{Cs}$ com o cristal de CsI:Li de $10^{-4}$ M.....	70

Figura 5.12 - Espectro de $\gamma$ do $^{137}\text{Cs}$ com o cristal de CsI:Li de $10^{-3}$ M.....	71
Figura 5.13 - Espectro de $\gamma$ do $^{137}\text{Cs}$ com o cristal de CsI:Li de $10^{-2}$ M.....	71
Figura 5.14 - Espectro de $\gamma$ do $^{137}\text{Cs}$ com o cristal de CsI:Li de $10^{-1}$ M.....	72
Figura 5.15 - Espectro de $\gamma$ do $^{241}\text{Am}$ com o cristal de CsI puro.....	72
Figura 5.16 - Espectro de $\gamma$ do $^{241}\text{Am}$ com o cristal de CsI:Li de $10^{-4}$ M.....	73
Figura 5.17 - Espectro de $\gamma$ do $^{241}\text{Am}$ com o cristal de CsI:Li de $10^{-3}$ M.....	73
Figura 5.18 - Espectro de $\gamma$ do $^{241}\text{Am}$ com o cristal de CsI:Li de $10^{-2}$ M.....	74
Figura 5.19 - Espectro de $\gamma$ do $^{241}\text{Am}$ com o cristal de CsI:Li de $10^{-1}$ M.....	74
Figura 5.20 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI puro sem moderador de parafina e fonte de AmBe à distancia de 150 mm.....	76
Figura 5.21 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI puro com 20 mm de espessura de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm.....	76
Figura 5.22 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI puro com 40 mm de espessura de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm.....	77
Figura 5.23 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI puro com 60 mm de espessura de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm.....	77
Figura 5.24 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI puro com 80 mm de espessura de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm.....	78
Figura 5.25 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de $10^{-4}$ M sem moderador de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm.....	79
Figura 5.26 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de $10^{-4}$ M com 20 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm.....	79
Figura 5.27 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de $10^{-4}$ M com 40 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm.....	80
Figura 5.28 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de $10^{-4}$ M com 60 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm.....	80

Figura 5.29 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de $10^{-4}$ M com 80 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm.....	81
Figura 5.30 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de $10^{-3}$ M sem moderador de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm.....	82
Figura 5.31 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de $10^{-3}$ M com 20 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm.....	82
Figura 5.32 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de $10^{-3}$ M com 40 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm.....	83
Figura 5.33 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de $10^{-3}$ M com 60 mm de parafina e fonte AmBe à distância de 150 mm.....	83
Figura 5.34 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de $10^{-3}$ M com 80 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm.....	84
Figura 5.35 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de $10^{-2}$ M sem moderador de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm.....	85
Figura 5.36 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de $10^{-2}$ M com 20 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm.....	85
Figura 5.37 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de $10^{-2}$ M com 40 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm.....	86
Figura 5.38 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de $10^{-2}$ M com 60 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm.....	86
Figura 5.39 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de $10^{-2}$ M com 80 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm.....	87
Figura 5.40 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de $10^{-1}$ M sem moderador de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm.....	88
Figura 5.41 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de $10^{-1}$ M com 20 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm.....	88
Figura 5.42 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de $10^{-1}$ M com 40 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm.....	89
Figura 5.43 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de $10^{-1}$ M com 60 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm.....	89

Figura 5.44 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de $10^{-1}$ M com 80 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm.....	90
Figura 5.45 - Gráfico de contagens integradas x espessura de parafina usada para moderar os nêutrons da fonte de AmBe utilizando os cristais cintiladores de CsI puro e de CsI:Li.....	91
Figura 5.46 - Gráfico das contagens integradas x concentração do dopante Li na matriz do cristal de CsI.....	91
Figura 5.47 - Gráfico de contagens dos cristais usados neste trabalho para espessura de 60 mm de parafina usado como moderador.....	93
Figura 5.48 - Modelagem do experimento - Vista de perfil.....	96
Figura 5.49 - Modelagem do experimento - Vista superior.....	96
Figura 5.50 - Modelagem do experimento - Vista da fonte de nêutrons.....	97
Figura 5.51 - Modelagem do experimento - Vista em 3D.....	97
Figura 5.52 - Fluxo de nêutrons da fonte incidindo no cristal de CsI:Li de concentração de dopante Li $10^{-3}$ M - vista superior.....	98
Figura 5.53 - Fluxo de nêutrons da fonte incidindo no cristal de CsI:Li de concentração de dopante Li $10^{-3}$ M - vista lateral.....	98
Figura 5.54 - Fluxo de nêutrons da fonte incidindo no cristal de CsI:Li de concentração de dopante Li $10^{-3}$ M - Detalhe do cristal.....	99
Figura 5.55 - Fluxo de nêutrons da fonte incidindo no cristal de CsI:Li de concentração de dopante Li $10^{-3}$ M com lítio enriquecido - vista superior.....	99
Figura 5.56 - Fluxo de nêutrons da fonte incidindo no cristal de CsI:Li de concentração de dopante Li $10^{-3}$ M com lítio enriquecido - vista superior.....	100

## SUMÁRIO

	<b>Página</b>
<b>1 INTRODUÇÃO.....</b>	<b>15</b>
<b>2 OBJETIVOS.....</b>	<b>18</b>
<b>2.1 Objetivos específicos.....</b>	<b>18</b>
<b>2.2 Contribuição inédita (aspectos de originalidade).....</b>	<b>18</b>
<b>3 REVISÃO DA LITERATURA.....</b>	<b>20</b>
<b>3.1 Detectores de radiação.....</b>	<b>20</b>
<b>3.2 Detecção de nêutrons.....</b>	<b>20</b>
<b>3.3 Interação dos nêutrons com a matéria.....</b>	<b>23</b>
<b>3.4 Tipos de detectores de nêutrons.....</b>	<b>30</b>
<b>3.5 Tipos de detectores cintiladores.....</b>	<b>32</b>
<b>3.6 Técnica de Bridgman para crescimento de cristais.....</b>	<b>40</b>
<b>4 MATERIAIS E MÉTODOS.....</b>	<b>43</b>
<b>4.1 Transmitância óptica.....</b>	<b>43</b>
<b>4.2 Emissão de luminescência.....</b>	<b>44</b>
<b>4.3 Distribuição do dopante ao longo do eixo cristalino.....</b>	<b>44</b>

<b>4.4</b>	<b>Análise por difração de raios X (DRX)</b> .....	<b>46</b>
<b>4.5</b>	<b>Caracterização dos cristais como detectores de nêutrons</b> .....	<b>47</b>
<b>4.6</b>	<b>Simulação com a técnica de Monte Carlo</b> .....	<b>56</b>
<b>5</b>	<b>RESULTADOS E DISCUSSÃO</b> .....	<b>58</b>
<b>5.1</b>	<b>Transmitância óptica</b> .....	<b>59</b>
<b>5.2</b>	<b>Emissão de luminescência</b> .....	<b>62</b>
<b>5.3</b>	<b>Distribuição do dopante</b> .....	<b>65</b>
<b>5.4</b>	<b>Análise por Difração de raios X (DRX)</b> .....	<b>66</b>
<b>5.5</b>	<b>Resposta dos cristais CsI:Li à radiação gama</b> .....	<b>67</b>
<b>5.6</b>	<b>Resposta dos cristais CsI:Li à radiação de nêutrons</b> .....	<b>75</b>
<b>5.7</b>	<b>Resultado da simulação com a técnica de Monte Carlo</b> .....	<b>94</b>
<b>6</b>	<b>CONCLUSÕES</b> .....	<b>101</b>
	<b>REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS</b> .....	<b>103</b>
	<b>ANEXO A - Dados de entrada do arranjo experimental para simulação do cristal de CsI:Li com concentração de Li <math>10^{-3}</math> M (MCNP-6)</b> .....	<b>110</b>



## 1 INTRODUÇÃO

Os cintiladores foram uns dos primeiros materiais usados para detectar a radiação. Antes deles foram usados filmes fotográficos, os quais eram limitados por não detectarem a presença de radiação de imediato, ou a intensidade dela. O primeiro cintilador foi construído por Willian Crookes em 1903 e usava um depósito de sulfeto de zinco dopado com prata que servia de anteparo para a radiação incidente. No caso de partículas  $\alpha$ , a luz emitida era observada com o auxílio de um microscópio em uma sala escura (STEPHEN, 2001). Essa maneira de detectar a radiação tinha evidentes limites em sua utilização. Em 1936 o primeiro dispositivo eletrônico capaz de transformar luz em pulsos de corrente e amplificá-los foi apresentado por Zworykin e colaboradores, a fotomultiplicadora, desta maneira a cintilação poderia ser registrada com o uso de uma eletrônica adequada (CIESLAK et al., 2019).

O material cintilador pode estar na forma líquida, sólida ou gasosa e a sua função na detecção da radiação está em absorver a radiação incidente e em seguida reemiti-la numa forma de radiação eletromagnética em uma frequência menor, com comprimento de onda compatível com a região de maior eficiência de operação do fotosensor. Para aumentar a probabilidade de emissão de fótons visíveis durante o processo de desexcitação, pequenas quantidades de impurezas são adicionadas de forma controlada aos cristais cintiladores, servindo como base do processo de cintilação. (KNOLL, 1989).

O cristal de iodeto sódio (NaI) foi um dos primeiros cintiladores inorgânicos crescidos com dopante tálio (Tl) em sua rede cristalina. A sua descoberta em 1948 inaugurou a era moderna da espectrometria da radiação gama. Por ser um cristal muito usado e com características bem conhecidas ele se tornou referência para comparação com novos materiais cintiladores (KNOLL, 1989).

Os cristais inorgânicos têm sido objeto de estudo desde a década de 50 (BIRKS, 1964) para serem utilizados como sensores de radiação. Desde então, vários materiais inorgânicos foram e são estudados para aplicação como

sensores de radiação ionizante. As aplicações destes sensores estendem-se em diversas áreas, tais como: medicina nuclear, imageador médico, meio ambiente, física nuclear, física de alta energia, astrofísica, geofísica, indústria e inspeção de segurança. As diversas aplicações desses detectores cintiladores fazem com que pesquisas foquem cada vez mais na melhoria dos cristais existentes e no desenvolvimento dos novos cristais.

Atualmente dentre os detectores cintiladores inorgânicos destacam-se os materiais baseados em iodeto de cério (CsI). Essa matriz é pouco higroscópica, possui número atômico alto, é de fácil manuseio e tem custo exequível. O CsI é um material muito usado em detectores de raios X e em outros detectores de partículas de alta energia, usados em particular no CERN (NAPPI, 1998).

Dentre os cristais baseados em CsI, o cristal dopado com tálio é o mais comum por ser um dos cintiladores de mais alta eficiência na detecção de raios gama por unidade de volume, (GRASSMANN, 1985); possui resistência mecânica, característica importante para uso em ambientes severos nos quais os cristais devem apresentar resistência ao impacto. É desejável que os cristais cintiladores tenham estabilidade e inércia química em condições normais atmosféricas. Alguns materiais cintiladores são higroscópicos, limitando suas aplicações e aumentando o custo de produção. Os cristais CsI:TI apresentam ligeira higroscopia, porém podem ser manuseados à temperatura ambiente sem necessidade de encapsulamento, tornando estes materiais bastante atrativos (KNOLL, 1989). Podem ser cortados em fatias finas ou usinados em várias geometrias sem que sofram quebras.

Os cristais de CsI também podem ser usados como detectores de nêutrons como mostrado por MILLER et al. (MILLER, et al., 2019). Em seu estudo, uma camada fina de fluoreto de lítio (LiF) foi depositada no cristal de CsI:TI, a qual serviu como conversor da radiação de nêutrons em radiação detectável. O detector foi usado no desenvolvimento de um imageador de nêutrons. Em um trabalho mais recente, Miller et al. (MILLER et al., 2020) usaram o boro 10 como conversor da radiação de nêutrons. O boro foi depositado em uma fina camada no cristal de CsI:TI e também obtiveram bons resultados para o imageador proposto.

O trabalho apresentado por Pereira em 2013 usou o Li como dopante no processo de crescimento de cristais em matriz de CsI. O elemento Li foi usado como conversor de nêutrons obtendo resultados preliminares satisfatórios. Esse cristal cintilador de CsI:Li inaugurou uma linha de pesquisa na área de detecção de nêutrons na qual, ainda são necessários desenvolvimentos para conhecer melhor as propriedades detectoras de materiais obtidos a partir de técnicas de fusão (PEREIRA, et al., 2013).

## 2 OBJETIVOS

O objetivo deste trabalho foi desenvolver detectores de nêutrons, utilizando cristais cintiladores inorgânicos de iodeto de céσιο dopados com lítio CsI:Li crescidos pela técnica de Bridgman.

### 2.1 Objetivos específicos

Determinar a melhor concentração do dopante Li na matriz CsI no intervalo de  $10^{-1}$  M,  $10^{-2}$  M,  $10^{-3}$  M e  $10^{-4}$  M, quando excitados com radiação de nêutrons.

Avaliar as características cintiladoras para a radiação de nêutrons e sob a incidência de radiação gama.

Avaliar a emissão de luminescência nos cristais de CsI:Li no intervalo de concentração do íon lítio de  $10^{-4}$  M a  $10^{-1}$  M.

Estudar a transmitância óptica no intervalo de comprimento de onda de 200 nm a 1100 nm.

Empregar a técnica de Monte Carlo para determinar a espessura de cristal a ser utilizada como detector de radiação e que tenha rendimento ótimo entre espessura e taxa de reação.

### 2.2 Contribuição Inédita (aspectos de originalidade)

Neste trabalho, a contribuição reside no estudo dos cristais baseados em CsI usando como dopante o Li natural para serem aplicados como detectores de nêutrons, avaliando a resposta na detecção de nêutrons em diferentes concentrações de dopante Li (entre  $10^{-1}$  M a  $10^{-4}$  M).

O Li encontrado na natureza possui uma mistura de dois isótopos estáveis:  ${}^6\text{Li}$  com abundância de 7,5% e o  ${}^7\text{Li}$  com abundância de 92,5%. A reação do nêutron

com o Li é dada como:  $n + {}^6\text{Li} \rightarrow {}^3\text{H} (2,75 \text{ MeV}) + {}^4\text{He} (2,05 \text{ MeV})$  com secção de choque de captura  $\sigma = 940 \text{ b}$ . A reação com o  ${}^7\text{Li}$  não foi considerada devido ao fato da secção de choque de captura ser menor que  $10^{-1} \text{ b}$  (PEREIRA et al., 2016), (JAEA, 2013), (CAREL et al., 2004).

A obtenção do  ${}^6\text{Li}$  enriquecido isotopicamente no mercado mundial tem certas dificuldades, pois o  ${}^6\text{Li}$  é usado na fabricação de armamentos nucleares, além de ser um insumo o qual não existem muitos fornecedores no mundo. Por esses motivos expostos este trabalho propôs utilizar o Li natural. Desta forma, obtendo-se uma resposta positiva para a detecção de nêutrons com Li natural, pode-se inferir que o uso de Li enriquecido ( ${}^6\text{Li}$ ) na matriz CsI, resultará em eficiência de detecção mais satisfatória.

Estudos com o cristal de CsI dopado com Li utilizado como detector de nêutrons são raros de se encontrar na literatura. Pereira e colaboradores (PEREIRA et al., 2016) utilizaram cristais de CsI dopados com Li na concentração de  $10^{-3} \text{ M}$  e também dopados com Br em concentração de  $10^{-1} \text{ M}$  com boa resposta de detecção de nêutrons e à radiação gama.

A técnica de Monte Carlo foi usada para simular o fluxo de nêutrons termalizados incidentes no cristal no intuito de se determinar a melhor espessura do cristal para detecção de nêutrons. Estes estudos foram feitos por simulação com o método de Monte Carlo usando a versão MCNP-6.

Esses estudos forneceram uma contribuição original e útil para o desenvolvimento e projeto de detectores de nêutrons, apropriados para aplicações específicas, cuja necessidade é deparada com o avanço na construção de tomógrafos de nêutrons, monitoramento de ambientes com presença de nêutrons em reatores e experimentos em aceleradores de partículas.

### **3 REVISÃO DA LITERATURA**

#### **3.1 Detectores de radiação**

A detecção da radiação e a medida de suas propriedades são requisitos para o desenvolvimento de todas as áreas da tecnologia nuclear e suas aplicações. Entre as suas aplicações, destacam-se: a pesquisa científica, a aplicação médica, a operação de reatores, a área de proteção radiológica e aplicações industriais.

A diversidade entre as interações da radiação com a matéria e a dependência da energia vai influenciar na escolha do detector a ser utilizado. Essa escolha vai depender de vários fatores a saber: o tipo da radiação, a energia da radiação incidente, o ambiente onde este detector será usado e qual o tipo de informação que se deseja obter da radiação a ser detectada.

#### **3.2 Detecção de nêutrons**

O nêutron é uma partícula nuclear fundamental, com massa e dimensões aproximadamente iguais ao próton (núcleo de Hidrogênio), porém, não possui carga. É instável quando livre no espaço onde se transforma em um próton e um elétron cuja meia vida de transformação é de 12 minutos (LAMARSH, 1966).

O nêutron é uma partícula fundamental e foi detectada por James Chadwick em 1932, apesar de ser prevista muito antes da sua descoberta (ZAHN et al., 2007).

A detecção dos nêutrons não é trivial, tendo em vista a falta de cargas dessas partículas e a peculiaridade de suas interações com a matéria. Outra dificuldade na detecção de nêutrons é que estão sempre acompanhados de radiações de outras naturezas, o que dificulta a discriminação eletrônica dos impulsos gerados pelos nêutrons, dos gerados por outras radiações.

As principais proposições de detectores sensíveis aos nêutrons consistem de detectores gasosos, cintiladores e semicondutores. Como característica gerada pela interação dos nêutrons com a matéria, os nêutrons não são detectados diretamente. Por não possuírem cargas elétricas, necessitam primeiro interagir com um material para que este material, chamado de conversor de radiação, emita radiação ionizante o que por sua vez possa ser detectada. O conversor consiste de um material com alta probabilidade de interação com o nêutron (alta secção de choque) e funciona com reações nucleares do tipo: Nêutron + Conversor → Radiação detectável (LAMARSH, 1966; High Voltage Engineering Corporation, 1965; SHIRAISHI et al., 1988; TAKAMI et al., 1987; WALTON et al., 1987)

A secção de choque é um parâmetro que expressa a probabilidade de interação do nêutron com o seu alvo. Ela é dependente da energia do nêutron incidente (High Voltage Engineering Corporation, 1966).

Os nêutrons são classificados de acordo com a sua energia, comumente discriminados como: (High Voltage Engineering Corporation, 1966):

**Frio** - a velocidade dos nêutrons frios corresponde à velocidade das moléculas do movimento atômico dos gases em temperaturas extremamente baixas. A energia dos nêutrons frios está no intervalo de  $10^{-4}$  eV a  $10^{-3}$  eV.

**Térmico** - a velocidade dos nêutrons térmicos corresponde à velocidade do movimento atômico em temperatura ambiente. Esses são obtidos por moderação (termalização) de nêutrons de alta velocidade no material moderador. Frequentemente materiais hidrogenados são utilizados para esta finalidade. Embora a distribuição de velocidade seja uma curva quase-Maxeliana, assume-se que os nêutrons térmicos têm energia de 0,025 eV o que corresponde à energia de agitação térmica dos átomos do meio em temperatura de  $20^{\circ}$  C (DOE, 1993).

**Epitérmico** - estágio intermediário de termalização, mas com remanescentes componentes de alta velocidade. Energias entre 0,025 eV e 1 eV, comparáveis às ligações químicas.

**Lentos** - energia entre 1 eV e 1000 eV, região de ressonância onde ocorre absorção de nêutrons por muitos núcleos.

**Intermediário** - energia entre 1 keV e 1000 keV

**Rápido** - energia entre 1 MeV e 100 MeV

**Ultra-Rápido** - energia acima de 100 MeV.

As principais áreas em que a detecção de nêutrons é de fundamental importância e impulsionaram a evolução de novos detectores são: (PEURRUNG, 2000)

**-Fusão** - Detecção de nêutrons de alta energia, em torno de 14,1 MeV, pode ser usada para dar informações sobre a distribuição da taxa de reação do plasma em futuros reatores de fusão. (PEURRUNG, 2000)

**-Fissão** – Detectores de nêutrons são fundamentais na operação e controle de reatores. Detectores podem ser usados no mapeamento da distribuição espacial de nêutrons no núcleo e indicar regiões de alto fluxo de nêutrons para a produção de radioisótopos e para realização de experimentos (PEURRUNG, 2000).

**-Materiais nucleares especiais** - Esta área inclui aplicações em salvaguardas de materiais, controle de armamentos nucleares em fronteiras, caracterização de rejeitos transurânicos, descomissionamento e descontaminação de instalações nucleares (PEURRUNG, 2000).

**-Ciência Fundamental** - A detecção de nêutrons tem um largo uso em pesquisas como determinação seção de choque, matéria escura, núcleos exóticos, feixes de nêutrons e estudos astrofísicos. (PEURRUNG, 2000)

**-Dosimetria** - A detecção de nêutrons é importante na proteção individual de pessoas e no planejamento e execução de tratamento de pacientes submetidos a



incidência de nêutrons. Essas aplicações necessitam do conhecimento preciso do espectro em uma determinada faixa de energia (PEURRUNG, 2000).

**-Caracterização de materiais** - Caracterização de materiais via análises de espalhamento, difração, neutrografia e tomografia. Tais aplicações necessitam de equipamentos de imageamento de alta resolução para nêutrons de energia e fluxos apropriados (PEURRUNG, 2000).

Essas aplicações continuam a motivar o desenvolvimento de novas tecnologias na detecção de nêutrons (PEURRUNG, 2000).

### **3.3 Interação dos nêutrons com a matéria.**

A interação da radiação eletromagnética ou de partículas carregadas com a matéria se processa de maneira diferente da interação dos nêutrons uma vez que estes não possuem carga (KNOLL, 1989).

Partículas pesadas carregadas, como a partícula alfa, ( $\alpha$ ) a interação com a matéria ocorre primeiramente com as forças coulombianas por interação entre a carga positiva e a carga negativa dos elétrons orbitais do meio, produzindo excitação e ionização (KNOLL, 1989).

Partículas Beta ( $\beta$ ) interagem por:

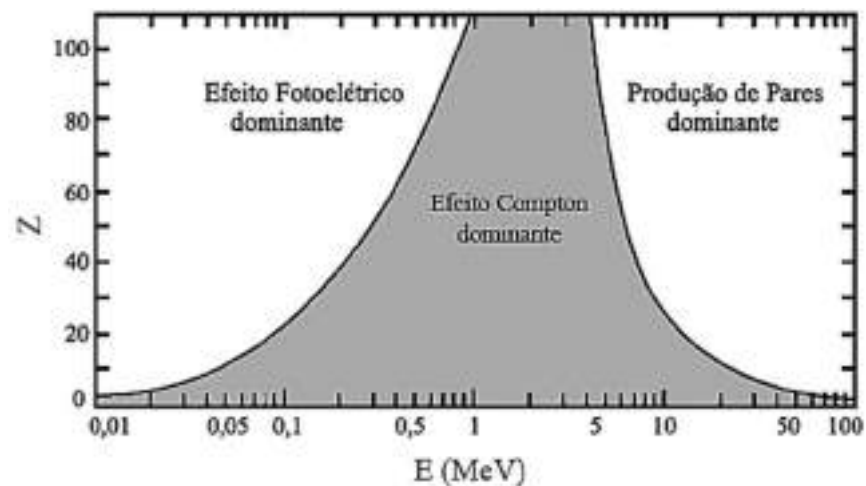
- 1) Colisões inelásticas (excitação e ionização)
- 2) Espalhamento elástico
- 3) Radiação de freamento
- 4) Aniquilação
- 5) Radiação Cherenkov

A radiação eletromagnética interage basicamente por

- 1) Efeito fotoelétrico
- 2) Efeito Compton
- 3) Produção de pares (KNOLL, 1989).

A Figura 3.1 mostra a variação da participação de cada tipo de interação da radiação eletromagnética com a variação do número atômico  $Z$  e da energia dos fótons (KNOLL, 1989).

Figura 3.1 - Participação de cada tipo de interação da radiação eletromagnética com a variação do número atômico  $Z$  e da energia dos fótons. Figura adaptada do KNOLL 1989



Fonte: KNOLL 1989, figura adaptada.

Os nêutrons por sua vez podem interagir por diferentes maneiras. A interação dos nêutrons com a matéria se dará por colisões diretas com o núcleo atômico, ocasionando espalhamento elástico ou espalhamento inelástico. O espalhamento elástico ocorre quando após a interação do nêutron com o núcleo não há mudança isotópica do núcleo alvo ou alteração do estado de energia interna do núcleo. O espalhamento inelástico ocorre quando a interação do nêutron com o núcleo alvo o deixa em estado excitado e não ocorre a mudança isotópica do núcleo alvo (LAMARSH, 1966), (KNOLL, 1989).

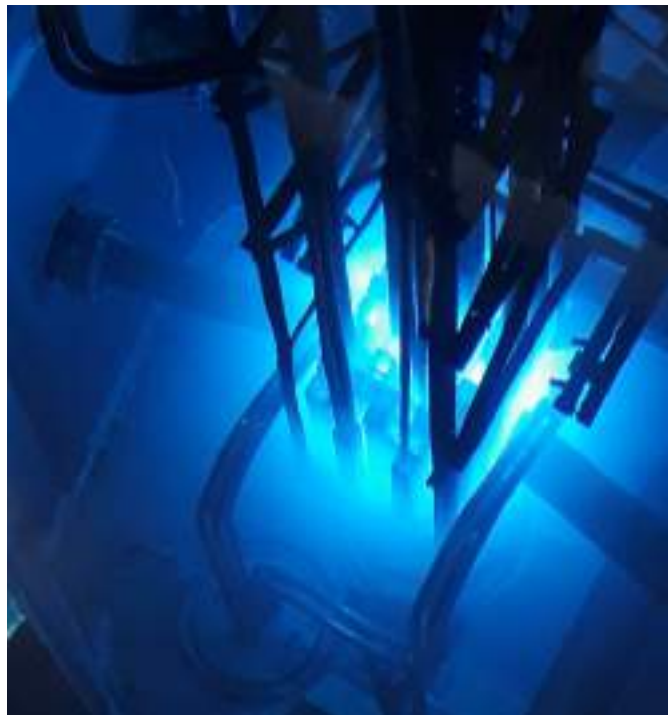
A perda de energia por colisões elásticas de um nêutron incidente em um núcleo alvo ocorre com mais eficiência nos núcleos alvos de número atômico baixo, como por exemplo, o hidrogênio, o deutério, o carbono e o boro.

Os nêutrons espalhados por materiais leves são subsequentemente levados à moderação até entrarem em equilíbrio de energia com os átomos do meio

mediante colisões sucessivas durante seu percurso no material moderador. O efeito moderador atuante em um feixe de nêutrons energéticos depende do material moderador e da energia dos nêutrons no feixe incidente (LAMARSH, 1966).

A maior fonte de nêutrons conhecida é o núcleo do reator nuclear, Figura 3.2. O processo de surgimento é por emissão na fissão de átomos físséis como, por exemplo, o  $^{235}\text{U}$ . Dependendo de como o nêutron foi gerado o espectro de energia terá características próprias.

Figura 3.2 - Núcleo do reator IEA-R1 operando a potência de 3,5 MW.



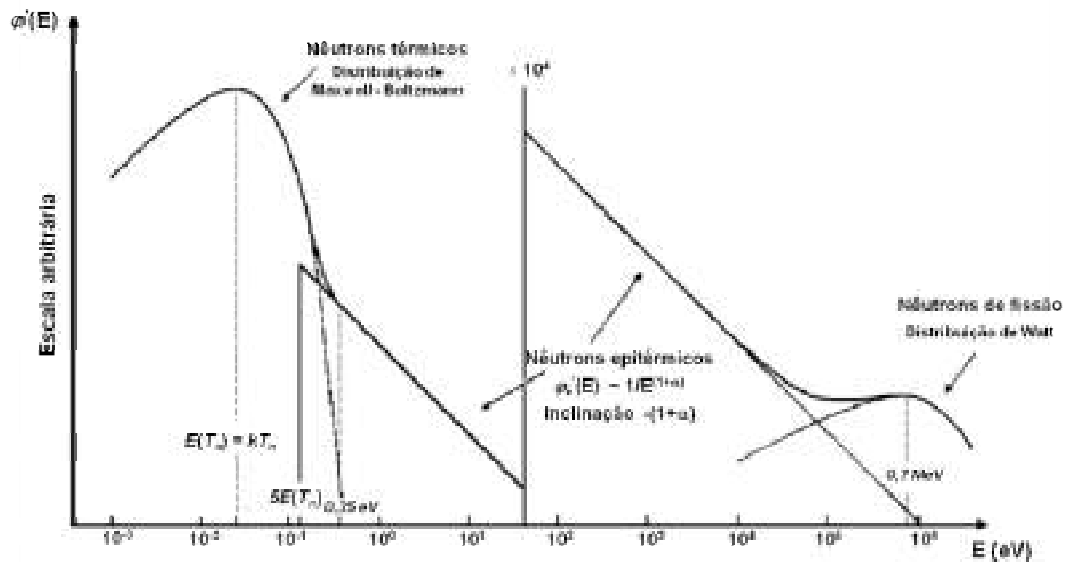
Fonte: autor da tese.

O espectro de energia dos nêutrons nos reatores de fissão é composto por nêutrons provenientes do processo primário de fissão, os quais possuem energias que variam no intervalo próximo de 0 MeV a 15 MeV. Em seguida esses nêutrons rápidos passam por um processo contínuo de termalização até atingir a região térmica onde estarão em equilíbrio energético com os átomos do meio.

Também existem nêutrons provenientes dos chamados precursores, que são produtos de fissão que emitem nêutrons em seu processo de decaimento (DOE, 1993).

A Figura 3.3 mostra a composição desses componentes de energia dos nêutrons típicos de um reator nuclear.

Figura 3.3 - Composição das componentes de um espectro típico de energia dos nêutrons de um reator nuclear



Fonte: (CARDOSO, 2011).

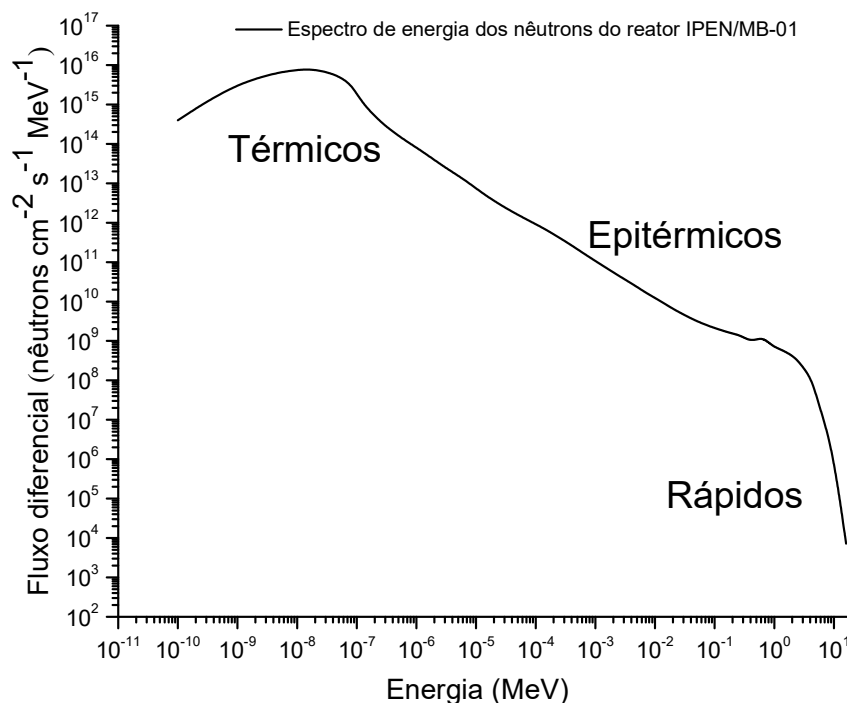
A parte da curva mais energética provém das fissões onde os nêutrons de fissão surgem com energias altas que ainda não passaram por nenhum processo de moderação. A variação do fluxo de nêutrons com a variação de energia nesta região é conhecida como espectro de fissão ou distribuição de Watt. Na região de nêutrons epitérmicos os nêutrons foram submetidos aos processos de termalização por meio de colisões elásticas. O comportamento desse espectro segue aproximadamente a expressão descrita em (1).

$$\varphi(E) \sim 1/E^{(1+\alpha)} \quad (1)$$

A última região da curva corresponde à região onde os nêutrons já estão em equilíbrio com a energia de agitação térmica do meio em que estão difundidos, são os chamados nêutrons térmicos e seguem a lei de distribuição de energia de Maxwell-Boltzmann. (CARDOSO, 2011)

A junção dessas três regiões de distribuição de energia dos nêutrons em um reator nuclear é apresentada na Figura 3.4

Figura 3.4 - Espectro de Energia dos nêutrons do Reator IPEN/MB-01.



Fonte: BITELLI et al., 2009.

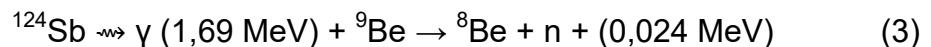
Existem outras fontes de nêutrons além dos reatores de fissão: baseadas em reações nucleares, a saber: (a) alfa-nêutron, (b) gama-nêutron, (c) fissão espontânea, (d) aceleradores de partículas, (e) aceleradores do tipo Van de Graaff. (KNOLL, 1989), (TRAVESI, 1975), (DOCS NRC <https://www.nrc.gov/docs/ML1122/ML11229A704.pdf> (04/12/2012))

(a) Fontes de nêutrons do tipo alfa-nêutron: São as mais comuns encontradas. Neste tipo de fonte, um emissor de partículas alfa é misturado com material de baixo número atômico Z, usualmente o  ${}^9\text{Be}$ .

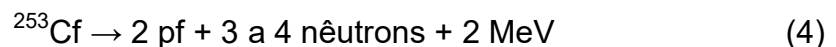
Uma fonte de nêutrons muito usada é a de AmBe. O  ${}^{241}\text{Am}$  é um isótopo radioativo que emite em seu decaimento partícula alfa com meia-vida de 432 anos. A partícula alfa emitida, por sua vez, irá provocar uma reação nuclear no  ${}^9\text{Be}$  a qual vai emitir como produto um nêutron. A reação está descrita na equação (2).



(b) Fontes de nêutrons do tipo gama-nêutron, Essas fontes combinam radioisótopos emissores de radiação gama que ao incidirem com o alvo de  ${}^9\text{Be}$  vão emitir um nêutron como descrita na equação (3).

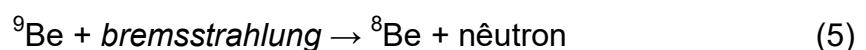


(c) Fontes de nêutrons do tipo fissão espontânea. Muitos dos núcleos transurânicos possuem probabilidade de decaimento por fissão espontânea e emitem de 2 a 4 nêutrons prontos em cada evento, como descrita na equação (4). A fonte mais comum é a de  ${}^{252}\text{Cf}$  com meia vida de 2,65 anos.

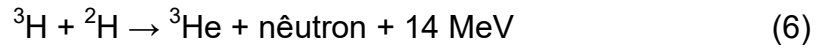


Sendo pf os produtos de fissão

(d) Fontes de nêutrons do tipo aceleradores de partículas. Aceleradores de partículas podem produzir nêutrons via bombardeamento de elétrons energéticos em alvos com número atômico Z alto. A radiação de freamento (*bremstrahlung*) então produz nêutrons via reação ( $\gamma, n$ ) ao incidir num alvo de  ${}^9\text{Be}$  conforme descrita na equação (5).



(e) Fontes de nêutrons provenientes de aceleradores do tipo Van de Graaff. Íons positivos são acelerados a energias suficientes para provocar reações nucleares em alvos que emitem nêutrons conforme descrita na equação (6).



A Tabela 3.1 apresenta as características energéticas de nêutrons produzidos nas máquinas aceleradoras de partículas (TRAVESI, 1975).

Tabela 3.1 - Nêutrons Produzidos em Aceleradores

Reação Nuclear	Energia Média dos Nêutrons Emitidos
${}^2\text{H}(d,n){}^3\text{He}$	2,448 MeV
${}^3\text{H}(d,n){}^3\text{He}$	63,9 keV
${}^3\text{H}(d,n){}^4\text{He}$	14,05 MeV
$\text{Be}(\alpha,n){}^{12}\text{C}$	5,26 MeV
${}^{12}\text{C}(d,n){}^{13}\text{N}$	3,4 keV
${}^{13}\text{C}(d,n){}^{16}\text{O}$	2,07 MeV
${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$	29,9 keV

Sendo d o íon do deutério,  ${}^2\text{H}$

Fonte: autor da tese. Tabela adaptada de TRAVESI, 1975

Esses dados indicam que os nêutrons originados por todas as fontes geram nêutrons rápidos, por outro lado os conversores nucleares adequados aos projetos de detectores são pouco eficientes nesse nível de energia devido à sua baixa secção de choque para nêutrons com energias altas. Pode-se contornar essa limitação submetendo-se os nêutrons dessas fontes à ação de moderadores hidrogenados. (MADI FILHO et al., 2001)

Materiais contendo concentração alta de hidrogênio são os mais eficientes moderadores. Dentre esses materiais destacam-se: a parafina ( $\text{C}_n\text{H}_{2n+2}$ ) e plásticos como o polietileno  $(\text{C}_2\text{H}_4)_n$  e a água ( $\text{H}_2\text{O}$ ). A eficiência da ação energética-moderadora do hidrogênio se deve à semelhança nucleônica em

massa entre o nêutron e próton (núcleo do hidrogênio) favorecendo a transferência da energia do nêutron para o hidrogênio em choques do tipo elástico durante o processo de moderação, esse processo é conhecido como “efeito bola de bilhar” (DOE, 1993).

### 3.4 Tipos de detectores de nêutrons

São usados vários tipos de detectores para nêutrons, dentre eles, podemos citar as câmaras de ionização, câmaras de fissão, cintiladores sólidos ou líquidos e os detectores proporcionais gasosos ( $\text{BF}_3$ ,  $^3\text{He}$ ).

Dentre os tipos de detectores de nêutrons usados nas áreas de pesquisas científicas, aplicações médicas, operação de reatores, nas atividades de proteção radiológica e aplicações industriais podem-se destacar: (PEURRUNG, 2000)

**-Detectores de traços.** Usam o dano no meio, causado pela passagem de partículas carregadas emitidas por conversores constituídos de materiais físseis, ou hidrogenados. O dano é provocado pelo recuo de partículas ao interagirem com o nêutron incidente no meio. Esse tipo de detector pode ser usado em ambientes de longo tempo de exposição como em estações espaciais.

**-Placa de Imagem sensível a nêutrons.** Placas com depósito de materiais com alta secção de choque para captura de nêutrons como, por exemplo, o Gd, funcionam como conversores na formação da imagem e podem registrar a incidência de nêutrons em grandes áreas e com alta resolução. (PEURRUNG, 2000)

**-Detectores de ativação.** As ativações de materiais expostos ao feixe de nêutrons geram informação a respeito do espectro de energia e do fluxo de nêutrons incidentes, por meio da secção de choque do material alvo usado na medida.

**-Detectores de câmara de bolhas.** São detectores que se baseiam em uma suspensão de gotículas super aquecidas de *freon* em uma matriz polimérica. O



nêutron ao interagir deposita energia suficiente para romper as forças de tensão superficial que impede a vaporização das gotículas. A resposta a nêutrons ocorre pelo processo de recuo nuclear ou pela reação com o  $^{35}\text{Cl}$ . Esse tipo de detector é usado em física de alta energia e tem pouca sensibilidade à radiação gama.

**-Detectores proporcionais.** São detectores que usam como gás  $^3\text{He}$ , Câmaras de fissão (com depósito de materiais físséis). Essas câmaras podem usar reações de captura, fissão, e reação de recuo nuclear. Em geral esses detectores possuem uma boa eficiência e alta taxa de detecção.

**-Detectores SPD.** Detectores SPD (*Self Powered Detectors*) ou detectores autoalimentados, são dispositivos de corrente contínua com dois eletrodos de materiais diferentes, um desses materiais ao ser ativado pela incidência de nêutrons, emitem em seu decaimento partículas beta as quais, ao incidir no segundo material faz surgir uma corrente elétrica fraca a qual é proporcional ao fluxo neutronico. Este tipo de detector é muito usado tanto em reatores de potência bem como em reatores de pesquisa para monitorar o fluxo de nêutrons. Esses detectores não necessitam de alimentação para o seu funcionamento. (RAJ, 2019)

**-Detectores semicondutores.** Cristais semicondutores baseados em  $^6\text{Li}$  como  $^6\text{LiInSe}_2$  atingem uma grande eficiência de detecção para nêutrons térmicos chegando a 80% em uma espessura de 5 mm. Possuem uma boa discriminação entre gamas e nêutrons. (HAMM et al., 2015).

**-Detectores Cintiladores.** Um dos primeiros materiais utilizados na detecção de partículas radioativas foram materiais cintiladores. Inicialmente a fluorescência dos cintiladores foram observadas a olho nu o que dificultava uma investigação adequada. Um grande impulso nas pesquisas com cintiladores foi dada com o advento do tubo fotomultiplicador em 1936 por Zworykin e colaboradores. (CIESLAK M. J. et al., 2019)

Inúmeras pesquisas têm sido realizadas no esforço de encontrar novos materiais cintiladores com características particulares para aplicações diversas,

como em equipamentos médicos de tomografia, controle de segurança em fronteiras e aeroportos, pesquisas em reatores de fusão e astrofísica. (PEURRUNG, 2000)

Detectores cintiladores são materiais sólidos, líquidos ou gasosos que produzem o efeito de gerar um fóton de luz na região visível ou ultravioleta ao absorver de maneira parcial ou total a radiação incidente (KNOLL, 1999). O avanço no uso destes materiais cintiladores tomou impulso com o surgimento de dispositivos eletrônicos que permitiram transformar o fóton em sinais elétricos e amplificá-lo, as fotomultiplicadoras (TSOULFANADIS, 1983).

### **3.5 Tipos de detectores Cintiladores**

Devido à existência de diferentes tipos de cintiladores, os mesmos foram classificados em três grupos em função das suas características físico-químicas, a saber: cintiladores inorgânicos, cintiladores orgânicos e cintiladores gasosos. Dentre os cristais inorgânicos, os mais utilizados são constituídos de metais alcalinos, em particular iodetos alcalinos, como por exemplo, os cristais de NaI:TI, CsI:TI, CsI:Na, LiI:Eu e CaF<sub>2</sub>:Eu. Os cristais contêm uma pequena concentração de impureza, chamada de “ativador” ou dopante. Esse elemento dopante é sempre representado por último na fórmula do cristal. Geralmente esses dopantes criam “centros de luminescência” ou “centros de emissão”. Estes centros permitem aos cintiladores a emissão de fótons de comprimentos de onda mais próximos à região de sensibilidade dos fotosensores. (CIESLAK, et al., 2019)

Há dois tipos de cristais cintiladores inorgânicos, a saber: os puros (intrínsecos) e os dopados (extrínsecos). Apesar dos dois terem o mesmo comportamento em relação à interação com a radiação ionizante, eles diferem nos processos de cintilação e conseqüentemente nas suas propriedades cintiladoras. (BIRKS, 1964; DIETRICH et al., 1972)

Os cristais inorgânicos se destacam entre os cintiladores por terem alta densidade, alto número atômico, são resistentes a choques e a vibrações e produzem grande quantidade de luz por MeV depositado e podem ser construídos

em pequenas dimensões para aplicações em imageamento médico. São amplamente utilizados em espectrometria das radiações, astrofísica, controle de fronteiras para detecção de materiais nucleares perigosos e ampla aplicação em medicina nuclear e em radioproteção. Alguns cristais mais usados são: iodeto de lítio ativado com európio (LiI:Eu), o óxido de germanato de bismuto (BGO), iodeto de sódio ativado com tálio NaI:Tl e o iodeto de cério ativado com tálio CsI:Tl. (KNOLL, 1989)

Cintiladores inorgânicos foram desenvolvidos inicialmente para aplicações de detecção da radiação gama, caracterização e áreas que necessitam boa resolução em energia.

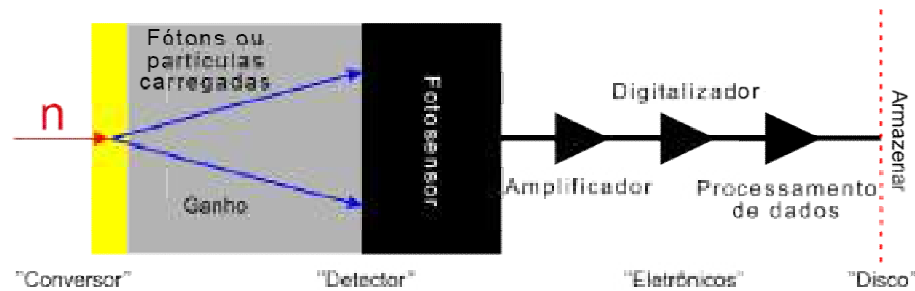
Os detectores de nêutrons necessitam de conversores para possibilitar a detecção dos nêutrons. Esses conversores são baseados nas características de interação dos nêutrons com a matéria. (MADI FILHO, 1999)

O conversor é um material de alta secção de choque para a reação com os nêutrons. O resultado das interações com os nêutrons são fótons ou partículas carregadas (íons ou elétrons), estes podem ser detectados como radiação comum por vias convencionais. (IAEA TECDOC 1935, 2020).

### **Nêutron + Conversor → Radiação ionizante**

No caso dos cristais cintiladores inorgânicos o conversor pode ser depositado na face do cristal voltada à incidência dos nêutrons, como mostrado na Figura 3.5.

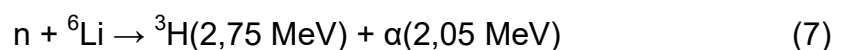
Figura 3.5 - Esquema de detector de nêutrons e seus componentes



Fonte: Figura adaptada de IAEA TECDOC 1935, 2020.

O cintilador deve ser acoplado a um tubo fotomultiplicador ou acoplado em um fotodiodo para possibilitar a conversão da luz produzida, em carga elétrica e na sequência, esta carga seja amplificada eletronicamente para posterior registro.

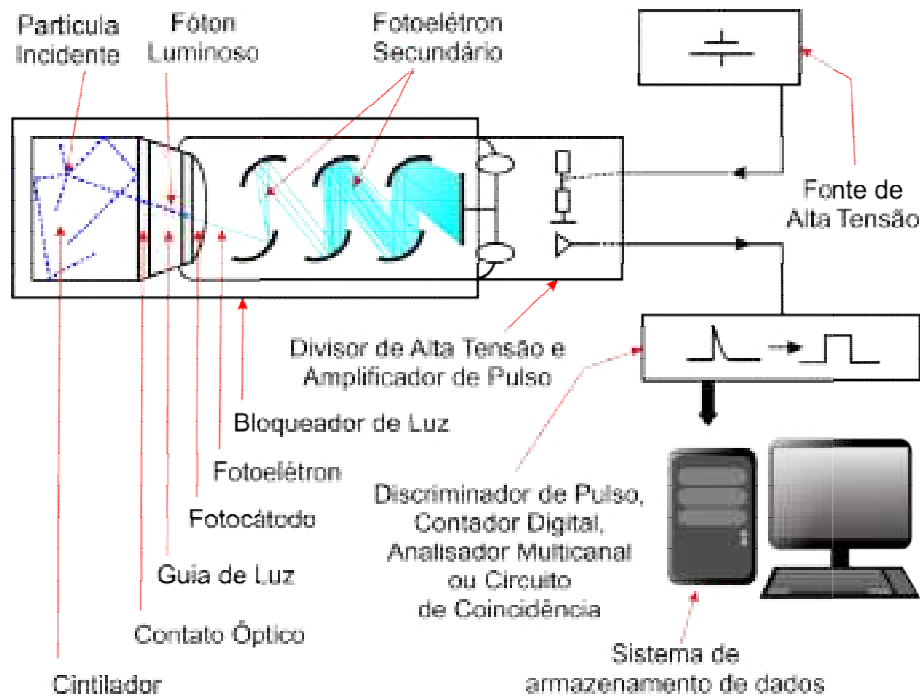
O processo de extração de informação de uma interação ocorrendo dentro de um cristal cintilador é basicamente o mesmo. Quando partículas energéticas entram em um cintilador, elas causam ionização. No caso de partículas, por exemplo, prótons, elétrons e partículas alfa causam ionização direta. Fótons e partículas sem carga como os nêutrons, devem primeiramente transferir sua energia para partículas ionizantes dentro do meio. Por exemplo, os fótons podem liberar elétrons e os nêutrons sofrem interações nucleares, resultando na liberação de partículas carregadas. O cintilador, ao perder energia emite fótons no espectro visível e podem ser transformados em fotoelétrons que podem ser amplificados em uma válvula fotomultiplicadora e formar um pulso elétrico para ser processado em instrumentação eletrônica (CIESLAK, 2019). Como exemplo na reação do nêutron com o  ${}^6\text{Li}$ , descrito na equação 7, a partícula  $\alpha$  e o  ${}^3\text{H}$ , irão excitar o cristal que transformará a energia depositada pela partícula  $\alpha$  e o  ${}^3\text{H}$  em fótons, os quais serão convertidos em elétrons por meio do efeito fotoelétrico do fóton incidente.



Por sua vez esses elétrons serão multiplicados na fotomultiplicadora e convertidos em pulsos elétricos no pré-amplificador, possibilitando a

caracterização e o registro eletrônico da radiação incidente no cintilador, como mostrado na Figura 3.6

Figura 3.6 - Montagem típica de um detector cintilador com fotomultiplicadora



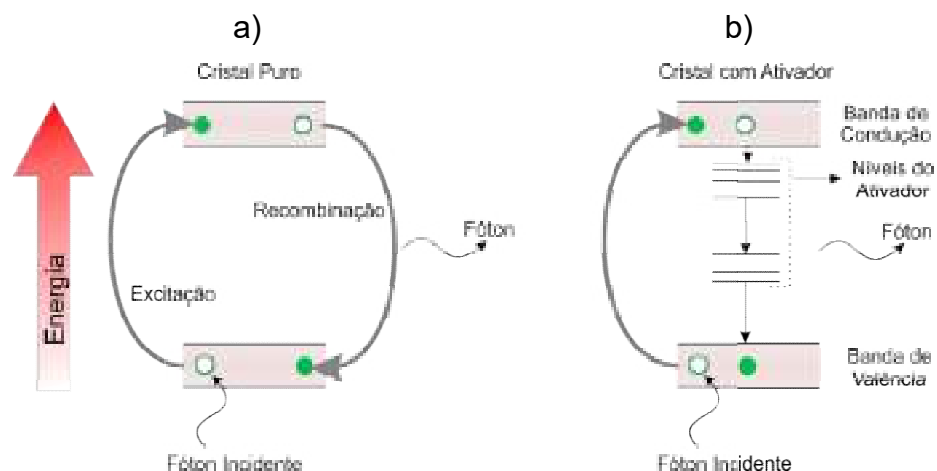
Fonte: Autor da tese. Figura adaptada de <https://www.radiation-dosimetry.org/pt-br/o-que-e-contador-de-cintilacao-detector-de-cintilacao-definicao/> - 2020 - Nick Connor.

Os mecanismos da cintilação nos cristais inorgânicos estão relacionados com os estados de energia determinados pela rede cristalina do material detector (BIRKS, 1964; TAIT, 1980), como mostrado na Figura 3.7. A estrutura de bandas dos cristais cintiladores inorgânicos consiste de bandas de energia onde a banda de valência é normalmente preenchida, e a banda de energia de condução a qual é normalmente vazia. As duas bandas são separadas pela banda de energia proibida ou *band gap*. 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.

Um elétron pode obter suficiente energia da radiação incidente para mover-se da banda de valência para a banda de condução. O elétron ao absorver energia suficiente é liberado para mover-se pela rede cristalina. O elétron removido cria uma lacuna na banda de valência, a qual também se movimenta. Entretanto, pode ocorrer que a energia fornecida ao elétron não seja suficiente para levá-lo à banda de condução. Neste caso, o elétron permanece eletrostaticamente ligado à lacuna na banda de valência, formando assim o par elétron-lacuna. O par elétron-lacuna assim formado é denominado éxciton. A lacuna na banda de valência é preenchida novamente quando o elétron retorna da banda de condução. Este processo é acompanhado de emissão de um fóton, porém a energia desse fóton pode ser muito alta para cair no intervalo de energia da região visível, resultando baixa produção de luz (KNOLL, 1989).

Determinadas impurezas podem ser introduzidas no crescimento do cristal e são chamados de “ativadores” que acrescentam níveis intermediários entre as bandas de valência e a banda de condução, permitindo aos cintiladores a emitirem fótons com comprimento de onda mais próximo da região de maior sensibilidade da fotomultiplicadora, conforme mostrado na Figura 3.7 a) e b). (TSOULFANADIS, 1983); (KNOLL, 1989) e (CIESLAK, 2019)

Figura 3.7 - Estrutura de banda de energia em um cristal cintilador: a) Cristal puro e b) Cristal com ativador



Fonte: autor da tese.

A compreensão dos mecanismos da cintilação em cristais com diferentes concentrações de dopantes, bem como, quando excitados com diversas fontes de radiação de densidades de ionização diferentes vem sendo estudados por diversos autores (HAMADA et al., 2001), (DERENZO et al., 1999), (PEREIRA et al., 2006), (PEREIRA et al., 2015).

Ao longo dos anos os cristais de CsI:TI têm sido ativados com tálio com concentração molar de  $10^{-3}$  M. Essa concentração foi determinada para radiação gama, nos anos 50.

Hamada e colaboradores (HAMADA et al., 2001) realizaram estudos com o objetivo de obter as características de cintilação do cristal de CsI:TI com concentrações de tálio variando de  $10^{-6}$  M a  $10^{-2}$  M e concluíram que a concentração adequada do dopante é dependente da densidade de ionização da partícula da radiação utilizada para a excitação do cristal.

MADI FILHO, T. et al., 2015 apresentam um cristal de CsI:Li como detector de nêutrons. A reação  ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$  tem uma secção de choque de 940 barns para nêutrons térmicos. As partículas alfa emitidas na reação nuclear produzem a excitação do cristal, como mostrado por TRENCHER e colaboradores (TRENCHER et al., 2007), BRUBAKER (BRUBAKER et al., 2011) e MADI FILHO, T. et al., (MADI FILHO, 2015)

Os cintiladores podem usar conversores como dopantes ou em películas cobrindo o cristal. Esses conversores são materiais de alta secção de choque de reação com o nêutron no qual vai induzir reações nucleares do tipo: (n,p), (n, $\alpha$ ), como por exemplos  ${}^{10}\text{B}(n, \alpha){}^7\text{Li}$ ,  ${}^3\text{He}(n, p){}^3\text{H}$  e  ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{He}$ . A partícula carregada vai proporcionar uma cintilação detectável como descrito por Brubaker (BRUBAKER et al., 2011). Uma camada de material hidrogenado pode ser posicionada entre a fonte e o cintilador com o propósito de melhorar a eficiência de detecção de nêutrons. (BRUBAKER et al., 2011)

O  ${}^6\text{Li}$  é usado em compostos para detecção de nêutrons devido à sua alta secção de choque de absorção dos nêutrons para a reação  ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{He}$  é de 940

barns (MADI FILHO T. et al. 2015). Em geral, as pesquisas que desenvolvem detectores baseados em Li usam o Li enriquecido em  ${}^6\text{Li}$  para aumentar a eficiência de detecção. O elemento Li é encontrado na natureza com proporção isotópica de 7,5% de  ${}^6\text{Li}$  e 92,5% de  ${}^7\text{Li}$  (CAREL et al., 2004).

Carel e colaboradores (CAREL et al., 2004) analisaram vários tipos de cristais cintiladores inorgânicos baseados em  ${}^6\text{Li}$ ,  ${}^{10}\text{B}$  e  ${}^{\text{nat}}\text{Gd}$  para uso em grandes laboratórios de pesquisas como no Spallation Neutron Source (SNS) em Oak Ridge USA, ESS European Spallation Source entre outros centros. Características como o tempo mais curto de resposta de cintilação, boa produção de luz, facilidade de manuseio, possibilidade de construção de vários tamanhos, baixa sensibilidade à radiação gama e a possibilidade de discriminação dos pulsos entre gama e nêutrons, são características importantes que vão definir em qual aplicação determinado cristal poderá ser usado. Carel (CAREL et al, 2012) compararam em seu trabalho, vários tipos de detectores cintiladores inorgânicos com relação a seus possíveis usos, porém não incluíram o iodeto de césio dopado com lítio (CsI:Li).

Pesquisas realizadas por Brubaker (BRUBAKER et al, 2013) e Yang (YANG et al., 2017) utilizaram cristais de NaI:Tl co-dopados com  ${}^6\text{Li}$  (NaI:Tl-Li). Uma vez que o Li é um metal alcalino assim como o Na, o Li pode substituir o Na na estrutura cristalina. Os resultados foram promissores para o uso do cristal de NaI:Tl-Li como detector de nêutrons, porém, pesquisas devem ser conduzidas para aprimorar algumas as características desse cintilador.

Em um trabalho recente, Yang (YANG et al., 2017) e colaboradores também cresceram um cristal de NaI:Tl co-dopado com  ${}^6\text{Li}$  em concentrações de até 8%. Este trabalho mostrou uma evolução com relação ao trabalho de Brubaker (BRUBAKER et al., 2013), resultados melhores foram obtidos principalmente na discriminação no formato do pulso (PSD, *Pulse Shape Discriminator*) entre a radiação gama e nêutrons.

Poucos estudos são encontrados na literatura utilizando o cristal de CsI dopado com Li para detecção de nêutrons como descrito por MADI FILHO e



colaboradores (MADI FILHO et al., 2015). O trabalho de Madi Filho usa uma fotomultiplicadora acoplada ao cristal e o arranjo é montado com uma camada de parafina posicionada entre a fonte de nêutrons de AmBe e o cristal, afim de termalizar os nêutrons e aumentar a eficiência de detecção do conjunto. O arranjo experimental mostrou uma boa sensibilidade para nêutrons rápidos e para nêutrons térmicos. Os resultados se mostraram promissores para iniciar uma linha de pesquisa para caracterizar melhor esse cristal.

Pereira e colaboradores (PEREIRA et al., 2015) cresceram um cristal de CsI:TI usando a técnica de Bridgman em concentração de TI de  $10^{-3}$  M. O estudo mostrou a resposta do cristal sob a exposição de diferentes tipos de radiações. O estudo também mostrou a distribuição do dopante ao longo do crescimento, parâmetro usado para cortar o cristal em uma região de distribuição do dopante mais homogênea. Neste trabalho foram obtidos bons resultados em resolução de energia quando excitados com radiação gama e partículas alfa. O cristal também apresentou sensibilidade de detecção das partículas beta e nêutrons.

Pereira e colaboradores (PEREIRA et al., 2016) também cresceram cristais de CsI:Li e CsI:Br em concentrações de  $10^{-3}$  M e  $10^{-2}$  M respectivamente para uso como detectores de nêutrons. Os resultados foram comparados com o cristal de CsI puro. O Li usado foi o natural o qual possui 7,5% de  $^6\text{Li}$ . Os resultados obtidos mostraram-se promissores sendo o cristal dopado com Li o que apresentou maior sensibilidade à detecção de nêutrons quando comparado ao cristal de CsI:Br.

Tomáz (TOMÁZ, 2019) otimizou o processo de crescimento do CsI:Li e caracterizou o cristal quanto às propriedades físicas, químicas e quanto às propriedades como sensores de radiação. Os cristais obtidos por Tomáz variaram em concentrações de  $10^{-1}$  M,  $10^{-2}$  M,  $10^{-3}$  M e  $10^{-4}$  M e estes foram submetidos à radiação gama, dos isótopos  $^{241}\text{Am}$  (59 keV),  $^{133}\text{Ba}$  (355 keV),  $^{137}\text{Cs}$  (662 keV),  $^{60}\text{Co}$  (1173 keV, 1333 keV) e  $^{22}\text{Na}$  (511 keV, 1275 keV) e de nêutrons emitidos por uma fonte de AmBe. As concentrações de dopantes que mais se mostraram eficazes na detecção de nêutrons e para radiação gama foram os cristais com concentrações de  $10^{-2}$  M e  $10^{-3}$  M, respectivamente. Os espectros obtidos com os

cristais dopados foram comparados com os espectros obtidos com um cristal de CsI puro, usado como referência.

CIESLAK e colaboradores, (CIESLAK et al., 2019) em seu trabalho fez uma revisão crítica dos cristais cintiladores usados como detectores de nêutrons. Existe um grande interesse da comunidade científica em desenvolver diversos tipos de detectores de nêutrons principalmente causada pela escassez de  $^3\text{He}$  no mercado mundial. CIESLAK et al., apresentaram uma discussão sobre as principais características dos diversos tipos de cristais cintiladores comparando suas propriedades, porém não está relacionado o cristal CsI:Li usado neste trabalho.

A Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA) lançou um “TECDOC” onde reúne experiências e opiniões de especialistas nos campos em que a detecção de nêutrons é usada como ferramenta fundamental. As áreas abordadas neste trabalho são: metrologia, dosimetria, espectroscopia, aplicações em fusão e espalhamento. Dentre os vários tipos de detectores sugeridos para a substituição dos detectores de  $^3\text{He}$ , são citados os cristais cintiladores (TECDOC IAEA, 2020).

### **3.6 Técnica de Bridgman para crescimento de cristais**

Em geral uma substância ao passar por um processo de resfriamento em uma velocidade adequada, esta pode solidificar levando à ordenação de átomos em um padrão repetitivo formando um cristal (CALLISTER, 2002).

A técnica de crescimento de cristais pelo método de Bridgman foi desenvolvida por P. W. Bridgman em 1925 (Bridgman, 1925) a qual consiste em fundir em um forno vertical um material em uma temperatura pouco acima da temperatura de fusão ( $T_f$ ). O material a ser fundido é colocado em um cadinho com formato geométrico com base afinada e em seguida, deslocado lentamente a velocidade de 1 mm/h, em direção a uma zona de temperatura menor para a solidificação gradativa do material fundido. Devido ao formato afinado do cadinho, o material fundido ao ser deslocado no forno para uma região de temperatura

mais baixa, possibilita a formação de um núcleo orientador, o qual servirá como modelo de repetição formando uma estrutura monocristalina.

A distribuição das impurezas adicionadas no crescimento do cristal vai depender de parâmetros como o coeficiente de segregação, a velocidade de avanço da interface sólido-líquido, grau de agitação ou miscigenação do material fundido, gradiente térmico na interface e a difusividade da impureza tanto na fase líquida como na fase sólida. (GARCIA, 2007), (BIRKS, 1964), (BALDOCHI, 1993).

Considerando a concentração de impureza  $C_0$  seja uniforme no material fundido e que a difusão dessa impureza no estado sólido seja desprezível, a segregação na cristalização normal é dada pela relação de Pfann, descrita na equação (8). (PFANN, 1958)

$$C_s = k \cdot C_0 \cdot (1 - g)^{k-1} \quad (8)$$

Sendo  $k$  o coeficiente de segregação efetivo para o caso de impurezas em fluidos em fusão e é descrita pela relação (9);

$$k = \frac{C_s}{C_i} \quad (9)$$

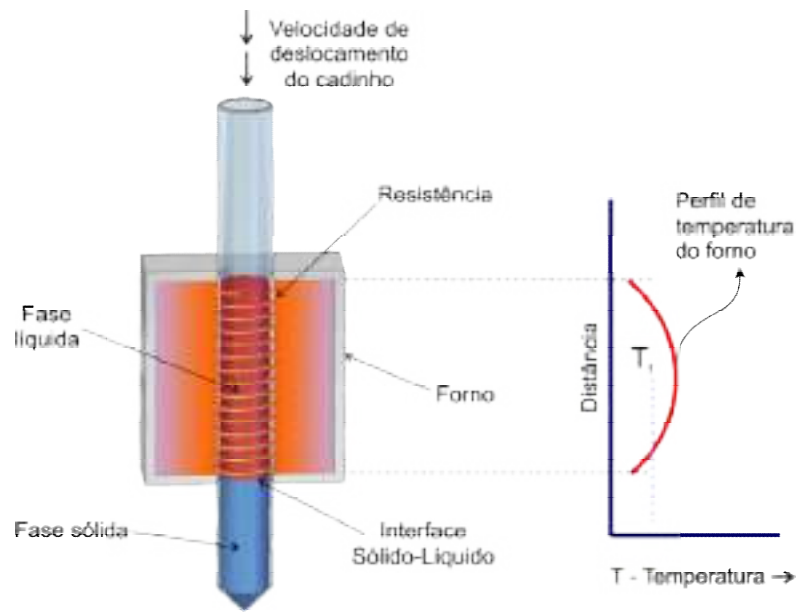
$C_s$  é a concentração de impurezas no sólido, onde a fração  $g$  do material inicial foi cristalizada e  $C_i$  é a concentração do soluto no líquido adjacente à interface (PEREIRA, 2006); (BALDOCHI, 1993).

O parâmetro  $g$  representa a fração solidificada do material fundido.

Se o processo de solidificação do material ocorrer em uma velocidade adequada a fração  $g$  que avança, incorpora ou rejeita a impureza mais rápido que a capacidade de difusão no volume do material fundido, originando uma região próxima à interface com concentração de impurezas elevada ou reduzida (PEREIRA, 2006).

A Figura 3.8 mostra o processo de crescimento de cristais pelo método de Bridgman.

Figura 3.8 - Crescimento de cristais por solidificação normal pelo método Bridgman



Fonte: autor da tese. Figura adaptada do livro Solidificação Fundamentos e Aplicações – Amauri Garcia, 2007.

Apesar do lítio 6 ser um conhecido material usado como componente de detectores de nêutrons, dos mais variados princípios de funcionamento, é recente seu uso como elemento dopante do cristal CsI de maneira a torná-lo sensível a nêutrons, como os trabalhos desenvolvidos por Pereira (PEREIRA et al., 2013), Tomaz, (TOMAZ et al., 2019) e Madi Filho (MADI FILHO et al., 2015). Novos estudos são necessários para conhecer o potencial do CsI dopado com lítio como sensor de nêutrons e como poderemos otimizar o seu crescimento.

## 4 MATERIAIS E MÉTODOS

Para o desenvolvimento deste trabalho foram usados cristais cintiladores inorgânicos disponíveis e crescidos nas dependências dos laboratórios de crescimento de cristais do CETER – IPEN. Esses cristais foram crescidos por meio da técnica de Bridgman que é um dos métodos mais usados para crescimento de cristais.

Um cristal é um sólido no qual os seus átomos e moléculas contituíntes estão ordenados em um padrão de simetria que se repete por todo volume do cristal.

Para a caracterização dos cristais cintiladores foram feitos os seguintes ensaios:

### 4.1 Transmitância óptica

Transmitância é a fração da luz incidente com um comprimento de onda específico, que atravessa uma amostra de matéria. É um fenômeno relacionado diretamente a absorbância. Exprime a fração da energia luminosa que consegue atravessar uma determinada espessura de um material, sem ser absorvida, ou seja, a capacidade de transmitir a luz. A expressão que relaciona absorbância ( $A$ ) com a transmitância ( $T$ ) é descrita em (10): (PEREIRA, 2006)

$$A = \log(1/T) \Rightarrow T = 10^{(-A)} \quad (10)$$

Uma das características mais importantes para um cristal cintilador detector de radiação é a transparência dentro da região mais sensível do fotosensor. O fóton de luz emitido decorrente da interação do cristal com a radiação deve sofrer a menor perda possível de luz até chegar ao fotosensor. A transmitância pode ser avaliada submetendo o cristal à incidência de radiação de luz no comprimento de onda da cintilação e comparando com o valor de um padrão o qual pode ser o ar.

Nesse sentido foram efetuadas medidas de transmitância nos cristais de CsI:Li nas concentrações de dopante de  $10^{-4}$  M a  $10^{-1}$  M utilizando-se um espectrofotômetro UV-visível (Shimadzu UV 1601 PC). A região espectral de abrangência foi de 190 nm a 1100 nm, e o caminho óptico foi de 3 mm. O cristal de CsI puro foi utilizado para comparação.

## **4.2 Emissão de luminescência**

A determinação da emissão de luminescência é outra característica muito importante do cristal cintilador, pois vai indicar em qual comprimento de onda a luz será emitida após a incidência da radiação. Conhecer o comprimento de onda de máxima emissão de luminescência é importante para a escolha do fotosensor adequado para a montagem do detector de radiação.

Essa medida foi realizado utilizando um monocromador, acoplado opticamente a fotomultiplicadora Os cristais cintiladores foram estimulados com uma fonte radioativa de  $^{137}\text{Cs}$  (662 keV) em frente a cada amostra acoplada na entrada do monocromador. O monocromador foi ajustado para varrer a faixa de comprimento de onda de 250 nm a 700 nm. Os espectros de emissão de luminescência obtidos dos cristais dopados foram comparados com o cristal CsI puro. A eletrônica usada foi convencional de instrumentação ORTEC.

## **4.3 Distribuição do dopante ao longo do eixo cristalino**

Conhecer a distribuição do dopante no cristal após o processo de crescimento é importante, pois devido aos fenômenos de segregação de impurezas, a distribuição é alterada ao longo do eixo de crescimento originando um gradiente de concentração.

Uma distribuição homogênea de dopante numa região apreciável dos cristais cintiladores é altamente desejável para materiais destinados a construção de detectores de radiação, tendo em vista que a otimização da eficiência de emissão de luz de cintilação é dependente dessa homogeneidade.

A técnica de análise usada para a determinação da distribuição do dopante lítio ao longo do eixo de crescimento do cristal foi a Espectrometria de emissão óptica com plasma de argônio (ICP OES), marca Spectro, modelo Arcos (Spectro Analytical Instruments Co, Kleve, Alemanha). A técnica de análise ICP-OES é uma análise qualitativa, quantitativa e multielementar que tem como princípio de funcionamento uma fonte de plasma para aquecer a amostra sendo que os átomos excitados pela alta temperatura emitem fótons de luz característicos de cada elemento. Quanto mais átomos existentes de um determinado elemento, maior será a emissão de fótons característicos do elemento.

Para esta análise foi usado um cristal crescido de CsI:Li com  $10^{-3}$  M de concentração de dopante. As amostras foram obtidas fatiando-se o cristal em 10 partes com espessuras de 14 mm cada, como mostrado na Figura 4.1. Foi retirada uma fração de 100 mg da face superior de cada fatia e solubilizada em ácido clorídrico (HCl) 1 M em volume de 25 ml.

Figura 4.1 - Esquema de corte do cristal CsI:Li  $10^{-3}$  M



Fonte: autor da tese.

#### 4.4 Análise por difração de raios X (DRX)

A difratometria de raios X é uma técnica de caracterização de estruturas cristalinas bastante difundida e largamente utilizada (SOUZA; BITTENCOURT, 2008). Os raios X são gerados quando uma partícula de alta energia cinética é rapidamente desacelerada. O método mais utilizado para produzir raios X é fazendo com que um elétron de alta energia (gerado no cátodo do tubo catódico) colida com um alvo metálico (ânodo) (BLEICHER, L.; SASAKI, J. M., 2000).

No caso da difratometria de raios X (DRX), a grade de difração é um cristal de algum composto químico, (neste caso foi o cristal baseado em CsI), e os componentes da rede são átomos ou moléculas do composto. Cada átomo ou molécula ocupa um ponto da rede, e a menor unidade do cristal que mantém sua simetria é denominada célula unitária. A célula unitária contém toda a informação sobre a geometria do cristal uma vez que este pode ser construído a partir de múltiplas cópias desta célula unitária transladadas tridimensionalmente. O espaçamento entre dois pontos da rede característicos dos cristais é da ordem de  $10^{-10}$  m, que equivale ao comprimento de onda característico das radiações eletromagnéticas no Intervalo espectral dos raios X, por isso sendo capaz de produzir efeitos perceptíveis de difração neste tipo de onda (KITTEL, 1996) (Queiroz, 2010).

Para a preparação das amostras para a análise de DRX efetuou-se a raspagem de uma fatia do cristal CsI puro e CsI:Li  $10^{-3}$  M. O material em forma de pó das duas amostras foi submetido a análise de DRX a fim de identificar a estrutura cristalina do material após o crescimento dos cristais. O equipamento de difração de raios X utilizado foi da marca Bruker modelo D8 Advance 3 kW, equipado com tubo de radiação de cobre, goniômetro de 250 mm, monocromador de grafite e detector de cintilação. A corrente utilizada no tubo foi de 35 mA



#### 4.5 Caracterização dos cristais como detectores de nêutrons.

Os cristais com dimensões de 26 mm de diâmetro e 14 mm de espessura foram revestidos com várias camadas de fita teflon, exceto a face voltada à fotomultiplicadora com o intuito de que o fóton emitido pudesse refletir na camada branca até ser direcionado à janela da fotomultiplicadora. Figura 4.2.

Figura 4.2 - Cristal de CsI:Li revestido com fita de teflon



Fonte: autor da tese.

Os cristais foram acoplados opticamente à fotomultiplicadora usando graxa de silicone (Dow Corning) com viscosidade de 0,5 McStokes conforme mostrado na Figura 4.3

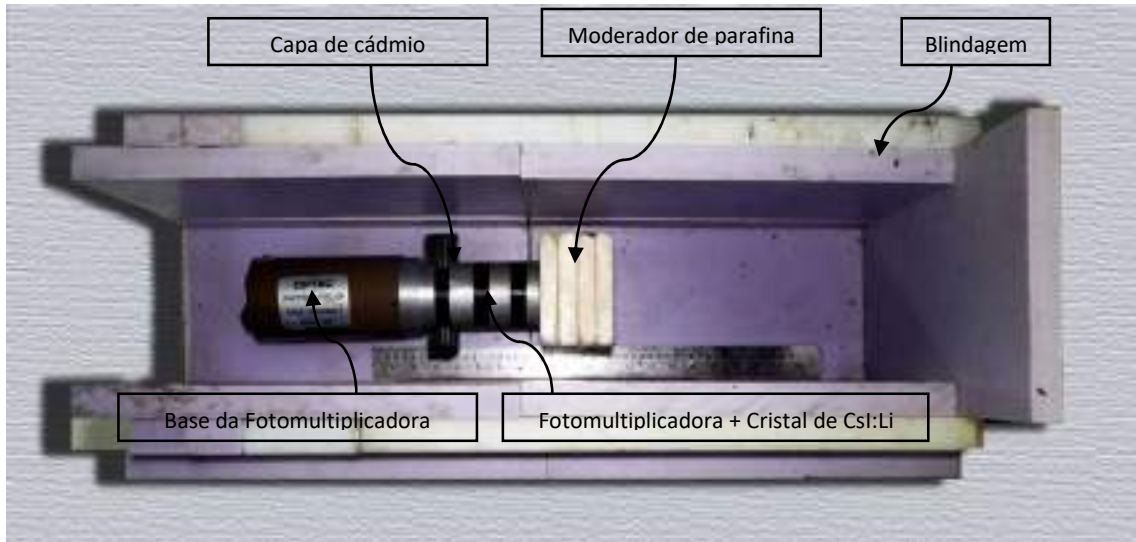
Figura 4.3 - Montagem do cristal acoplado com a fotomultiplicadora com graxa de silicone Dow Corning



Fonte: autor da tese.

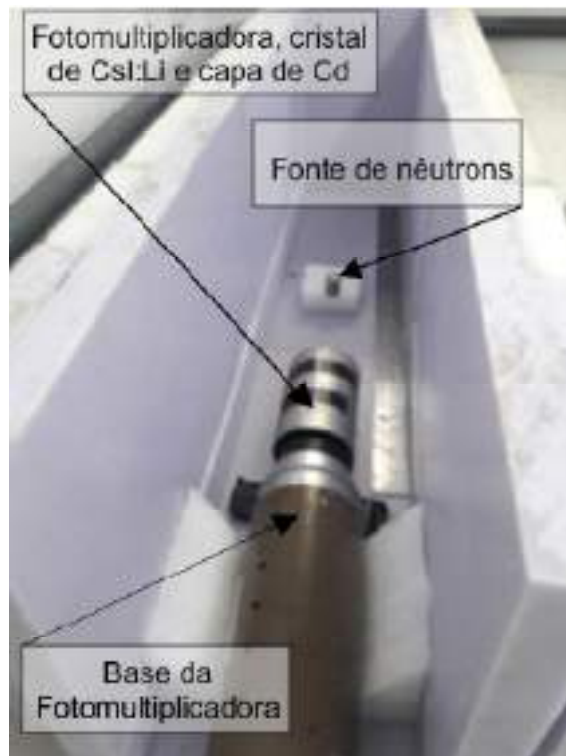
Para evitar a incidência de luz externa, o conjunto foi revestido por uma capa preta de polietileno. Todo o conjunto, (cristal, fotomultiplicadora, capa de polietileno) por sua vez foi envolto por uma camada de cádmio de 1 mm de espessura colocada no entorno do cristal para impedir que nêutrons térmicos espalhados na blindagem de polietileno pudessem ser detectados penetrando pela face lateral do cristal. As Figuras 4.4 e 4.5 mostram o arranjo montado e pronto para as medidas no arranjo experimental.

Figura 4.4 - Montagem Experimental., Base da fotomultiplicadora, Fotomultiplicadora + cristal de CsI:Li, capa de cádmio, moderador de parafina e blindagem



Fonte: autor da tese.

Figura 4.5 - Montagem Experimental: Fotomultiplicadora, base, cristal e fonte de nêutrons



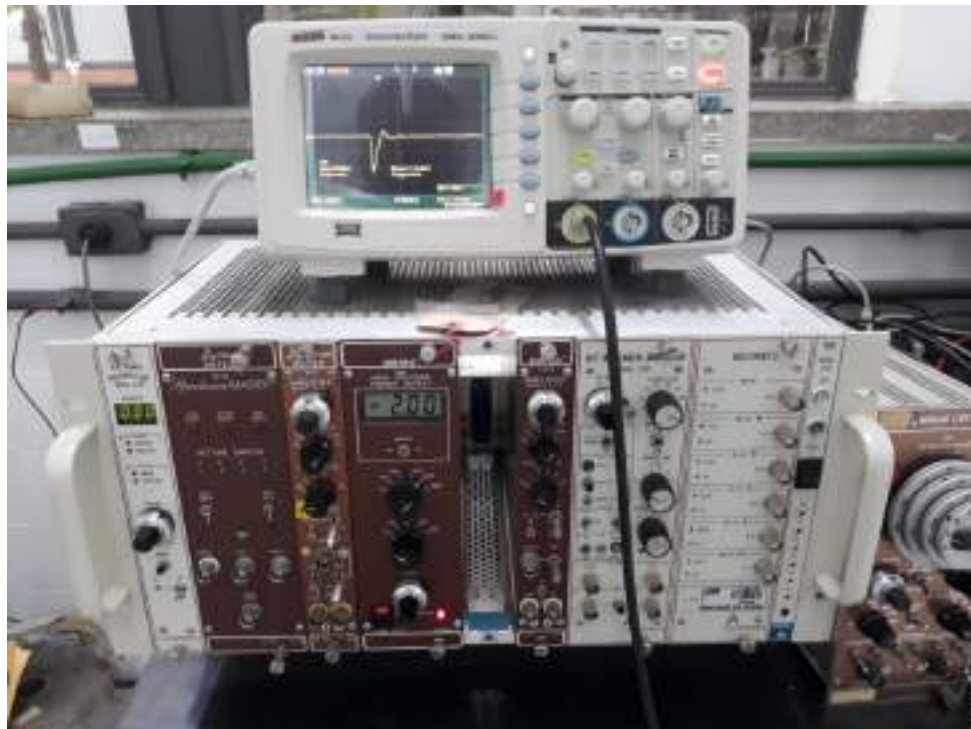
Fonte: autor da tese.

A fotomultiplicadora usada foi da marca RCA, bi alcalina modelo 8575 de 21 pinos conectada a uma fonte de tensão modelo ORTEC 556 sendo aplicada tensão negativa de 2000 volts, foi usado um pré-amplificador ORTEC 265.

O sinal de saída do pré-amplificador foi acoplado em um amplificador ORTEC 572 A e posteriormente ao analisador multicanal ADCAM ORTEC 919. Um osciloscópio Instrutherm modelo OD-270 de 100 MHz foi utilizado para monitorar o pulso nos ajustes e no monitoramento dos sinais eletrônicos.

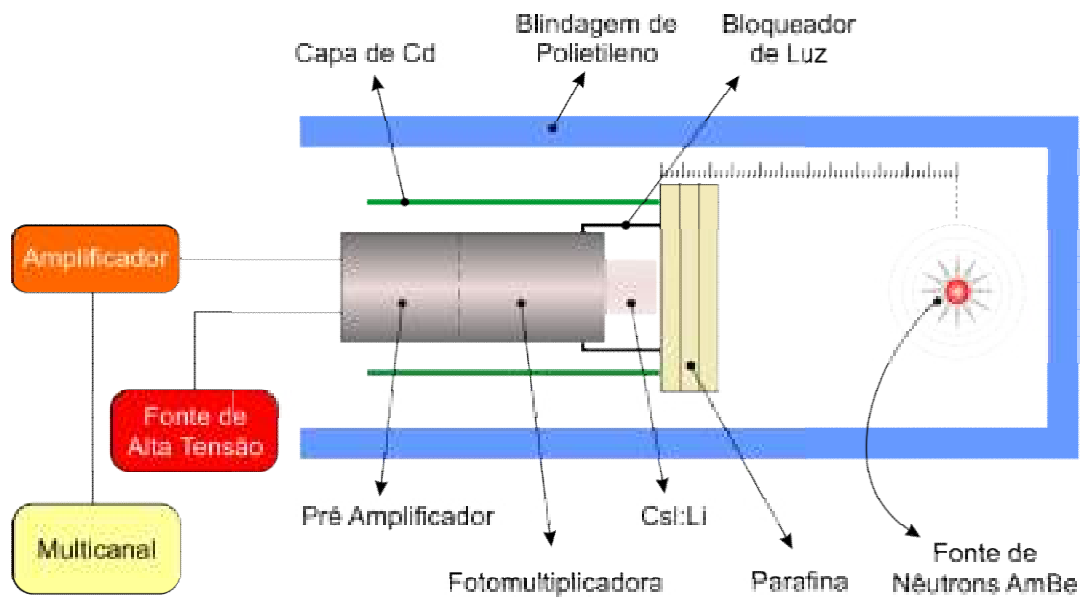
Os espectros obtidos foram gravados em microcomputador para posterior análise. As Figuras 4.6 e 4.7 mostram o arranjo eletrônico e a montagem esquemática do experimento.

Figura 4.6 - Arranjo eletrônico usado no experimento



Fonte: autor da tese.

Figura 4.7 - Montagem esquemática do experimento



Fonte: autor da tese.

O conjunto foi submetido a incidência de radiação gama das fontes de  $^{241}\text{Am}$  e de  $^{137}\text{Cs}$  para as energias de 59,6 keV e 662 keV respectivamente. Essas fontes foram escolhidas para contagens no equipamento para avaliar a interferência do fóton gama emitido no decaimento do  $^{241}\text{Am}$  da fonte de AmBe usada como fonte de nêutrons e a fonte de  $^{137}\text{Cs}$  foi usada como referência para comparar os cristais: a) dopados dopados com Li e b) cristal de CsI puro (sem dopagem). As fontes radioativas foram posicionadas ao centro da face do cristal.

A resposta à incidência de nêutrons foi feita com uma fonte de AmBe modelo AMN.30 da AMERSHAM. Essa é uma fonte cilíndrica contendo em seu interior uma mistura compactada de óxido de amerício ( $^{241}\text{Am}$ ) e berílio metálico duplamente encapsulado em aço inox (BORIO et al., 2001) em cápsula modelo X.2, como mostrado nas Figuras 4.8, 4.9, 4.10 e 4.11.

Figura 4.8 - Identificação da fonte de nêutrons usada neste trabalho



Fonte: autor da tese.

Figura 4.9 - Fonte de nêutrons, detalhe lateral



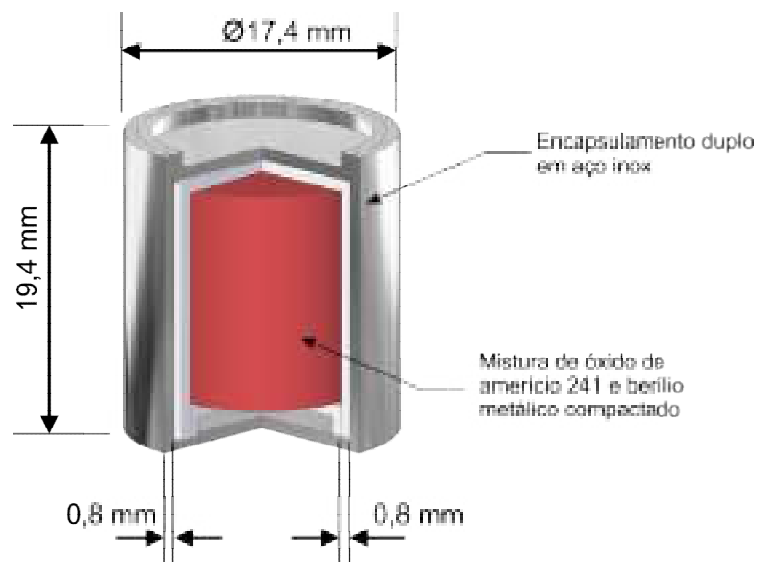
Fonte: autor da tese.

Figura 4.10 - Fonte de nêutrons, detalhe superior



Fonte: autor da tese.

Figura 4.11 - Desenho da cápsula da fonte de nêutrons



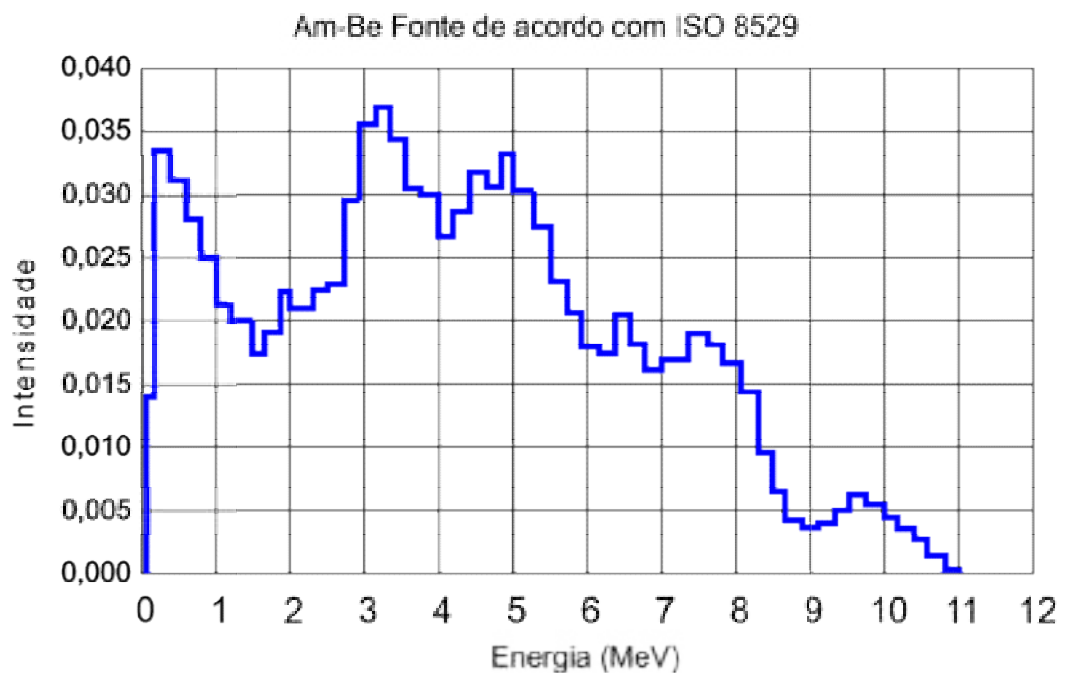
Cápsula modelo X.2

Fonte: autor da tese. Desenho adaptado do catálogo da fonte de nêutrons AMN.30 - AMERSHAM.

Os nêutrons são produzidos via reação ( $\alpha,n$ ) no  $^9\text{Be}$ , como descrita na equação (2). A fonte possui uma atividade nominal de 30 mCi de  $^{241}\text{Am}$  correspondendo a uma taxa de emissão de nêutrons  $7,8 \times 10^4 \text{ n.s}^{-1}$  na data de calibração em Outubro de 1980. Na data da realização dos experimentos deste trabalho, a intensidade de emissão foi atualizada em  $7,53 \times 10^4 \text{ n.s}^{-1}$  em razão do decaimento do  $^{241}\text{Am}$ .

O espectro de energias de emissão de nêutrons da fonte de Am-Be tem energias que variam de 0,414 eV a 11,03 MeV, como mostrado na Figura 4.12 (DRABINA, et al 2003)

Figura - 4.12 Espectro de energia de nêutrons da fonte de AmBe de acordo com o padrão ISSO 8529



Fonte: (DRABINA, et al., 2003).

A Tabela 4.1 apresenta as fontes radioativas usadas na elaboração deste trabalho.



Tabela 4.1 - Fontes de radiação usadas neste trabalho

Fonte		Energia da Radiação	Atividade na data do experimento	Referência:
$\gamma$	$^{137}\text{Cs}$	662 keV	<sup>1</sup> 19,84 kBq	3
$\gamma$	$^{241}\text{Am}$	59,6 keV	<sup>1</sup> 41,20 kBq	3
n	AmBe	*Ver Figura 4.11	$7,53 \times 10^4 \text{ n.s}^{-1}$	2

Fonte: <sup>1</sup> autor da tese, <sup>2</sup>BORIO et al., (2002), <sup>3</sup>DRABINA et al., (2003)

Foram usados blocos de parafina de espessura de 20 mm, posicionados entre o cristal de CsI:Li e a fonte de nêutrons, o que possibilitou variar a espessura da parafina de 0, 20, 40, 60 e 80 mm.

A fonte foi posicionada a distância de 150 mm como mostra a Figura 4.7. Foram feitas medidas com fontes de radiação gama com  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{241}\text{Am}$  nas mesmas condições das medidas realizadas com a fonte de nêutrons de AmBe.

Sempre no início das contagens do dia e ao final das contagens, uma medida do BG (radiação de fundo) do laboratório foi obtida.

O tempo de aquisição foi ajustado em 600 s após estudos iniciais que levaram em conta ajustes de ganho de amplificação, tensão de operação da fotomultiplicadora e a qual distância ficariam as fontes de nêutrons e gama do cristal de CsI:Li.

Os nêutrons espalhados que não incidem diretamente da fonte são absorvidos pela camada de Cd envolvendo o cristal e a fotomultiplicadora.

#### 4.6 Simulação com a técnica de Monte Carlo.

O método Monte Carlo é uma importante ferramenta para simular a interação da radiação com a matéria, sejam nêutrons, prótons, elétrons ou fótons ou o conjunto delas. Na simulação o código considera a sequência dos eventos probabilísticos individuais que compõem um processo. Estas distribuições de probabilidade são estatisticamente amostradas para descrever o fenômeno total.

O MCNP (Monte Carlo N-Particle) foi desenvolvido e é mantido pelo Laboratório Nacional de Los Alamos, LNLA. É capaz de realizar simulações de transporte de partículas em diversos materiais e com amplos intervalos de energia.

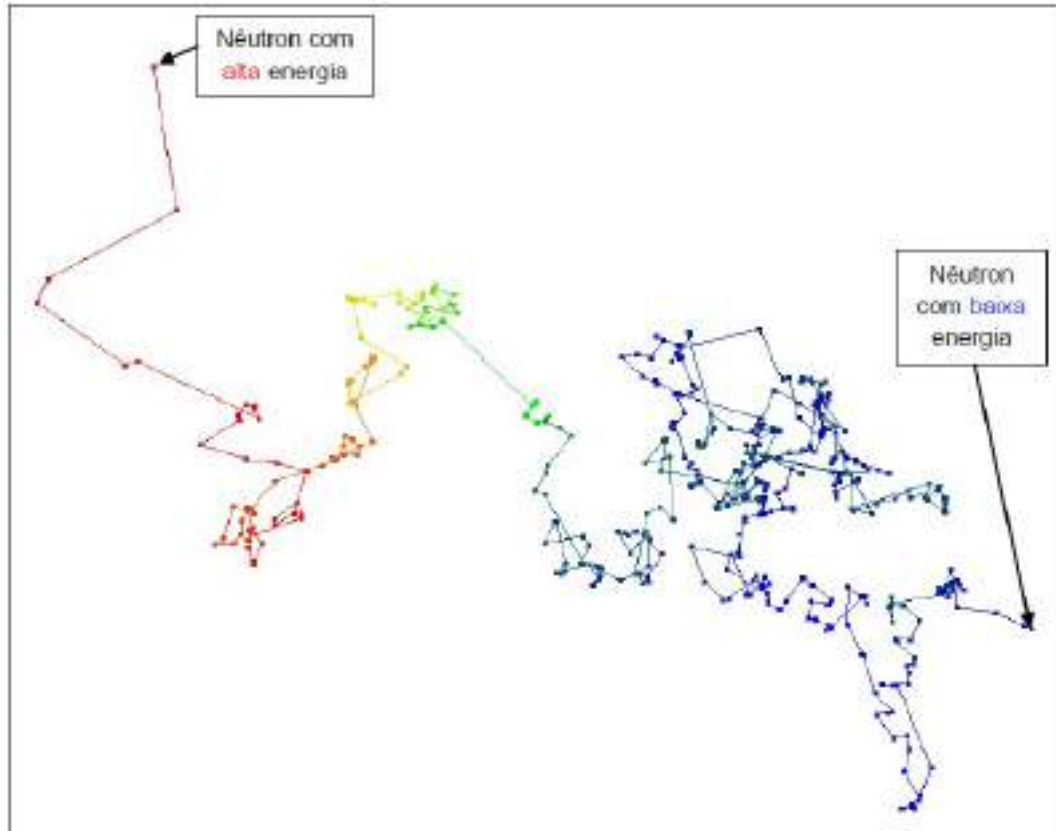
O processo de amostragem estatística baseia-se na seleção de números aleatórios. O código segue cada uma das muitas partículas de uma fonte ao longo de sua vida até sua morte, considerando todos os eventos prováveis como absorção e fuga. (X-5 Monte Carlo Team, 2003); (TUFFOUR-ACHAMPONG et al, 2012); (RODRIGUES, 2016).

A precisão da simulação vai depender do número de ensaios necessários para descrever totalmente o fenômeno, que vai depender da geometria proposta e dos resultados esperados. Um tempo de processamento longo pode ser necessário para as simulações requerendo computadores com boa velocidade de processamento.

Dados pontuais de seção de choque são utilizados para nêutrons considerando as bibliotecas de seção de choque disponíveis (como EBDF/B-VI "*Evaluated Nuclear Data File / version B-VI*")

A Figura 4.13 mostra o caminho aleatório de um nêutron rápido em um meio perdendo energia por choques com átomos do meio material até ser termalizado, conforme simulação do código MCNP – versão 6.

Figura 4.13 - Caminho aleatório de um nêutron rápido em processo de termalização com átomos do meio material até ser absorvido, conforme simulação com o código MCNP – versão 6



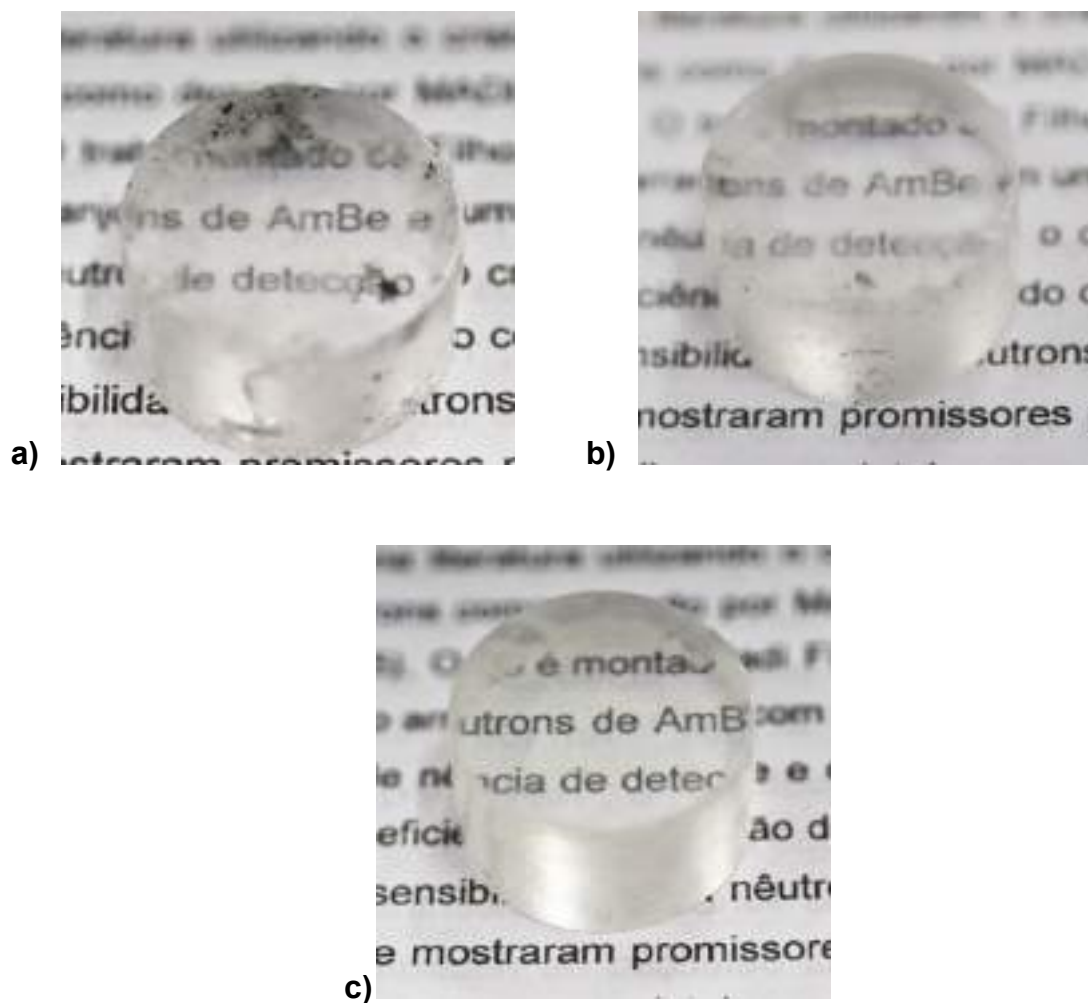
Fonte: (RODRIGUES, 2016).

A técnica foi usada para calcular a taxa de reação do nêutron térmico com o  ${}^6\text{Li}$  do cintilador ao longo da espessura do cristal e com isso avaliar a melhor espessura de cristal com  $10^{-3}$  M de  ${}^6\text{Li}$  para a detecção de nêutrons.

## 5 RESULTADOS E DISCUSSÃO

Neste trabalho foram utilizados cristais de iodeto de cério ativados com lítio (CsI:Li) em concentrações de  $10^{-1}$  M a  $10^{-4}$  M crescidos pela técnica de Bridgman. Na Figura 5.1 são mostrados cristais de CsI:Li com 14 mm de altura e 26 mm de diâmetro em várias concentrações do dopante lítio.

Figura - 5.1 Cristal de CsI:Li; a)  $10^{-2}$  M; b)  $10^{-3}$  M e c)  $10^{-4}$  M



Fonte: autor da tese.

## 5.1 Transmitância óptica

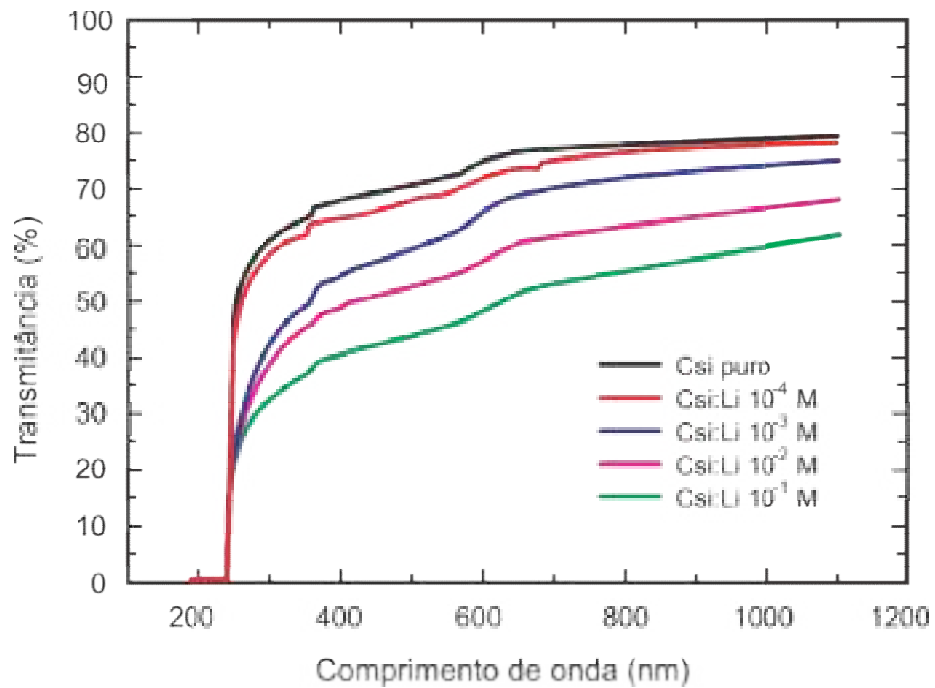
Com a finalidade de quantificar o grau de transparência dos cristais cintiladores de CsI:Li, para uso como detectores de radiação, foram realizados ensaios de transmitância óptica na região espectral de abrangência de 190 nm à 1100 nm. O cristal de CsI puro foi utilizado para fins de comparação.

Na Figura 5.2 são mostradas as curvas de transmitância dos cristais de CsI puro e CsI:Li nas concentrações do elemento dopante lítio usadas neste trabalho. A transmitância óptica do cristal CsI puro foi de 80% para o comprimento de onda de 1100 nm e variando de 61% a 75% no intervalo de comprimento de onda de 300 nm a 600 nm respectivamente e caindo praticamente a zero para comprimentos de onda abaixo de 240 nm, cujos valores estão de acordo com a literatura (PEREIRA, 2006).

O cristal de CsI:Li  $10^{-4}$  M apresentou comportamento similar ao CsI puro, com aproximadamente 80% para comprimento de onda de 1100 nm e praticamente zero para comprimentos de onda abaixo de 240 nm. O cristal de CsI:Li para comprimentos de onda no intervalo de 300 nm a 600 nm a transmitância variou de 58% a 72%, respectivamente.

A transmitância óptica do cristal de CsI:Li  $10^{-3}$  M foi de aproximadamente 76% para o comprimento de onda de 1100 nm e praticamente zero para comprimentos de onda abaixo de 240 nm. No intervalo de comprimento de onda de 300 nm à 600 nm, a região de interesse de estudo de intensidade de luminescência, a transmitância óptica variou de 43% a 66% respectivamente.

Figura 5.2 - Curvas de transmitância em função do comprimento de onda para os cristais de CsI puro e de CsI:Li com concentrações de dopante de  $10^{-4}$  M a  $10^{-1}$  M



Fonte: autor da tese.

O cristal de CsI:Li  $10^{-2}$  M apresentou transmitância óptica de aproximadamente 68% para o comprimento de onda de 1100 nm caindo a zero para o comprimento de onda abaixo de 240 nm. Em comprimentos de onda entre 300 nm a 600 nm, a transmitância óptica variou de 40% a 58%.

O cristal de CsI:Li  $10^{-1}$  M apresentou a menor transmitância no intervalo de concentração de lítio estudado, com 62% para o comprimento de onda de 1100 nm caindo a zero para o comprimento de onda abaixo de 240 nm. Para comprimentos de onda entre 300 nm a 600 nm, a transmitância óptica variou de 33% a 48% respectivamente e 40% para comprimento de onda de 400 nm a 600 nm. Os valores de transmitância são apresentados na Tabela 5.1.

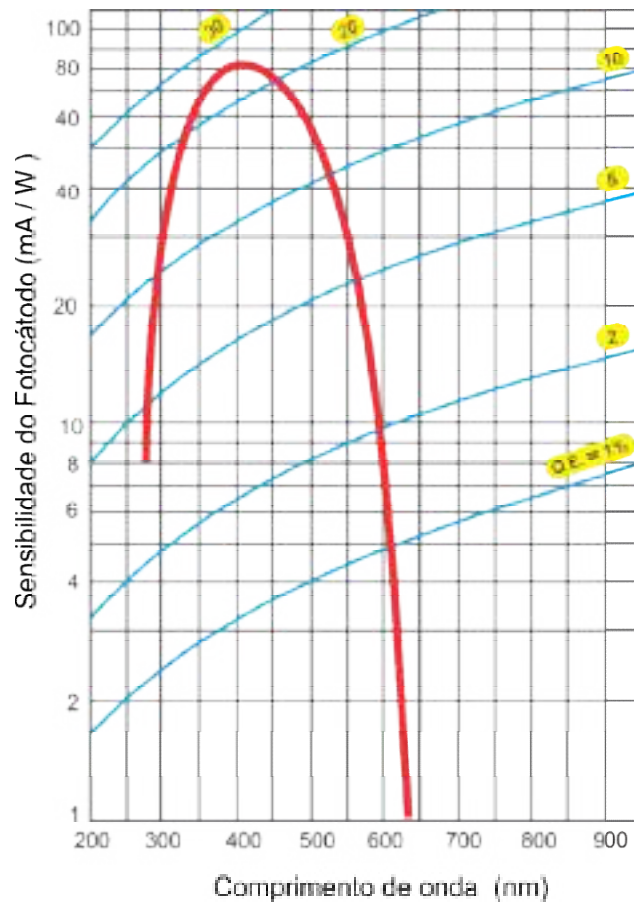
Tabela 5.1 - Transmitância em função do comprimento de onda para os cristais de CsI puro e de CsI:Li

Cristal	Transmitância óptica $\lambda = 1100 \text{ nm}$	Transmitância óptica $\lambda < 240 \text{ nm}$	Transmitância óptica $300 \text{ nm} < \lambda < 600 \text{ nm}$
CsI (Puro)	80%	~ 0%	61% ~ 75%
CsI:Li $10^{-4}$ M	80%	~ 0%	58% ~ 72%
CsI:Li $10^{-3}$ M	76%	~ 0%	43% ~ 66%
CsI:Li $10^{-2}$ M	68%	~ 0%	40% ~ 58%
CsI:Li $10^{-1}$ M	62%	~0%	33% ~ 48%

Fonte: autor da tese.

O intervalo de comprimento de onda de 300 nm à 600 nm é o intervalo de sensibilidade de eficiência quântica da fotomultiplicadora usada neste trabalho, de acordo com o catálogo do fabricante, modelo RCA 8575, como mostra a Figura 5.3 ([https://123.physics.ucdavis.edu/shot\\_files/Burle\\_8575PMT.pdf](https://123.physics.ucdavis.edu/shot_files/Burle_8575PMT.pdf)).

Figura 5.3 - Curva de eficiência quântica da fotomultiplicadora RCA 8575



Fonte: Figura adaptada de: [https://123.physics.ucdavis.edu/shot\\_files/Burle\\_8575PMT.pdf](https://123.physics.ucdavis.edu/shot_files/Burle_8575PMT.pdf).

A transmitância óptica de todos os cristais dopados variaram de forma significativa em relação ao cristal de CsI puro. A diminuição desses valores de transmitância se deve à absorbância do Li na rede cristalina afetando a transparência no comprimento de onda em que as cintilações são produzidas.

## 5.2 Emissão de Luminescência.

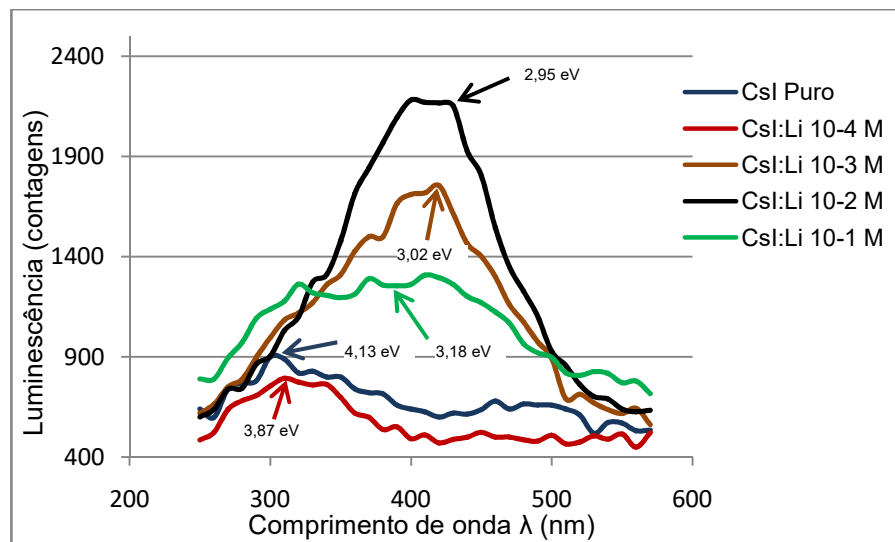
O comprimento de onda de máxima emissão de luminescência é uma propriedade importante dos cintiladores. A luz emergente do cristal afeta o número de fotoelétrons gerados na entrada do tubo fotomultiplicador, a qual por sua vez afeta a altura de pulso produzida na saída do sistema detector. Sendo assim, foi importante conhecer o comprimento de onda de máxima intensidade de



luminescência dos cristais utilizados neste trabalho, para que pudéssemos selecionar o fotosensor adequado para montagem do sistema de detecção de radiação.

Os espectros de luminescência em função do comprimento de onda para o cristal CsI puro e os cristais CsI:Li  $10^{-4}$  M,  $10^{-3}$  M,  $10^{-2}$  M e  $10^{-1}$  M, excitados com radiação gama proveniente de uma fonte de  $^{137}\text{Cs}$  são mostrados na Figura 5.4.

Figura 5.4 - Espectros de luminescência para os cristais de CsI puro e CsI:Li  $10^{-4}$  M,  $10^{-3}$  M,  $10^{-2}$  M e  $10^{-1}$  M utilizando radiação gama do  $^{137}\text{Cs}$



Fonte: autor da tese.

A intensidade máxima de emissão de luminescência no comprimento de onda de 320 nm, encontrada para o cristal CsI puro, está de acordo com a literatura (PEREIRA, 2006), (SUZART, 2022). Na Figura 5.4, são mostrados os espectros de luminescência para os cristais de CsI:Li com picos de máxima intensidade em comprimento de onda ao redor de 420 nm para todas as concentrações do elemento dopante Li. Como pode ser observado, o cristal de CsI:Li  $10^{-2}$  M foi o que apresentou a maior intensidade de luminescência no intervalo de concentração estudado.

O efeito do lítio na rede cristalina do cristal de CsI:Li foi diminuir o intervalo de energia entre a banda de valência e a banda de condução. Na Figura 5.4 são mostrados os picos de luminescência para os cristais: puro.  $\lambda_{\text{CsI}} = 300 \text{ nm}$  e dopados,  $\lambda_{\text{CsI:Li } 10^{-1} \text{ M}} = 370 \text{ nm}$ ,  $\lambda_{\text{CsI:Li } 10^{-2} \text{ M}} = 420 \text{ nm}$ ,  $\lambda_{\text{CsI:Li } 10^{-3} \text{ M}} = 410 \text{ nm}$  e  $\lambda_{\text{CsI:Li } 10^{-4} \text{ M}} = 320 \text{ nm}$ .

A equação que relaciona o comprimento de onda da luminescência de um fóton e a sua energia é dada pela equação de Plank – Einstein descrita em (11);

$$E = h \nu \quad (11)$$

sendo  $h$  a constante de Plank dada por  $6,62 \times 10^{-34} \text{ m}^2 \cdot \text{kg/s}$ ,  $\nu$  é a frequência da radiação eletromagnética em hertz (Hz). A relação entre o comprimento de onda  $\lambda$  e  $\nu$  é  $\nu = c/\lambda$ , a equação 5.1 fica  $E = h \cdot c/\lambda$  no qual  $c$  é a constante da velocidade da luz no vácuo equivalente a  $299.793.458 \text{ m/s}$  (EISBERG, 1994).

Calculando a energia  $E$  para o CsI puro e comparando a energia  $E$  para os cristais dopados com Li nas concentrações de  $10^{-4} \text{ M}$  a  $10^{-1} \text{ M}$ , tem-se os novos valores de energia da *band gap* apresentados na Tabela 5.2.

Tabela 5.2 - Valores de energia da *band gap*

Cristal	Pico de luminescência $\lambda$ (nm)	Gap	Redução do <i>band gap</i> %
Puro	300	4,13 eV	-
$10^{-4} \text{ M}$	320	3,87 eV	6,30
$10^{-3} \text{ M}$	410	3,02 eV	26,9
$10^{-2} \text{ M}$	420	2,95 eV	28,6
$10^{-1} \text{ M}$	370	3,35 eV	18,9

Fonte: autor da tese.

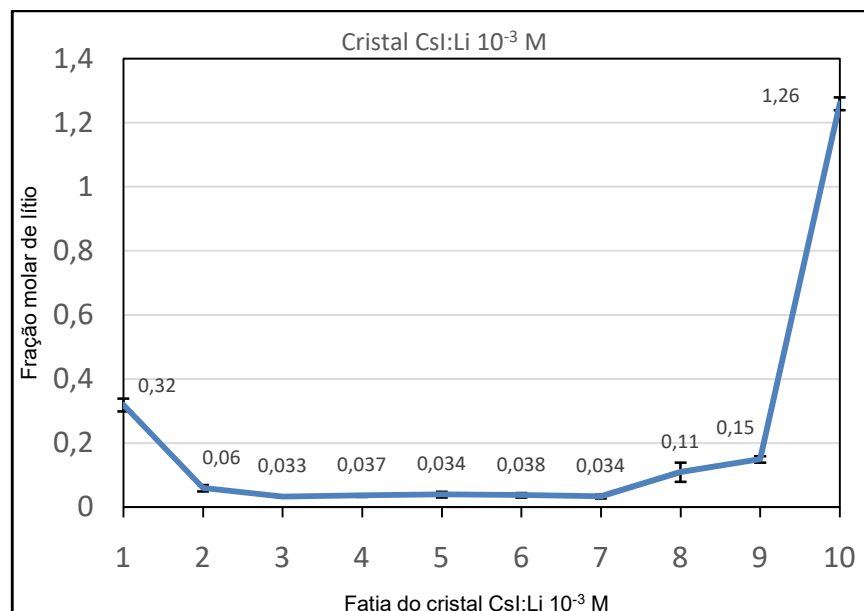
Observa-se uma diminuição do *band gap* com o aumento da concentração de dopante, atingindo o valor mínimo de 2,95 eV para o cristal com concentração de  $10^{-2}$  M de dopante lítio, correspondendo a uma redução de 28,6% no *band gap* com relação ao cristal de CsI puro. Essa diminuição melhorará a sensibilidade de detecção da cintilação produzindo mais fótons de luz por radiação incidente.

### 5.3 Distribuição do dopante

A distribuição do dopante lítio ao longo do eixo de crescimento do cristal de CsI:Li com concentração molar de  $10^{-3}$  M foi obtida usando o método de análise ICP OES. O cristal foi cortado em 10 fatias de 14 mm, retirando uma pequena amostra de cada fatia para análise.

Os resultados das análises de concentração do dopante Li em 10 fatias do cristal de CsI:Li  $10^{-3}$  M são mostrados na Figura 5.5.

Figura 5.5 - Distribuição da concentração de lítio no volume cristalino



Os valores referentes a concentração de Li representam o valor médio de três leituras com o respectivo desvio padrão de três leituras.

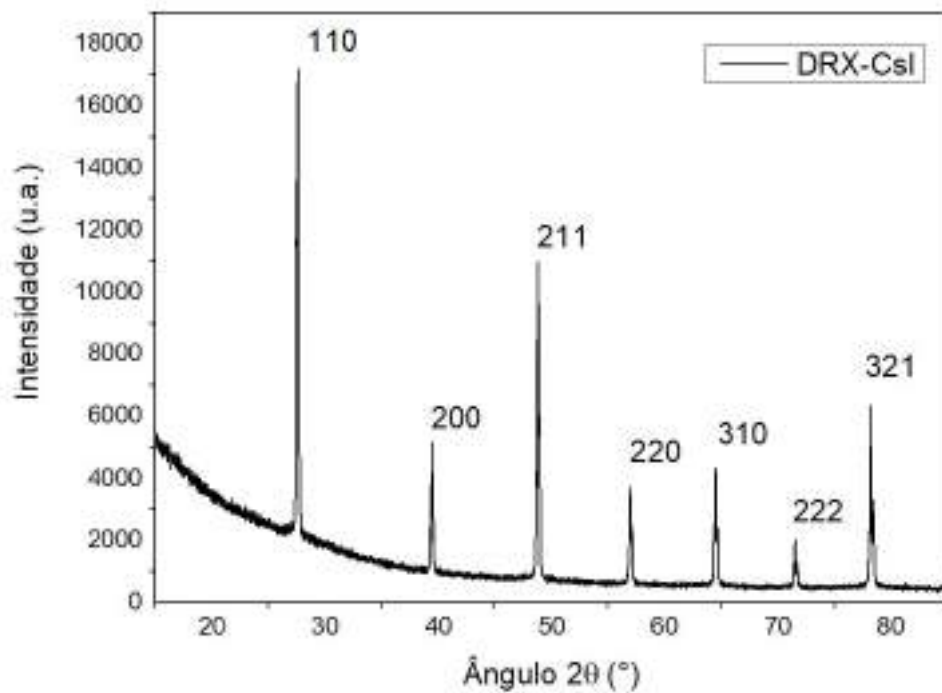
Fonte: autor da tese.

A concentração de lítio nas fatias de números 3 a 7 confirmam a teoria de segregação de impurezas, apresentando distribuição uniforme nesse intervalo e concentração mais elevada nas extremidades. Pode-se destacar a distribuição uniforme do Li entre as fatias 3 a 7 indicando a melhor região do cristal onde deverá ser feito o corte para a produção do detector.

#### 5.4 Análise por difração de raios X

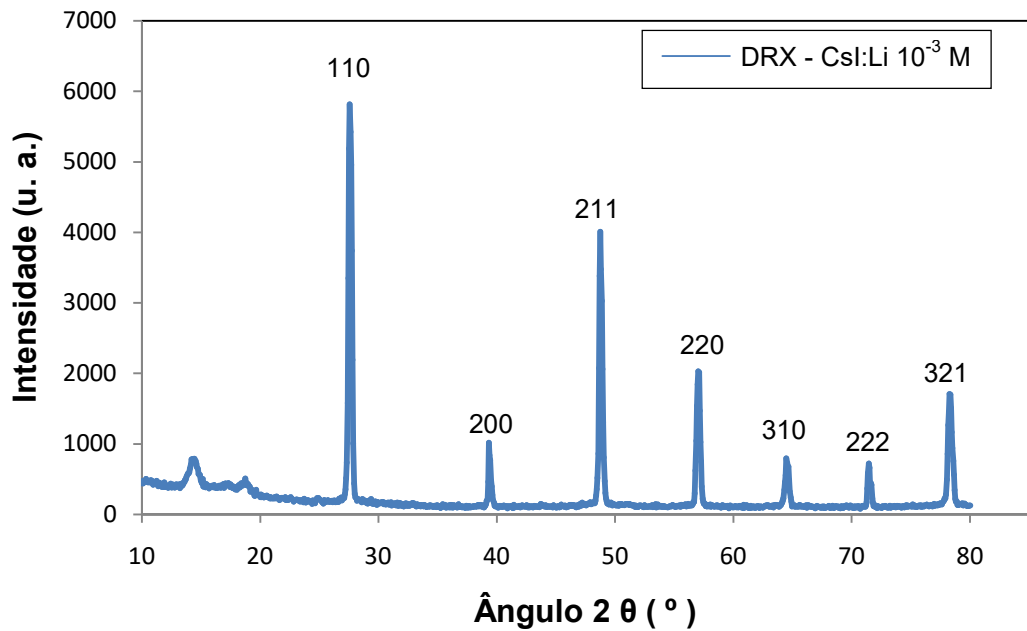
A análise da difração de raios X (DRX) teve como resultado padrões de estrutura cristalina cúbica de face centrada a qual corresponde à estrutura do CsI os difratogramas de raios X completos do cristal CsI puro e CsI:Li são mostrados nas Figuras 5.6 e 5.7

Figura 5.6 - Difratograma de raios X do cristal CsI puro



Fonte: autor da tese.

Figura 5.7 - Difratoograma de raios X do cristal de CsI:Li de  $10^{-3}$  M



Fonte: autor da tese.

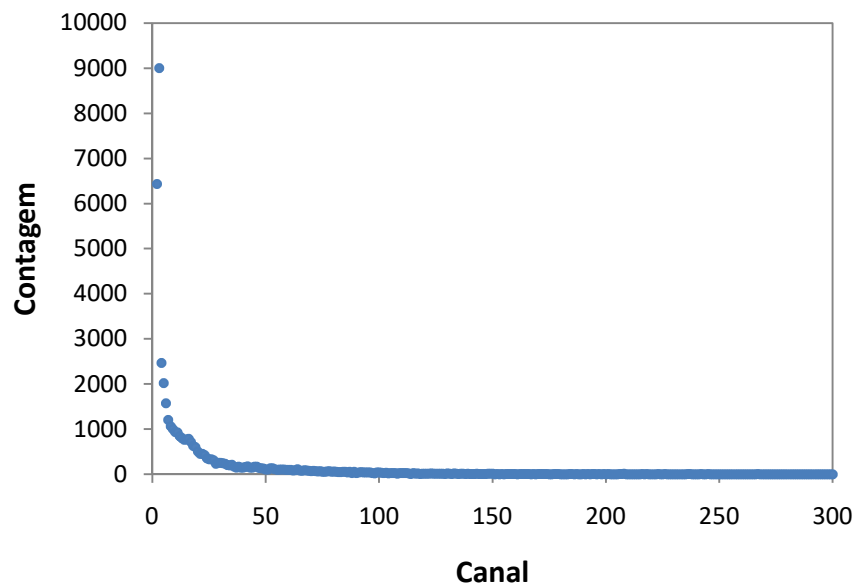
A análise da difração de raios X demonstrou que a rede cristalina do cristal CsI:Li  $10^{-3}$  M resultou em uma estrutura cúbica de face centrada (cfc). Comparando-se o resultado da análise do cristal puro e do cristal dopado com lítio mostrados nas Figuras 5.6 e 5.7, observou-se que os picos característicos correspondentes a estrutura cristalina não foram alterados exceto no valor de suas intensidades, indicando que o dopante de lítio acomodou-se perfeitamente na rede cristalina sem grandes alterações.

### 5.5 Resposta dos cristais de CsI:Li à radiação gama

Antes de iniciar as medições com os cristais cintiladores de CsI:Li, obteve-se primeiramente o espectro da radiação de fundo do laboratório. Essa medição foi realizada com o objetivo de avaliar a intensidade e influência de possíveis fontes radioativas naturais existentes no ambiente de medição. As condições de medições foram idênticas para todos os cristais, a saber: volume dos cristais, distância entre fonte e cristal, tempo de contagem, tensão no tubo fotomultiplicador, amplificação de sinal.

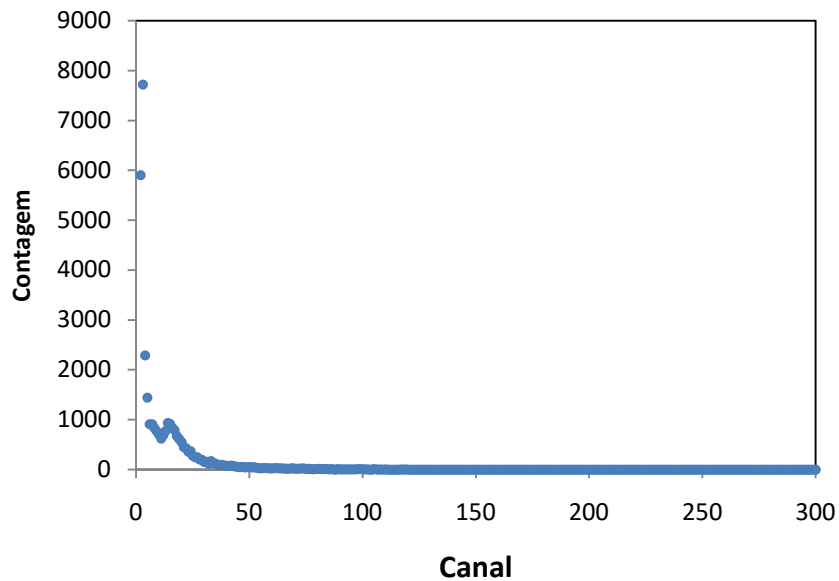
Nas Figuras 5.8 e 5.9, são mostrados os espectros típicos de contagens para a radiação de fundo (BG) do laboratório em que foram efetuadas as medidas. As medidas de radiação de fundo sempre foram efetuadas antes de cada seção de contagens e após o término das contagens com os cristais dopados e o tempo acumulado no processo de contagem foi de 600 segundos.

Figura 5.8 - Medida de BG para o cristal de CsI:Li de  $10^{-2}$  M



Fonte: autor da tese.

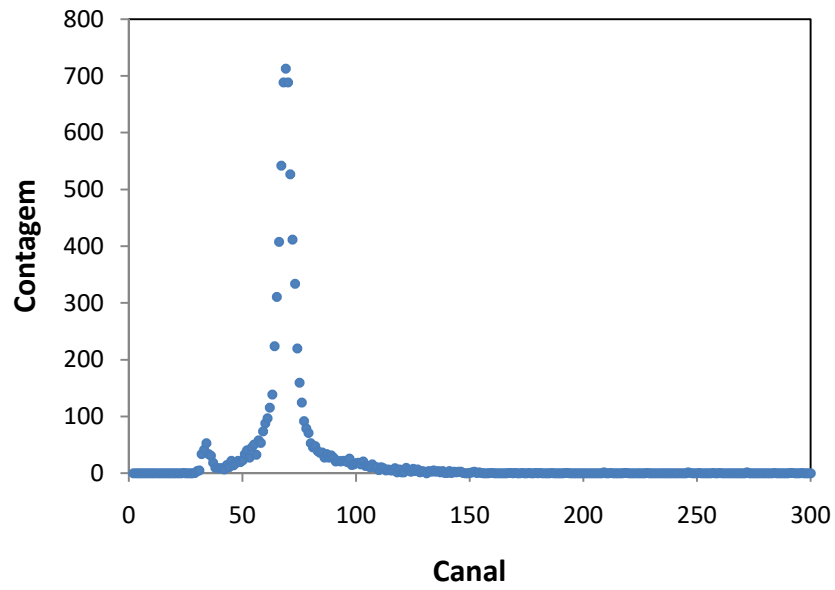
Figura 5.9 - Medida de BG para o cristal de CsI puro utilizado como referência



Fonte: autor da tese.

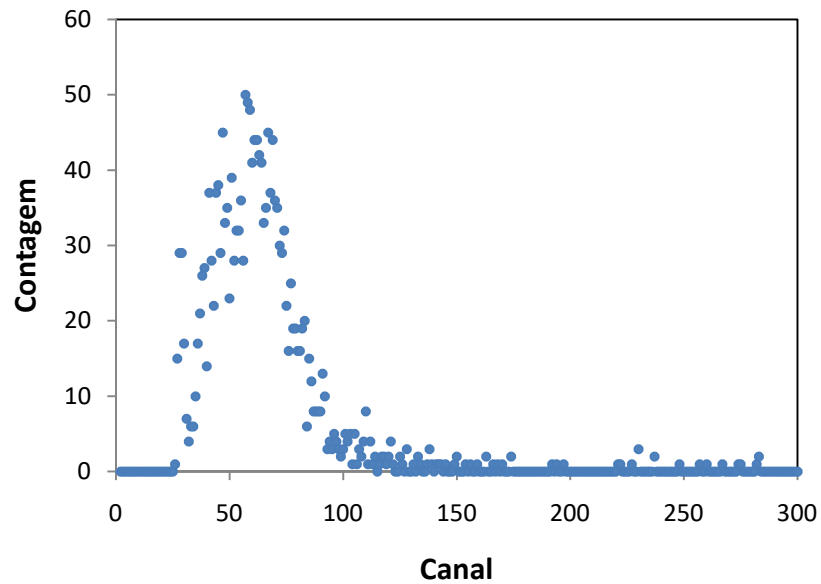
Os cristais foram testados quanto ao seu desempenho como detector de radiação gama utilizando uma fonte  $\gamma$  de  $^{137}\text{Cs}$  com energia de 662 keV, para a radiação  $\gamma$  do  $^{241}\text{Am}$  com energia de 59,6 keV, para os cristais nas quatro concentrações produzidas e para o cristal de CsI puro usado como referência. Os resultados dessas contagens estão mostrados nas Figuras de 5.10 a 5.19.

Figura 5.10 - Espectro de  $\gamma$  do  $^{137}\text{Cs}$  com o cristal de CsI puro utilizado como referência



Fonte: autor da tese.

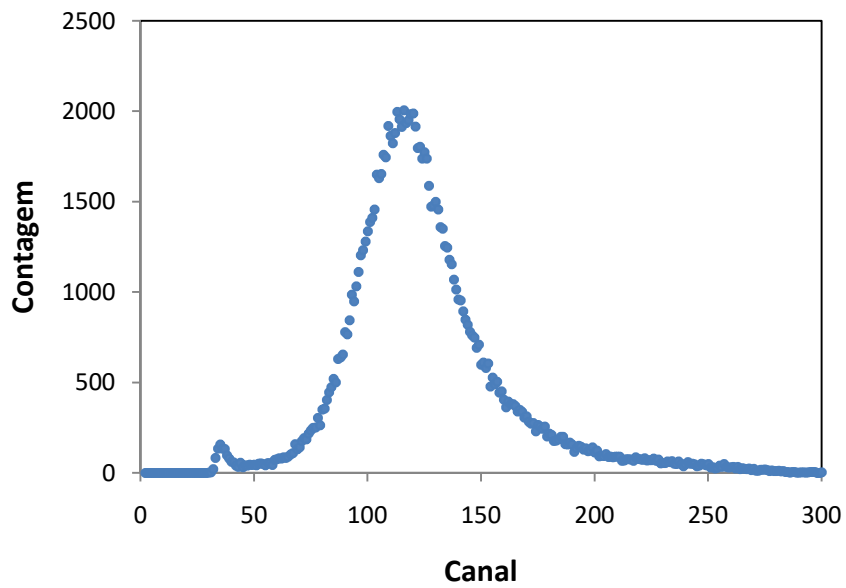
Figura 5.11 - Espectro de  $\gamma$  do  $^{137}\text{Cs}$  com o cristal de CsI:Li de  $10^{-4}$  M



Fonte: autor da tese.

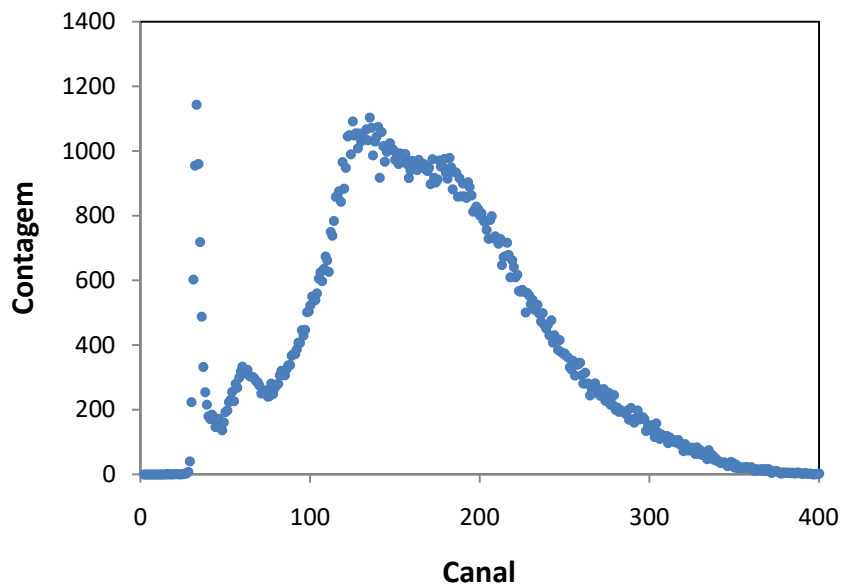


Figura 5.12 - Espectro de  $\gamma$  do  $^{137}\text{Cs}$  com o cristal de  $\text{CsI:Li}$  de  $10^{-3}$  M



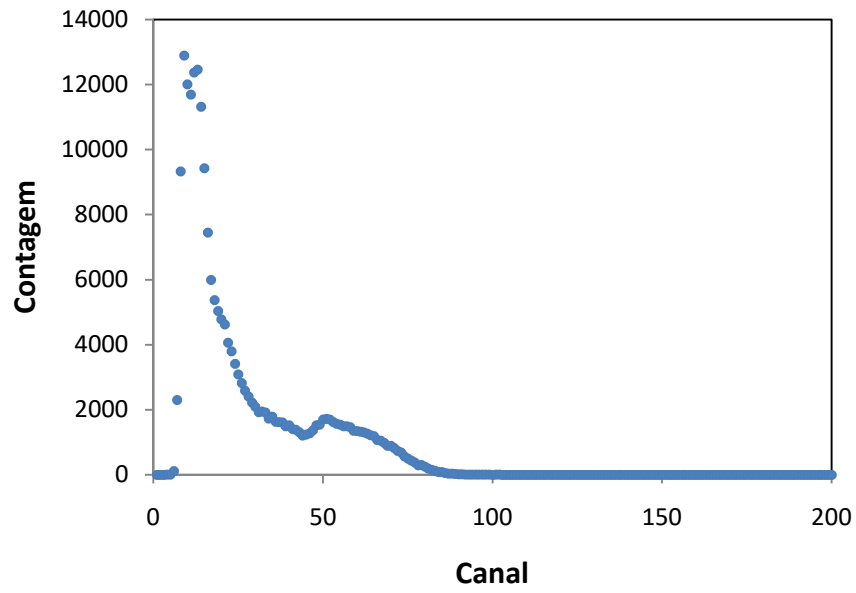
Fonte: autor da tese.

Figura 5.13 - Espectro de  $\gamma$  do  $^{137}\text{Cs}$  com o cristal de  $\text{CsI:Li}$  de  $10^{-2}$  M



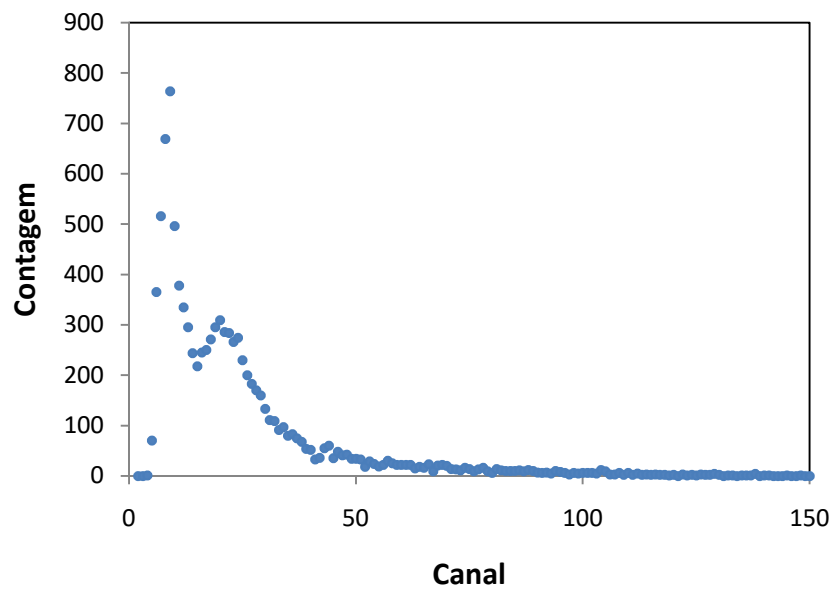
Fonte: autor da tese.

Figura 5.14 - Espectro de  $\gamma$  do  $^{137}\text{Cs}$  com o cristal de  $\text{CsI:Li}$  de  $10^{-1}\text{ M}$



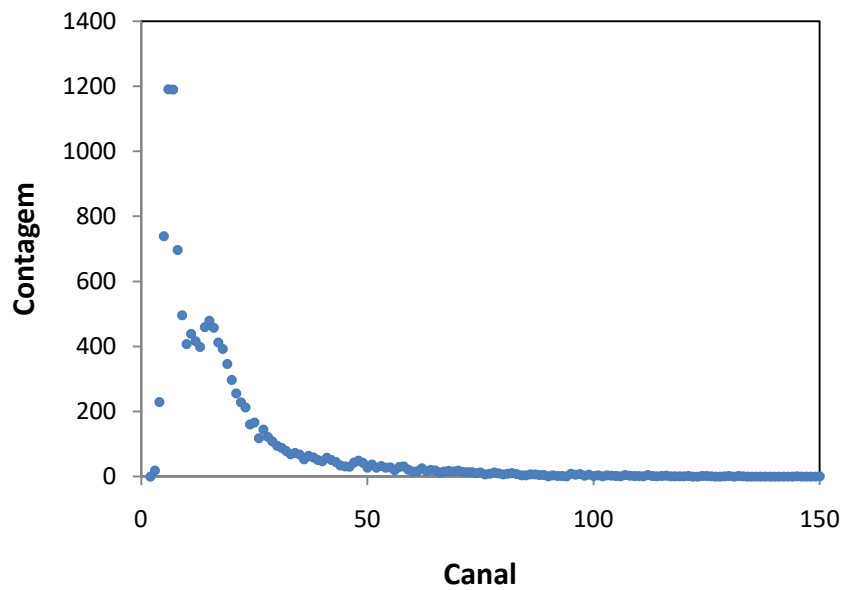
Fonte: autor da tese.

Figura 5.15 - Espectro de  $\gamma$  do  $^{241}\text{Am}$  com o cristal de  $\text{CsI}$  puro



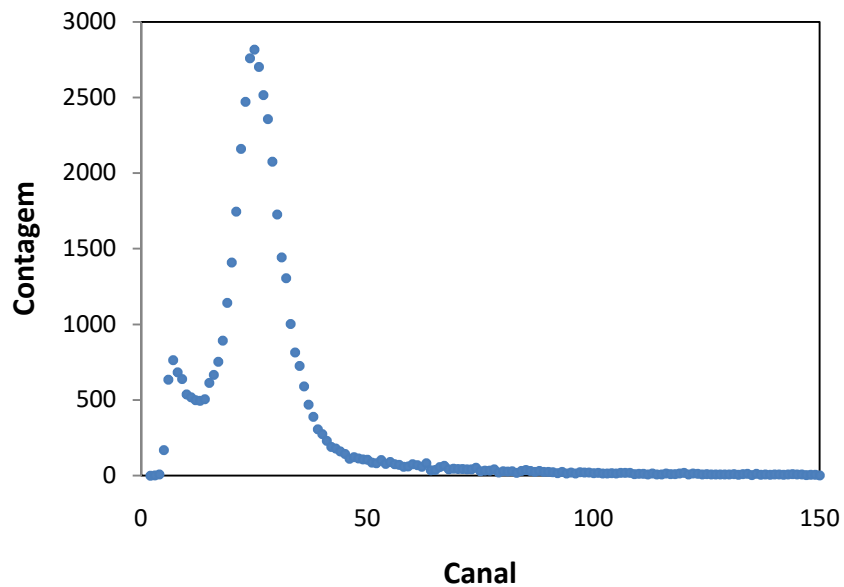
Fonte: autor da tese.

Figura 5.16 - Espectro de  $\gamma$  do  $^{241}\text{Am}$  com o cristal de CsI:Li de  $10^{-4}$  M



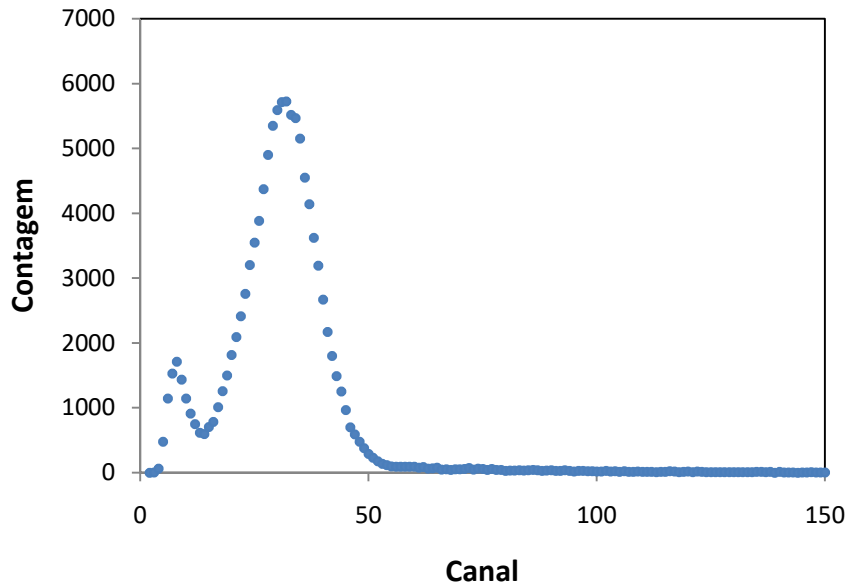
Fonte: autor da tese.

Figura 5.17 - Espectro de  $\gamma$  do  $^{241}\text{Am}$  com o cristal de CsI:Li de  $10^{-3}$  M



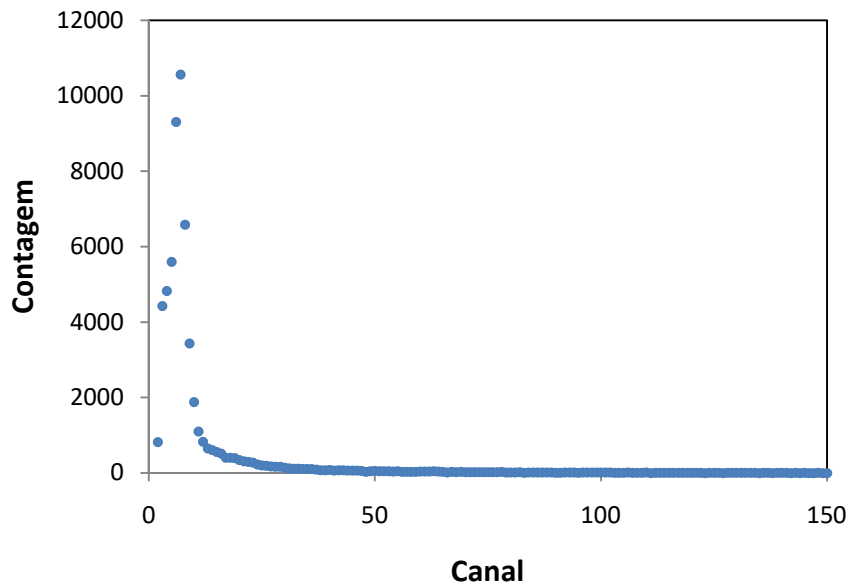
Fonte: autor da tese.

Figura - 5.18 Espectro de  $\gamma$  do  $^{241}\text{Am}$  com o cristal de  $\text{CsI:Li}$  de  $10^{-2}\text{ M}$



Fonte: autor da tese.

Figura 5.19 - Espectro de  $\gamma$  do  $^{241}\text{Am}$  com o cristal de  $\text{CsI:Li}$  de  $10^{-1}\text{ M}$



Fonte: autor da tese.

Foram escolhidas as fontes gama do  $^{137}\text{Cs}$  como parâmetro de comparação dos cristais dopados com lítio e o puro. A fonte gama do  $^{241}\text{Am}$  foi escolhida na intenção de observar alguma influência da radiação gama nas contagens de

nêutrons, pois a fonte de nêutrons AmBe emite também radiação gama proveniente do decaimento do  $^{241}\text{Am}$ .

Nota-se na Figura 5.10 um pico bem formado para a radiação gama do  $^{137}\text{Cs}$  (662 keV) com o cristal puro e centrado no canal 70 do espectro. Com o cristal  $10^{-4}$  M observou-se a formação do pico, porém deslocado para o canal 60 e uma sensível diminuição no número de contagens, como mostra a Figura 5.11.

O espectro da Figura 5.12 mostra um pico bem formado para a radiação gama do  $^{137}\text{Cs}$  (662 keV) com o cristal CsI:Li  $10^{-3}$ M centrado no canal 120 apresentando um volume de contagens superior ao cristal CsI puro.

As Figuras 5.13 e 5.14 mostram os espectros correspondentes aos cristais de CsI:Li  $10^{-2}$  M e  $10^{-1}$ M respectivamente, nas quais pode ser observado que não ocorreu a formação de um pico bem definido. Sugere-se que para concentrações mais elevadas do elemento dopante na matriz CsI ocorra saturação na rede cristalina ocasionando perda na produção de luz.

As Figuras 5.15 a 5.19, mostram as contagens dos cristais à exposição gama da fonte de  $^{241}\text{Am}$  (59 keV). Os espectros obtidos com os cristais de CsI:Li nas diferentes concentrações de lítio apresentaram número de contagens superior ao número de contagens do cristal de CsI puro.

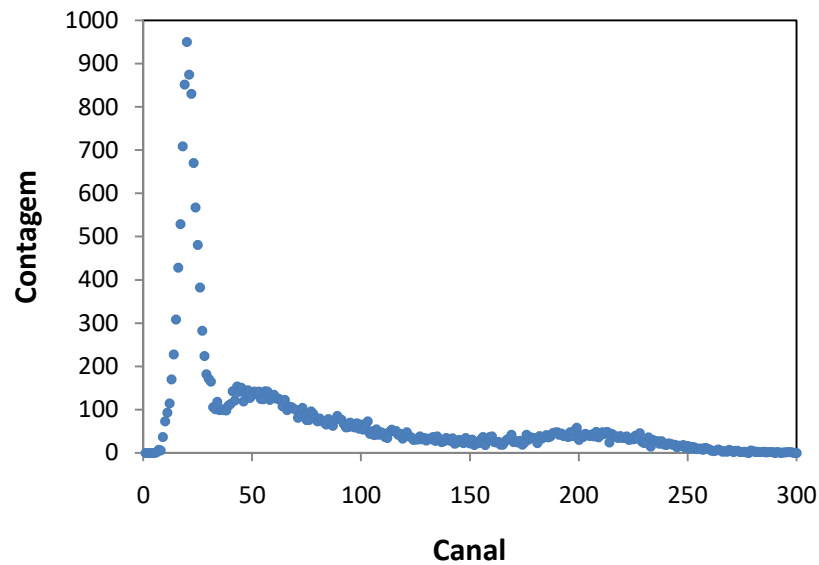
O espectro do cristal de CsI:Li  $10^{-4}$  M é muito semelhante ao espectro do cristal puro utilizado como referência. Já os espectros do cristal de concentração de lítio de  $10^{-3}$  M e o cristal de  $10^{-2}$  M se assemelham, porém observa-se que o número de contagens do cristal  $10^{-2}$  M foi maior. O cristal com concentração de  $10^{-1}$  M apresentou um espectro muito próximo ao espectro de radiação de fundo o que pode ser devido às características ópticas desse cristal.

## **5.6 Resposta dos cristais CsI:Li à radiação de nêutrons.**

As Figuras 5.20 a 5.24 mostram os espectros de contagem da fonte de nêutrons de AmBe incidente no cristal de referência de CsI puro e posicionada à

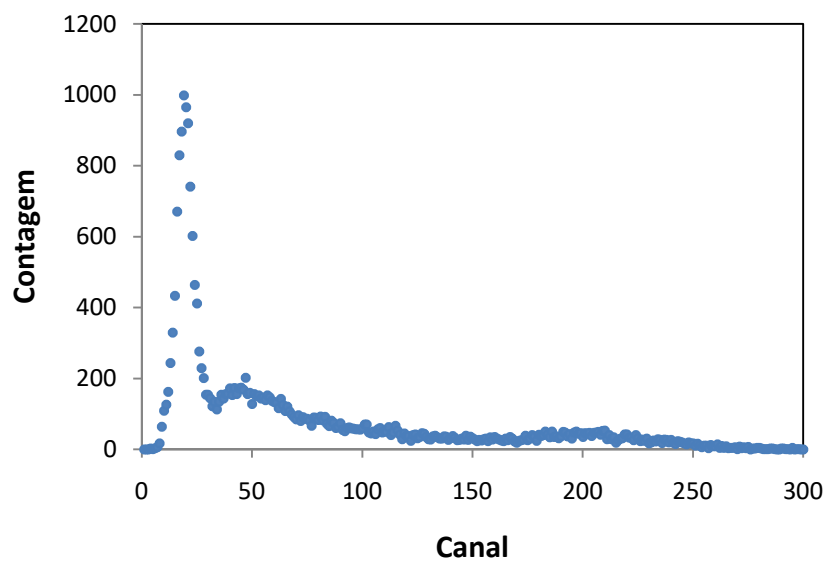
distância de 150 mm. Entre o cristal e a fonte de nêutrons foram posicionados blocos de parafina com espessura variando de 20 mm a 80 mm-com a finalidade de termalizar os nêutrons e melhorar a eficiência de detecção do sistema.

Figura 5.20 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de Csl puro sem moderador de parafina e fonte de AmBe à distancia de 150 mm



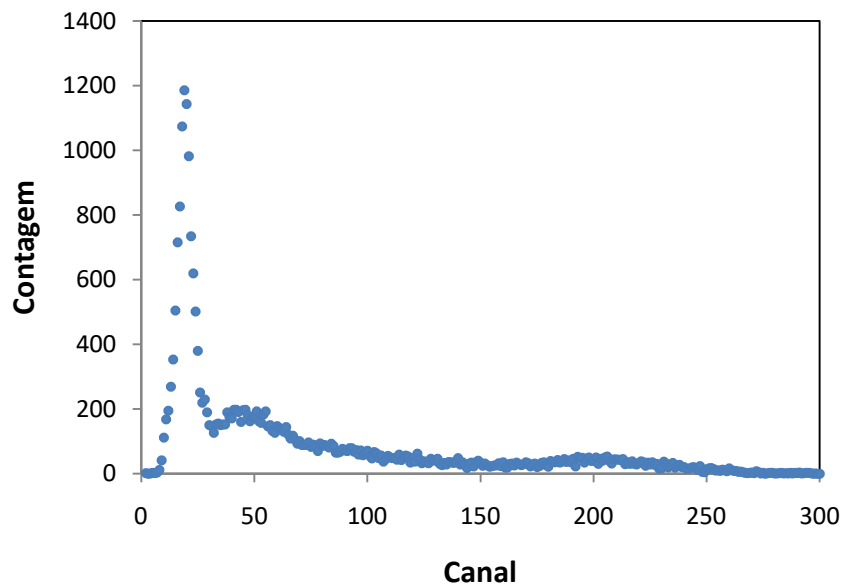
Fonte: autor da tese.

Figura 5.21 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de Csl puro com 20 mm de espessura de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm



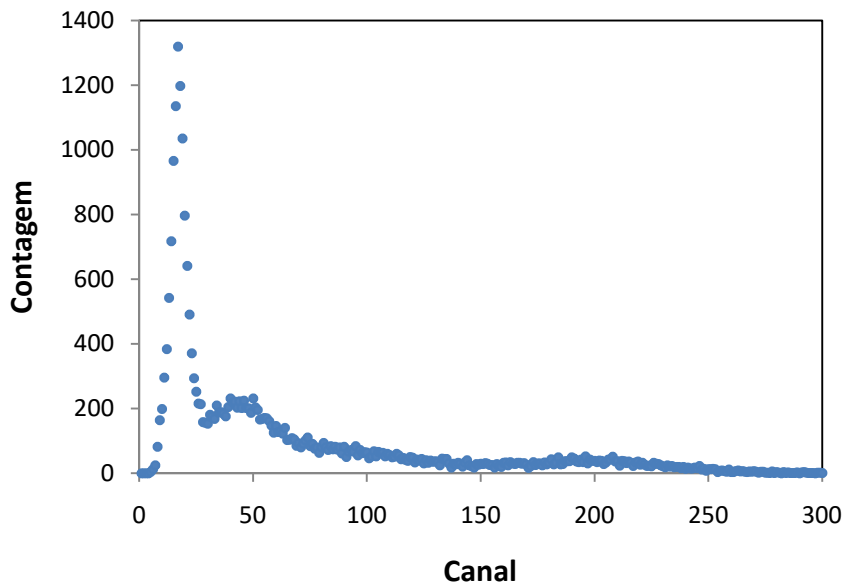
Fonte: autor da tese.

Figura 5.22 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de Csl puro com 40 mm de espessura de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm



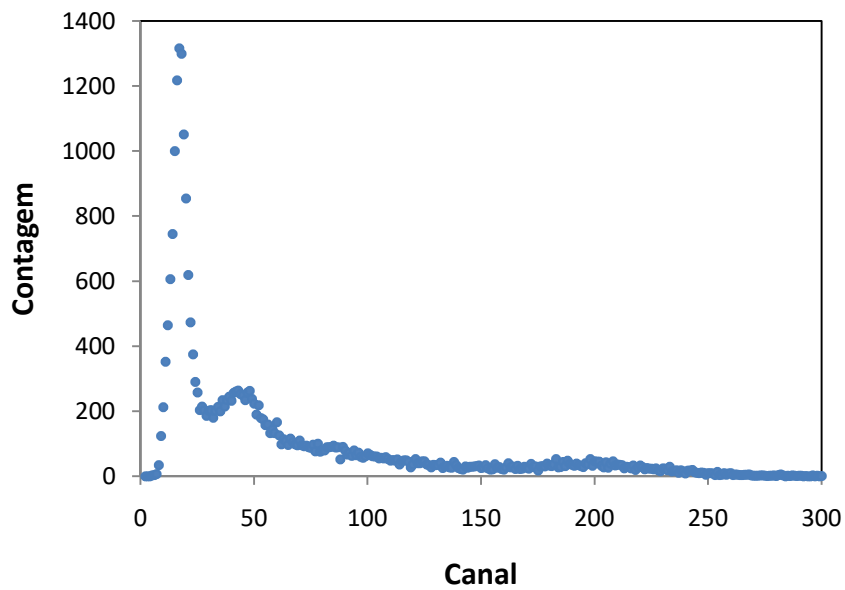
Fonte: autor da tese.

Figura 5.23 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de Csl puro com 60 mm de espessura de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm



Fonte: autor da tese.

Figura 5.24 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI puro com 80 mm de espessura de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm



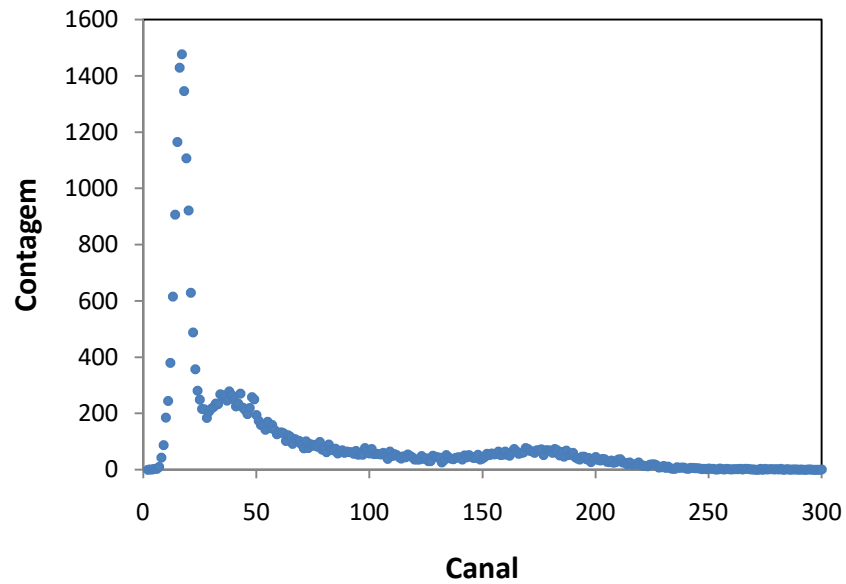
Fonte: autor da tese.

Observou-se nas Figuras 5.20 a 5.24 que apesar do cristal não apresentar dopagem com o Li ele apresentou certa sensibilidade à detecção de nêutrons e que com a adição de camadas de parafina a eficiência de contagem aumenta.

As Figuras 5.25 a 5.29 mostram as contagens do cristal de CsI:Li com dopagem de Li em concentração de  $10^{-4}$  M e com moderador de parafina com variação de espessura de 0 mm a 80 mm. A distância entre cristal cintilador e fonte de nêutrons foi fixada em 150 mm

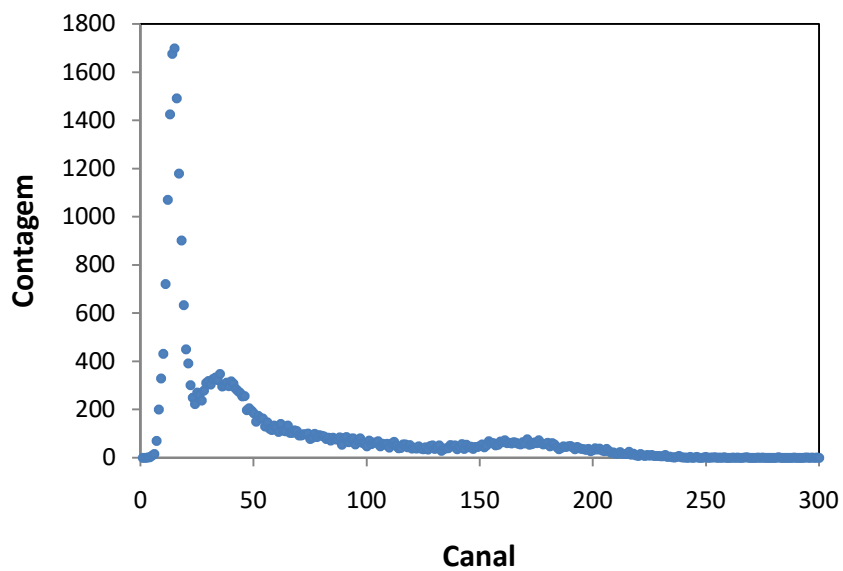


Figura 5.25 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de  $10^{-4}$  M sem moderador de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm



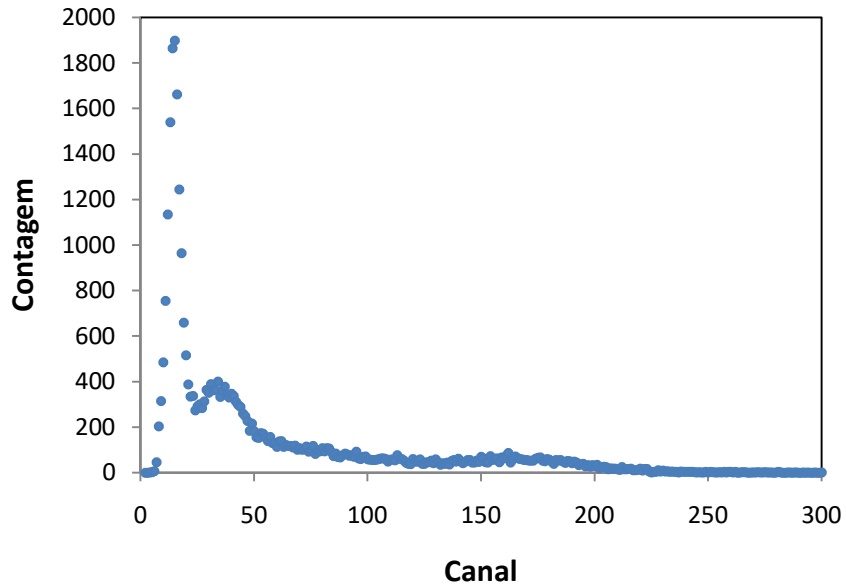
Fonte: autor da tese.

Figura 5.26 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de  $10^{-4}$  M com 20 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm



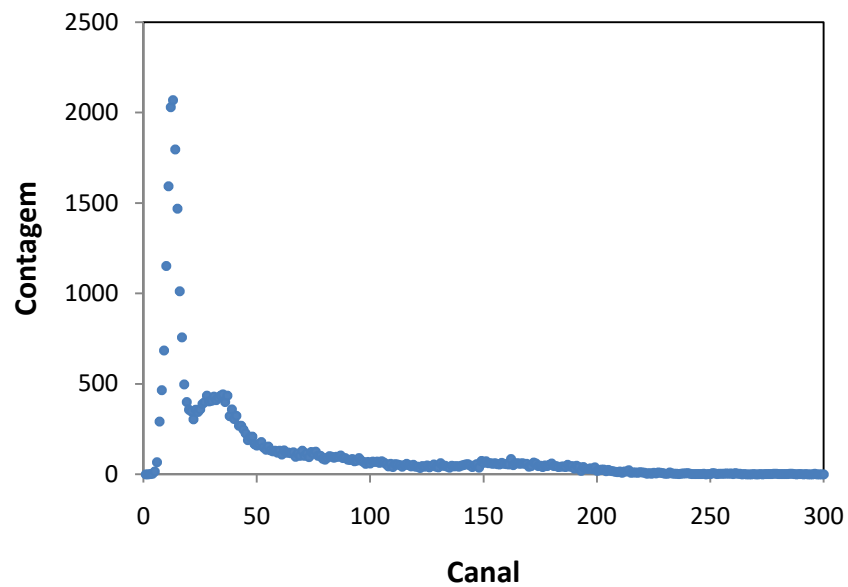
Fonte: autor da tese.

Figura 5.27 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de  $10^{-4}$  M com 40 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm



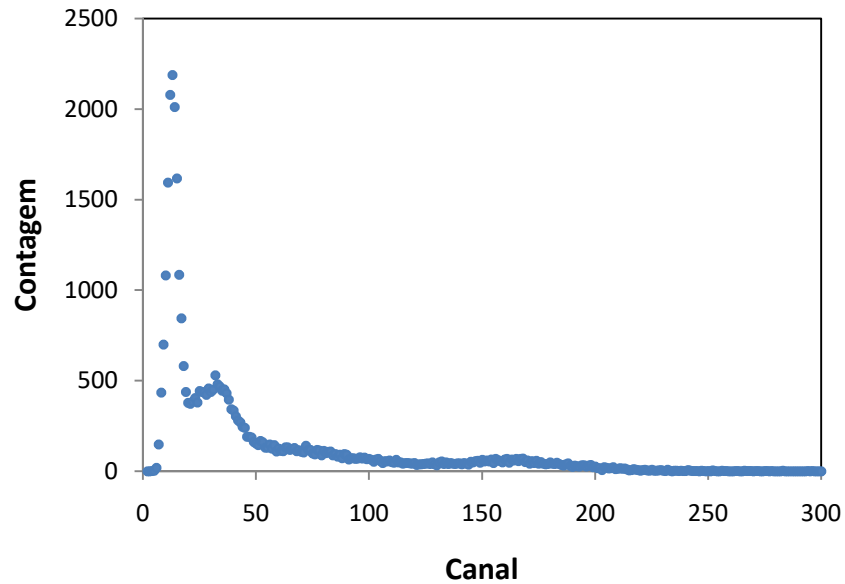
Fonte: autor da tese.

Figura 5.28 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de  $10^{-4}$  M com 60 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm



Fonte: autor da tese.

Figura 5.29 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de  $10^{-4}$  M com 80 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm



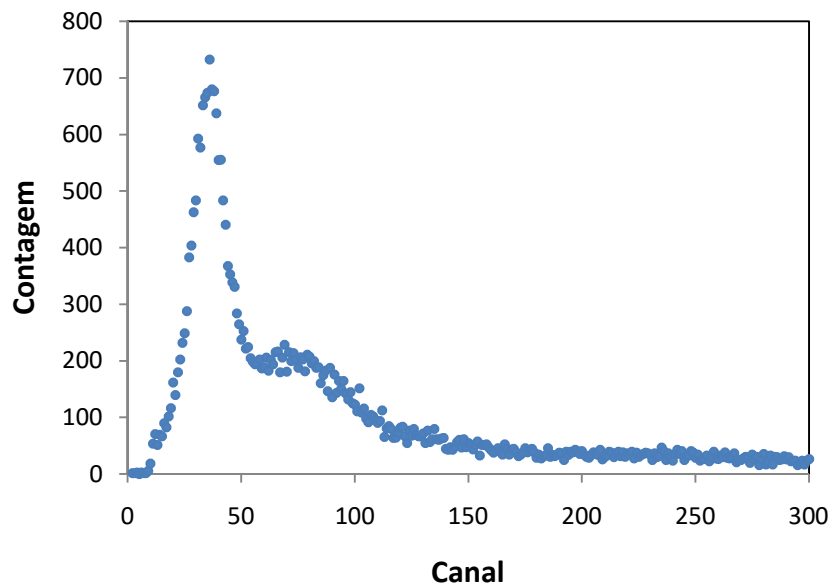
Fonte: autor da tese.

Observa-se das Figuras 5.25 a 5.29 utilizando o cristal CsI:Li  $10^{-4}$  M e fonte de nêutrons AmBe, que o aumento das contagens ocorreu com o aumento da espessura de parafina.

O cristal CsI:Li  $10^{-4}$  M em todos os experimentos utilizando a radiação de nêutrons mostrou-se mais sensível a detecção quando comparado com o cristal CsI puro.

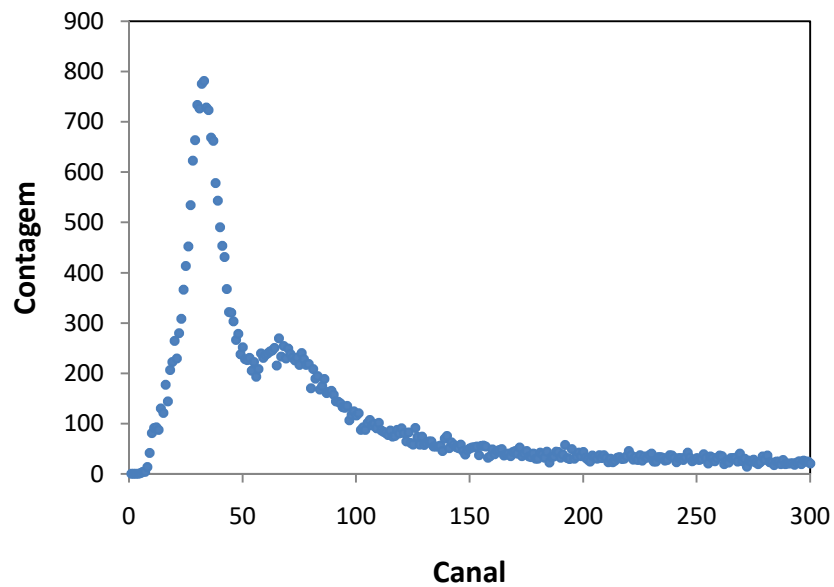
As Figuras 5.30 a 5.34 mostram as contagens do cristal CsI:Li com dopagem de Li em concentração de  $10^{-3}$  M e com moderador de parafina com variação de espessura de 0 mm a 80 mm.

Figura 5.30 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de  $10^{-3}$  M sem moderador de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm



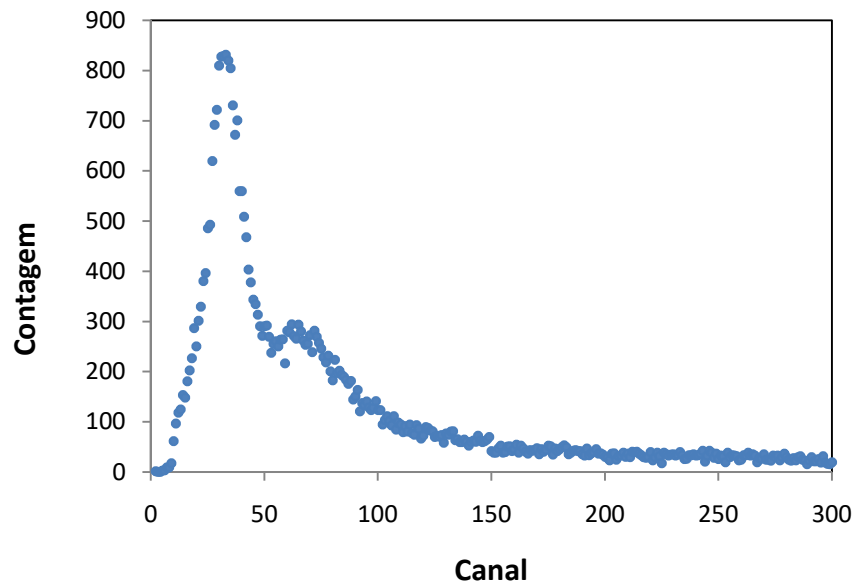
Fonte: autor da tese.

Figura - 5.31 Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de  $10^{-3}$  M com 20 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm



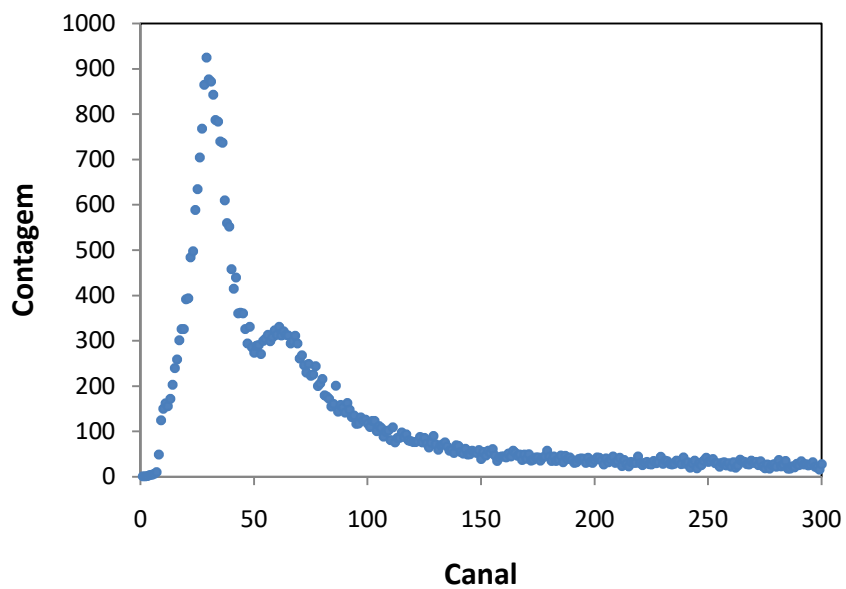
Fonte: autor da tese.

Figura 5.32 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de  $10^{-3}$  M com 40 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm



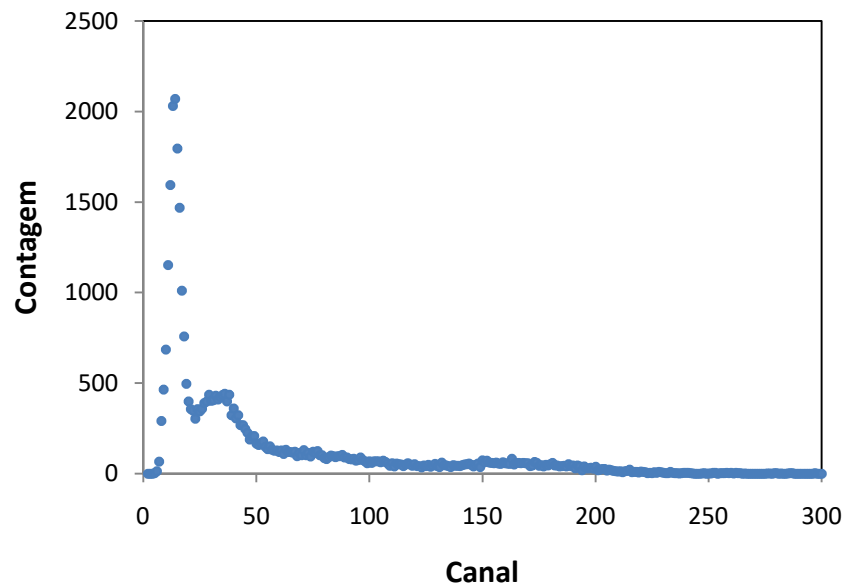
Fonte: autor da tese.

Figura 5.33 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de  $10^{-3}$  M com 60 mm de parafina e fonte AmBe à distância de 150 mm



Fonte: autor da tese.

Figura 5.34 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de  $10^{-3}$  M com 80 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm

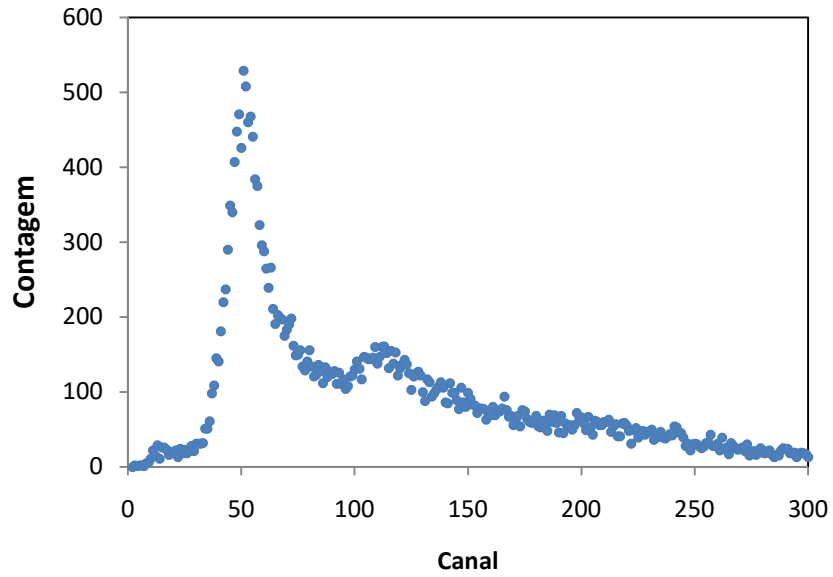


Fonte: autor da tese.

Pode-se observar nas Figuras 5.30 a 5.34 que a altura do pico aumentou em função da espessura do moderador de parafina.

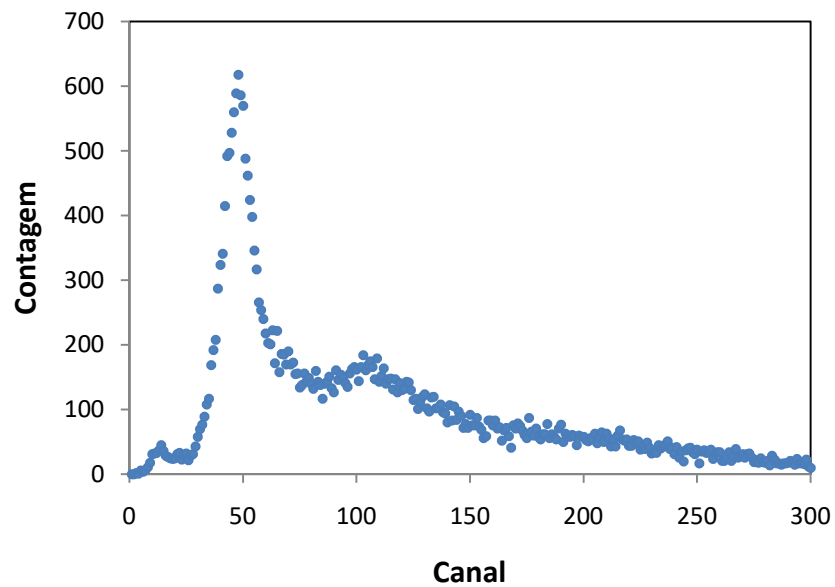
As Figuras de 5.35 a 5.39 mostram as contagens do cristal CsI:Li com dopagem de Li em concentração de  $10^{-2}$  M e com moderador de parafina com variação de espessura de 0 mm a 80 mm.

Figura 5.35 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de  $10^{-2}$  M sem moderador de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm



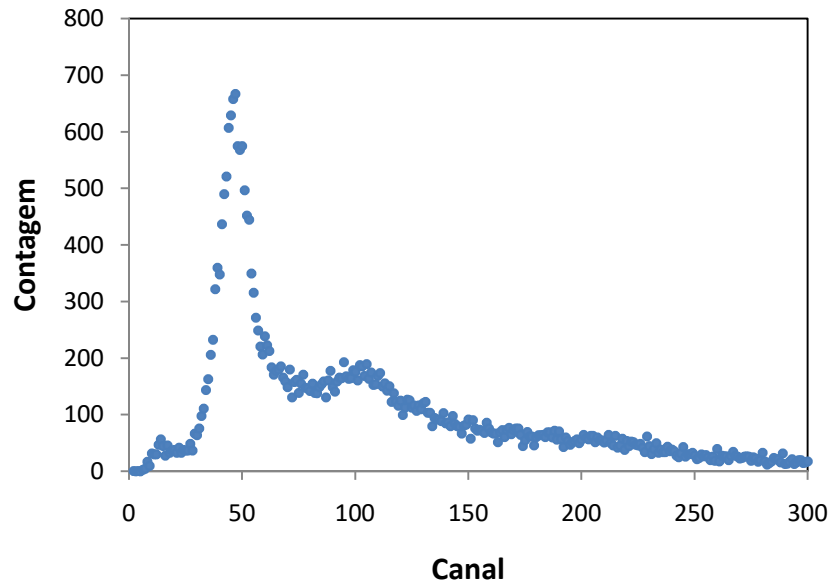
Fonte: autor da tese.

Figura 5.36 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de  $10^{-2}$  M com 20 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm



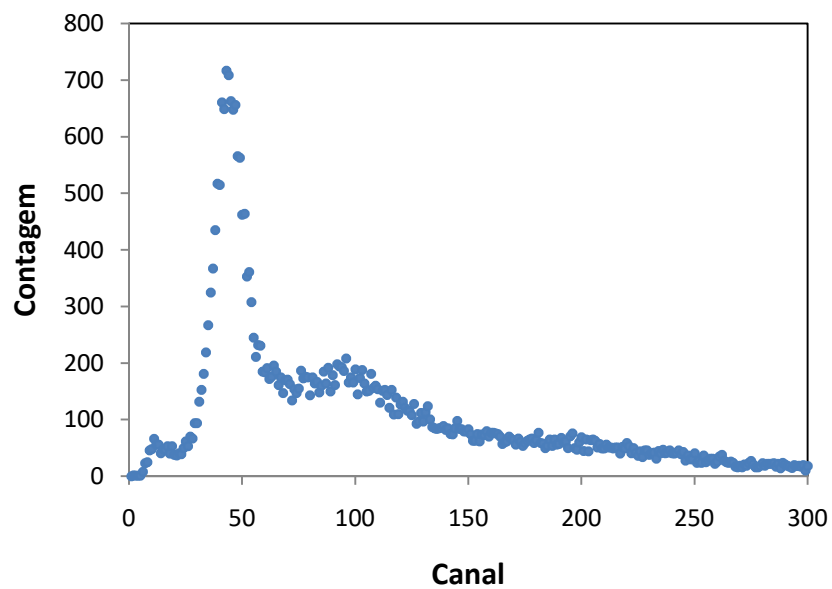
Fonte: autor da tese.

Figura 5.37 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de  $10^{-2}$  M com 40 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm



Fonte: autor da tese.

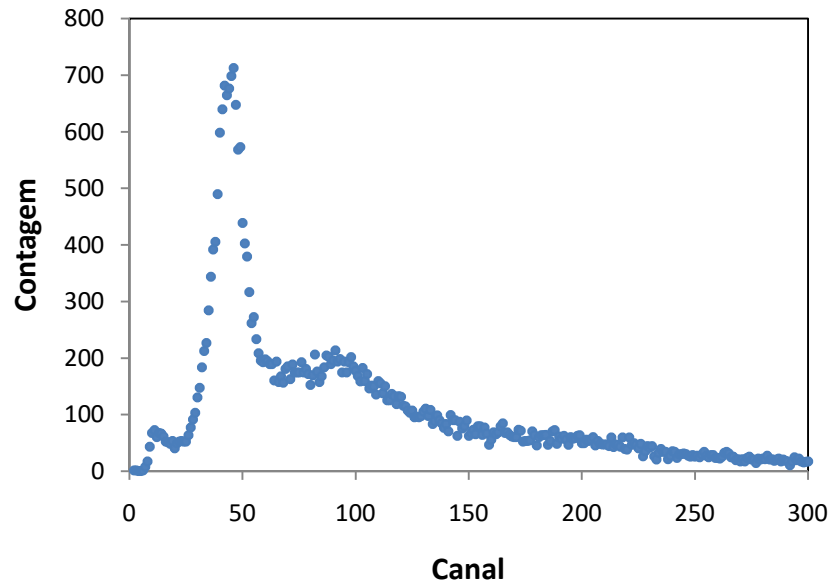
Figura 5.38 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de  $10^{-2}$  M com 60 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm



Fonte: autor da tese.



Figura 5.39 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de  $10^{-2}$  M com 80 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm

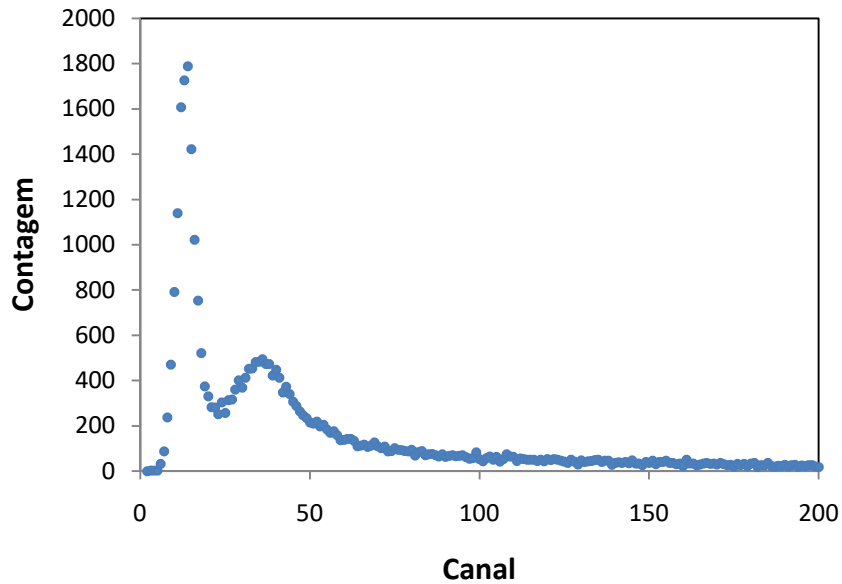


Fonte: autor da tese.

Pode-se observar nas Figuras 5.35 a 5.39 que a altura do pico aumentou em função da espessura do moderador de parafina.

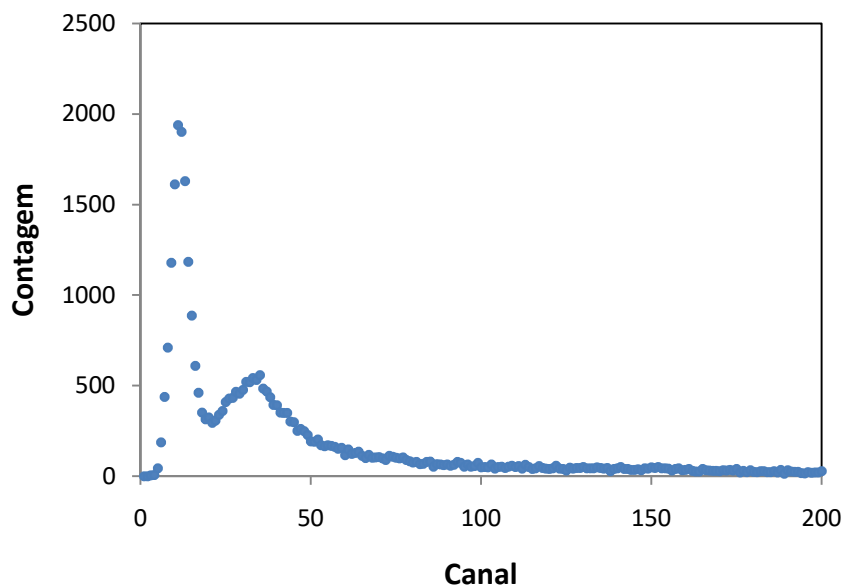
As Figuras 5.40 a 5.44 mostram as contagens do cristal CsI:Li com dopagem de Li em concentração de  $10^{-1}$  M e com moderador de parafina com variação de espessura de 0 mm a 80 m

Figura - 5.40 Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de  $10^{-1}$  M sem moderador de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm



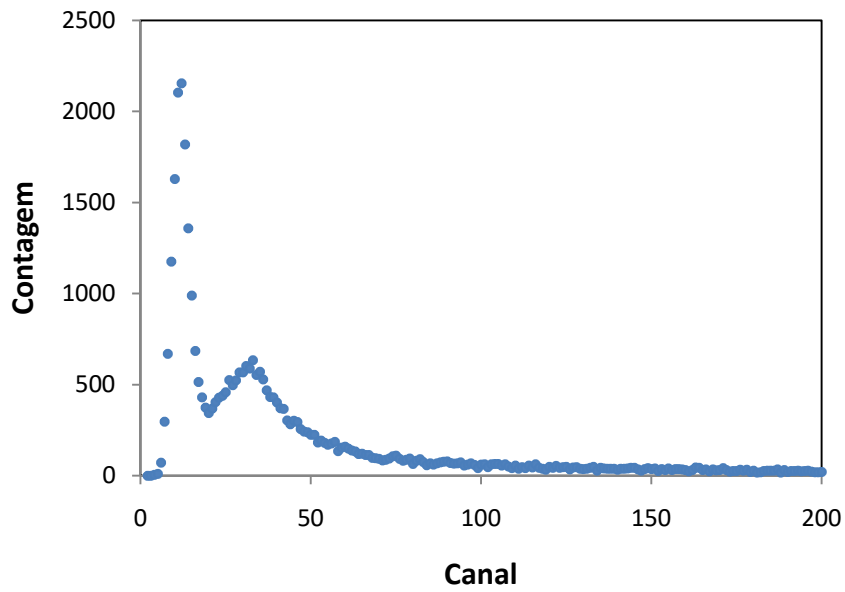
Fonte: autor da tese.

Figura 5.41 - Espectro de contagem de nêutrons da utilizando cristal de CsI:Li de  $10^{-1}$  M com 20 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm



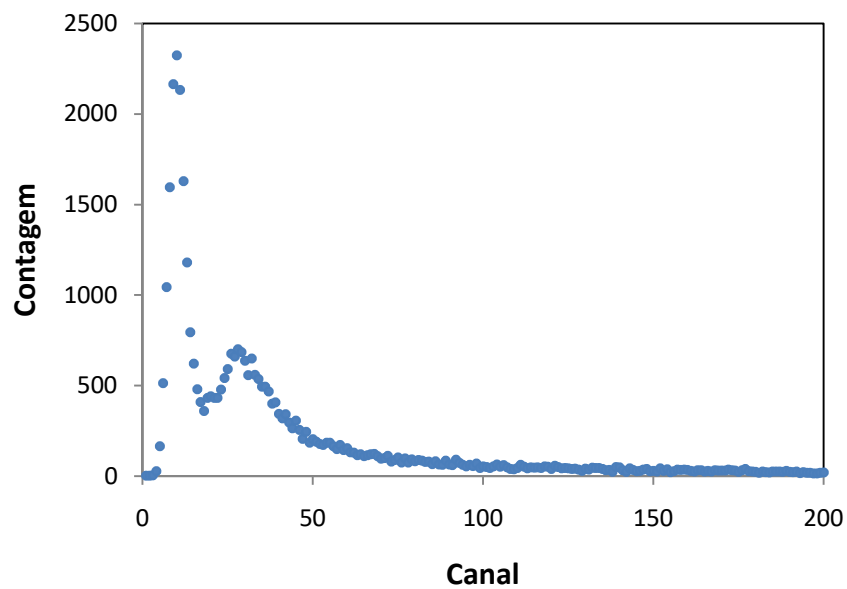
Fonte: autor da tese.

Figura 5.42 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de  $10^{-1}$  M com 40 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm



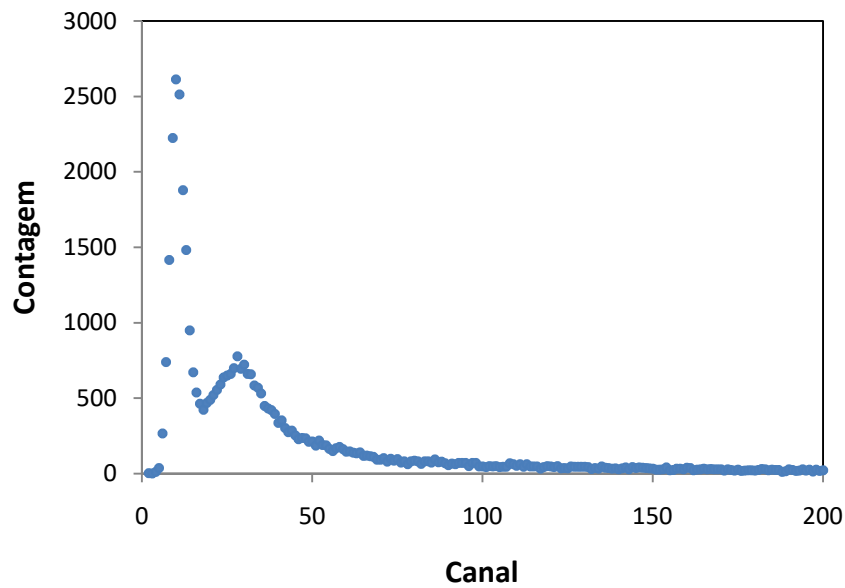
Fonte: autor da tese.

Figura 5.43 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de  $10^{-1}$  M com 60 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm



Fonte: autor da tese.

Figura 5.44 - Espectro de contagem de nêutrons utilizando cristal de CsI:Li de  $10^{-1}$  M com 80 mm de parafina e fonte de AmBe à distância de 150 mm

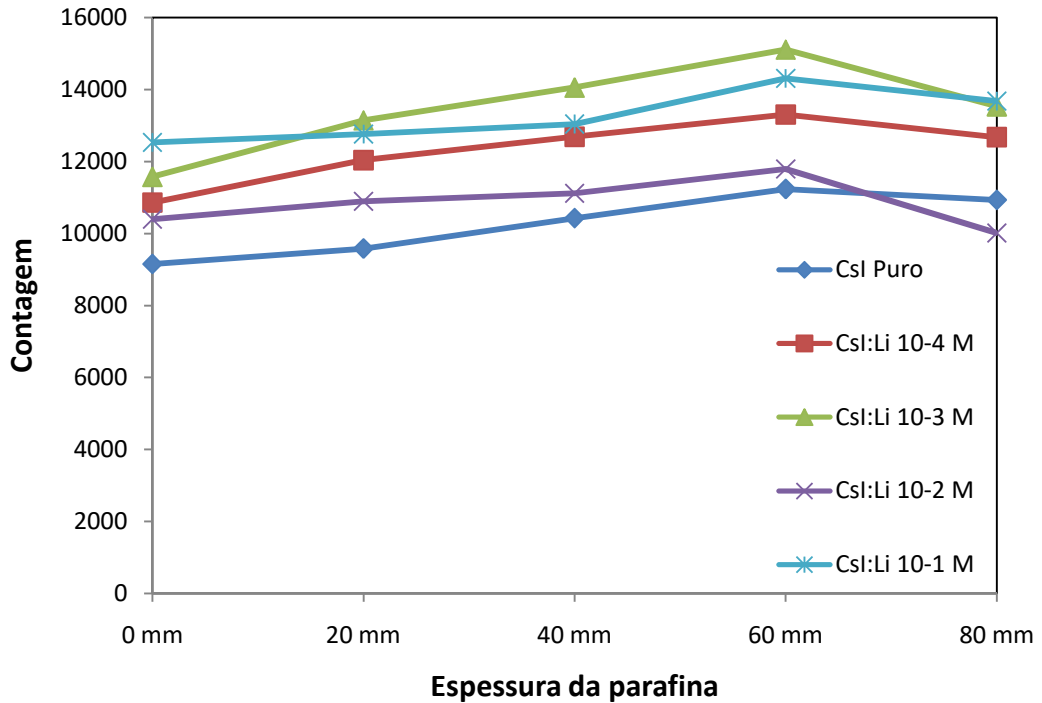


Fonte: autor da tese.

Pode-se observar nas Figuras 5.40 à Figura 5.44 que a altura do pico aumentou consideravelmente com a espessura de parafina.

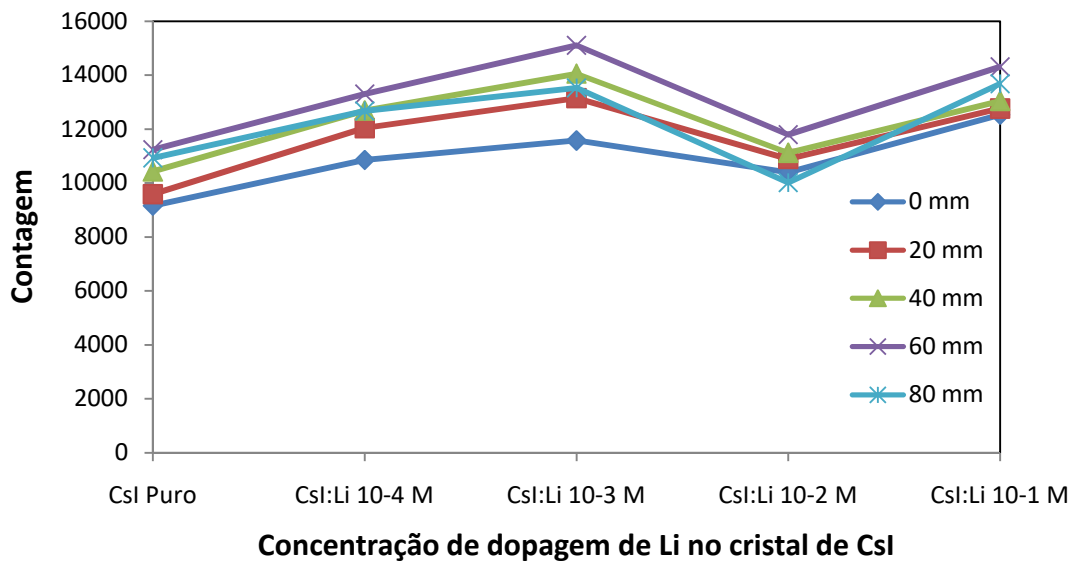
Com as medidas obtidas com os cristais de várias concentrações e com variações na espessura de parafina usada como termalizador pode-se levantar as contagens do espectro obtido e comparar os resultados com o cristal usado como referência (puro) e construir os gráficos comparativos das contagens x concentração dopante e contagens x espessura de parafina Figuras 5.45 e 5.46

Figura 5.45 - Gráfico de contagens integradas x espessura de parafina usada para moderar os nêutrons da fonte de AmBe utilizando os cristais cintiladores de CsI puro e de CsI:Li



Fonte: autor da tese.

Figura 5.46 - Gráfico das contagens integradas x concentração do dopante Li na matriz do cristal de CsI



Fonte: autor da tese.

A Tabela 5.3 apresenta as contagens dos detectores usados neste trabalho para a fonte de AmBe posicionada a 150 mm do cristal e com diferentes espessuras de termalizador de nêutrons.

Tabela 5.3 - Contagens obtidas com os cristais estudados neste trabalho à incidência de nêutrons

Cristal	Contagens à distância de 150 mm				
	Sem parafina	20 mm	40 mm	60 mm	80 mm
CsI Puro	9155	9586	10428	11236	10931
CsI:Li $10^{-4}$ M	10856	12036	12686	13304	12676
CsI:Li $10^{-3}$ M	11575	13143	14053	15107	13532
CsI:Li $10^{-2}$ M	10397	10889	11118	11792	10011
CsI:Li $10^{-1}$ M	12532	12761	13042	14311	13682

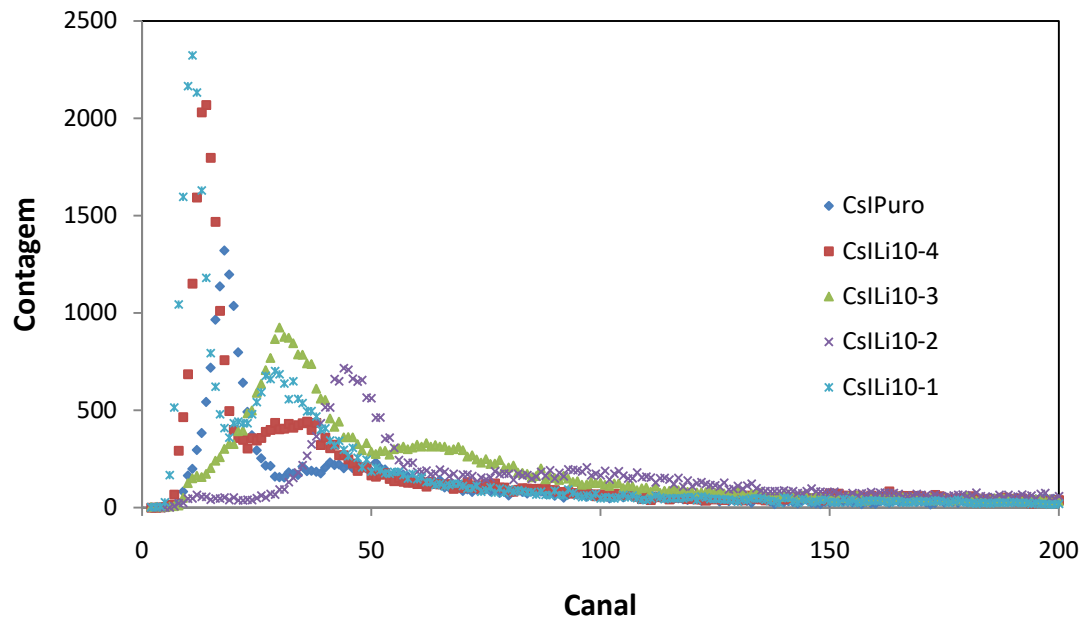
Fonte: autor da tese.

As Figuras 5.45 e 5.46 mostram as curvas nas quais se pode observar que o cristal puro também detectou nêutrons, porém todos os cristais dopados com Li apresentaram maior volume de contagens para nêutrons, quando comparados ao cristal puro. Esse aumento deve-se à adição de dopante Li na matriz CsI. O cristal que apresentou melhor eficiência para detecção de nêutrons foi aquele com concentração do dopante Li de  $10^{-3}$  M e 60 mm de espessura de parafina; sendo mais eficiente do que o cristal de referência em 25,62% para a mesma espessura de parafina.

As contagens aumentam a medida que se aumenta a espessura da parafina devido a termalização dos nêutrons. A parafina termaliza, mas também absorve e/ou espalha os nêutrons. Como já apresentado o  ${}^6\text{Li}$  tem maior seção de choque para nêutrons térmicos, razão pela qual as contagens aumentam com o aumento da espessura da parafina. Mas, um aumento grande da parafina além de termalizar também aumenta a retirada de nêutrons do feixe, como mostra a Figura 5.45 e Tabela 5.3.

A espessura de parafina na qual obtivemos o maior volume de contagens foi de 60 mm para todos os cristais estudados. Esse valor está de acordo com os encontrados na literatura (CARDENAS et al. 2013)

Figura 5.47 - Gráfico de contagens dos cristais usados neste trabalho para espessura de 60 mm de parafina usado como moderador



Fonte: autor da tese.

A Figura 5.47 mostra o gráfico de contagens dos cristais usados neste trabalho para espessura de 60 mm de parafina com a fonte de nêutrons a 150 mm de distância. Pode-se observar o deslocamento dos picos para canais superiores em função do aumento da concentração do dopante nos cristais.

O comportamento inferior no desempenho de detecção de nêutrons, utilizando o cristal CsI:Li  $10^{-1}$ M pode ser atribuído a saturação da rede cristalina devido a quantidade de dopante. A estrutura cristalina, assim como observado na literatura, incorpora somente uma determinada quantidade de dopante.

## 5.7 Resultado da simulação com a técnica de Monte Carlo.

Antes de usar o MCNP é necessário fazer uma modelagem do experimento e fornecer o máximo de informação possível ao programa, tais como: materiais usados no experimento, geometria, bibliotecas de dados nucleares que devem ser usadas para obter os resultados esperados e o que queremos que o programa nos forneça de informação.

A modelagem é a descrição da realidade física em um arquivo de entrada, o *INPUT*, onde todas as informações do experimento são fornecidas para que o programa simule o problema. Os dados de entrada estão mostrados no Anexo A

A interface gráfica *Vised* que trabalha com o MCNP-6 foi usada para gerar as Figuras 5.48 a 5.51. A modelagem considerou que o conjunto detector/fotomultiplicadora está posicionado entre paredes de polietileno borado em todas as laterais, ficando conformada uma blindagem para nêutrons. Foi considerada, também, uma camada de cádmio envolvendo o conjunto fotomultiplicadora/cristal, de maneira a impedir que nêutrons eventualmente espalhados nas paredes do conjunto ou na parafina, pudessem adentrar no cristal pela lateral. A fonte de nêutrons foi modelada de acordo com desenhos e materiais de construção do fabricante. Entre a fonte de nêutrons AmBe e o cristal cintilador foi considerado a existência de moderador de parafina. O compartimento experimental foi construído de maneira a diminuir a exposição aos eventuais espalhamentos de nêutrons. Foram feitos levantamentos de doses de nêutrons ao redor da montagem experimental assegurando doses mínimas aos IOE, Indivíduos Ocupacionalmente Expostos, durante o experimento.

Foram simulados por meio da técnica de Monte Carlo dois casos, a saber:

- 1) Estudo feito com modelagem mais próxima do experimento. A simulação foi realizada com a fonte de nêutrons de AmBe a distância de 150 mm. As dimensões usadas foram as mesmas dos cristais usados neste trabalho, 26 mm de diâmetro e 14 mm de espessura, o cristal foi coberto com uma camada de cádmio, exceto suas faces. As Figuras 5.48 a 5.51

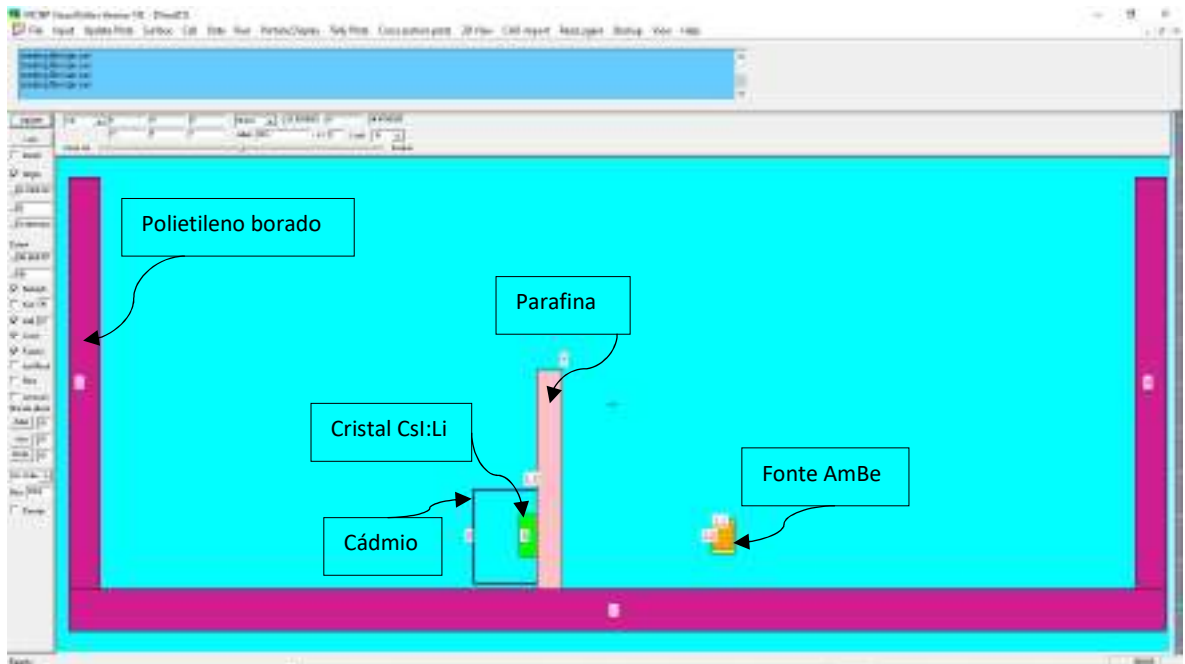


mostram a montagem experimental gerada com o auxílio da interface gráfica do MCNP-6, *Vised*.

As Figuras de 5.52 a 5.54 mostram a simulação de fluxo de nêutrons nas imediações do detector e no seu interior. O cristal usado para essa simulação foi o CsI:Li de concentração de  $10^{-3}$  M.

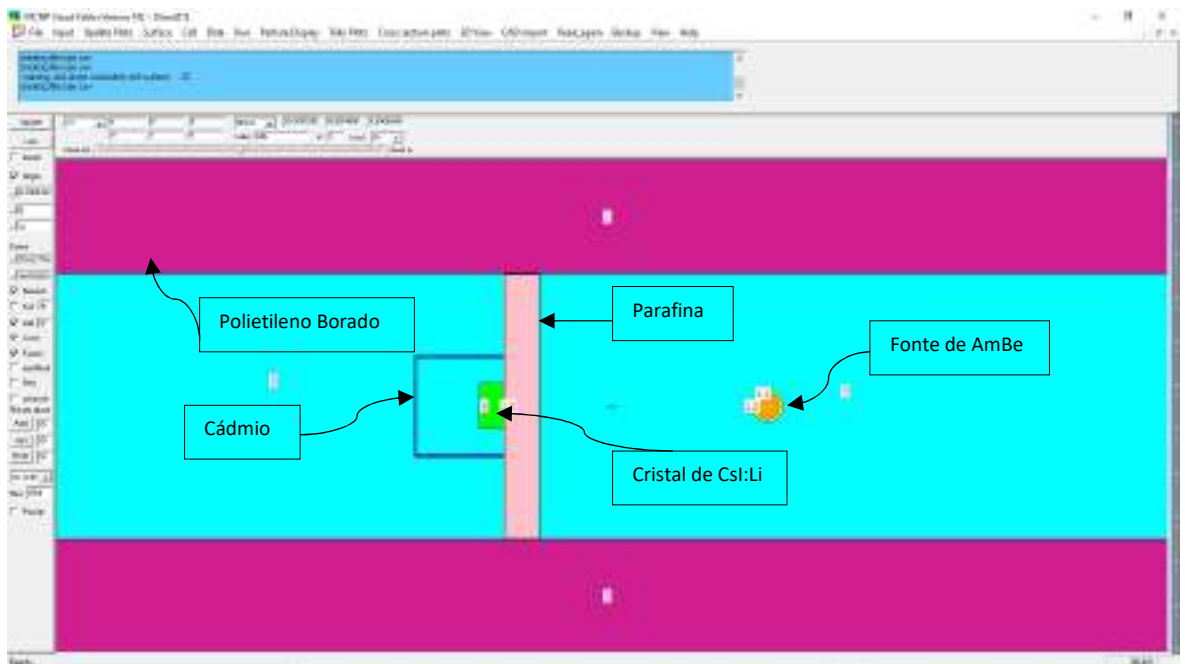
- 2) Estudo do alcance dos nêutrons dentro do cristal de CsI:Li com concentração  $10^{-3}$  M de dopante Li enriquecido em  $^6\text{Li}$ . O objetivo dessa simulação foi de encontrar a espessura ótima de cristal de CsI:Li para a detecção dos nêutrons. Os parâmetros de entrada para o programa MCNP foram modificados com relação à simulação do caso 1. O cristal usado foi CsI:Li com dimensões de 26 mm de diâmetro e 50 mm de comprimento. As Figuras 5.55 e 5.56 mostram o cristal dividido em fatias de 5 mm. A fonte de nêutrons foi considerada com espectro de energia de nêutrons exclusivamente térmico e foi posicionada na interface cristal/ar e não foram considerados blindagens ou moderador de parafina como no caso 1.

Figura 5.48 - Modelagem do experimento – Vista de perfil



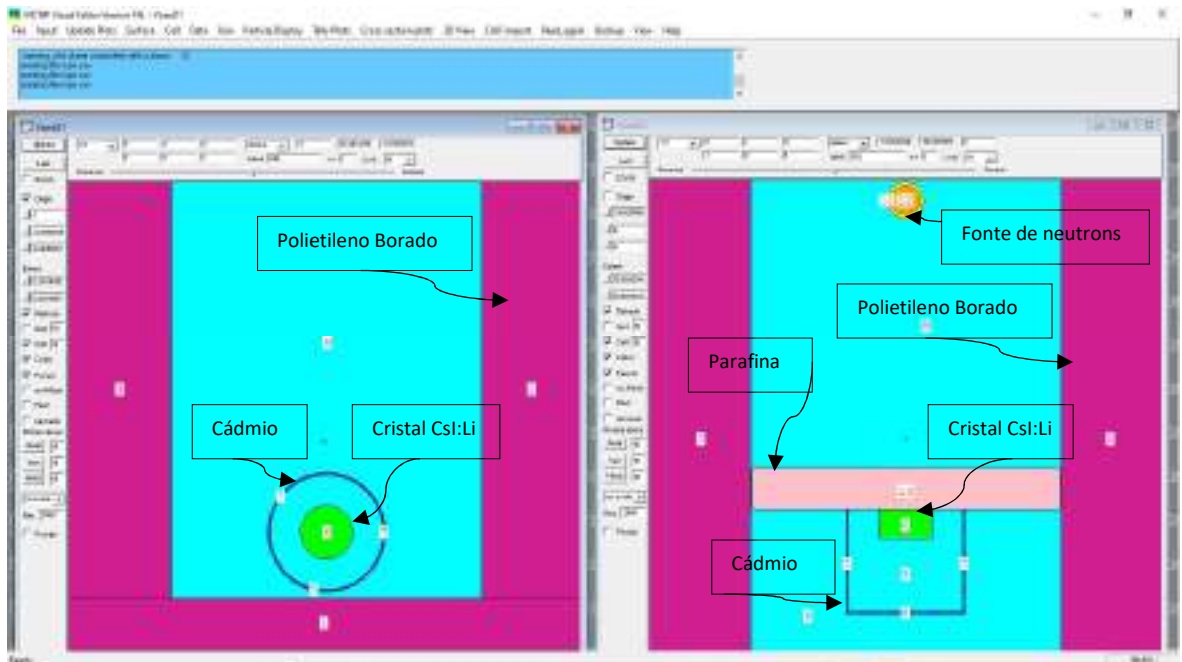
Fonte: autor da tese.

Figura 5.49 - Modelagem do experimento – Vista superior



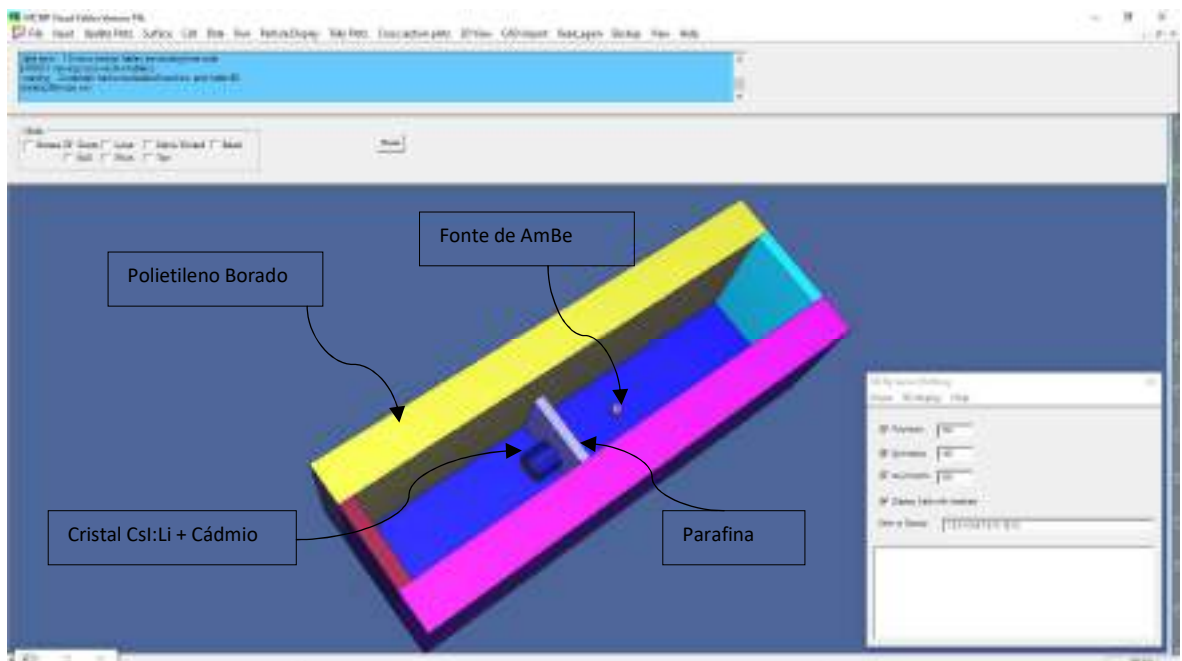
Fonte: autor da tese.

Figura 5.50 - Modelagem do experimento – Vista da fonte de nêutrons



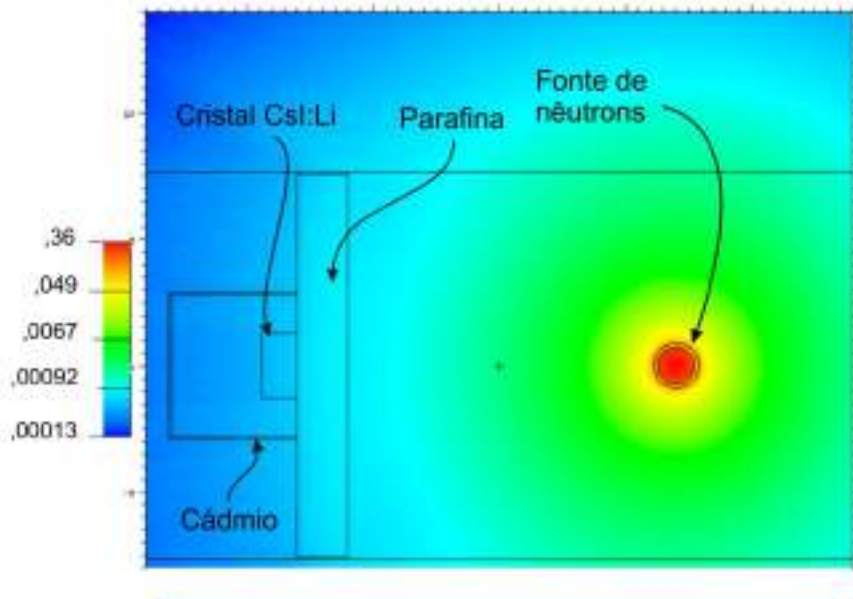
Fonte: autor da tese.

Figura 5.51 - Modelagem do experimento – Vista em 3D



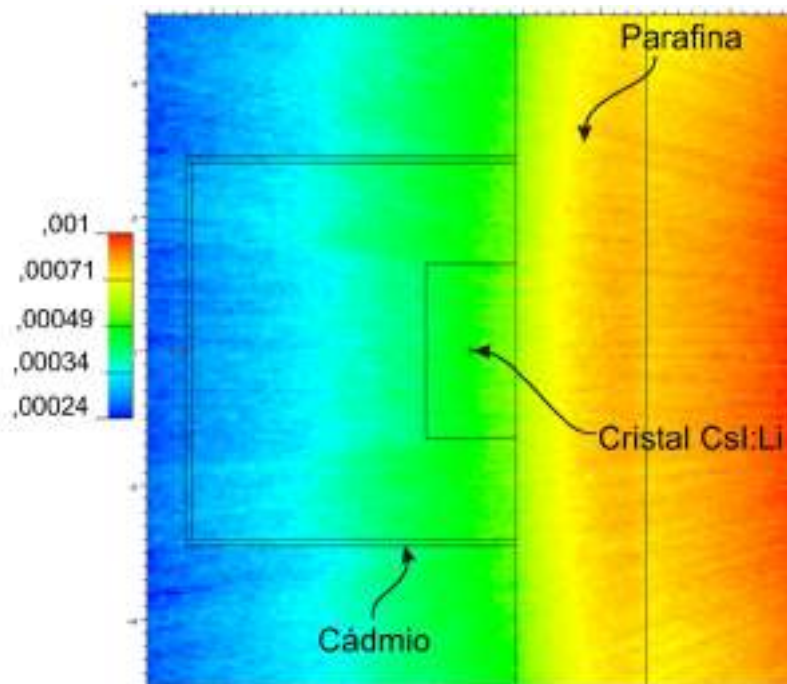
Fonte: autor da tese.

Figura 5.52 - Fluxo de nêutrons da fonte incidindo no cristal de CsI:Li de concentração de dopante Li  $10^{-3}$  M – vista superior. Escala relativa.



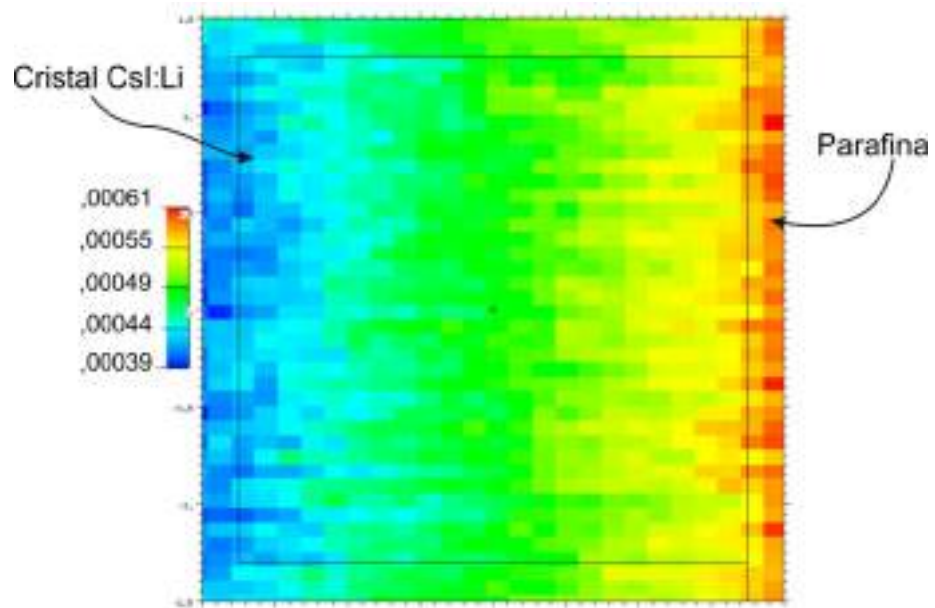
Fonte: autor da tese.

Figura 5.53 - Fluxo de nêutrons da fonte incidindo no cristal de CsI:Li de concentração de dopante Li  $10^{-3}$  M – vista lateral. Escala relativa



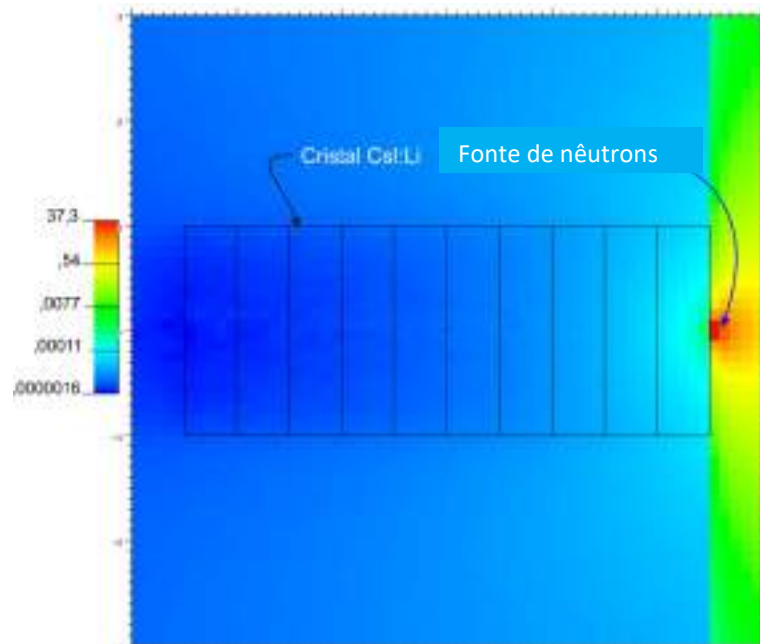
Fonte: autor da tese.

Figura 5.54 - Fluxo de nêutrons da fonte incidindo no cristal de CsI:Li de concentração de dopante Li  $10^{-3}$  M – Detalhe do cristal. Escala relativa



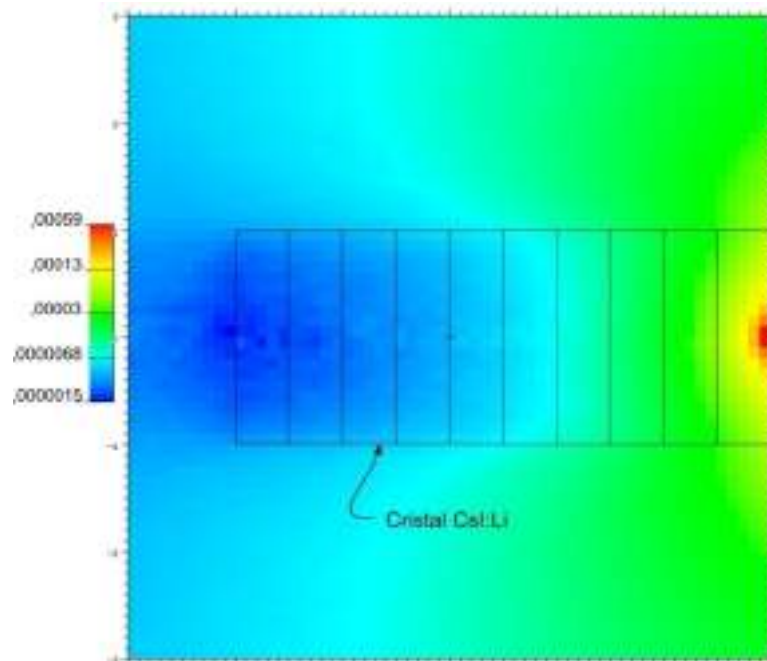
Fonte: autor da tese.

Figura 5.55 - Fluxo de nêutrons da fonte incidindo no cristal de CsI:Li de concentração de dopante Li  $10^{-3}$  M com lítio enriquecido – vista superior. Escala relativa



Fonte: autor da tese.

Figura 5.56 - Fluxo de nêutrons da fonte incidindo no cristal de CsI:Li de concentração de dopante Li  $10^{-3}$  M com lítio enriquecido– vista superior. Escala relativa



Fonte: autor da tese.

Observa-se nas Figuras 5.52 a 5.54 o fluxo de nêutrons no arranjo experimental. No cristal podemos observar que ocorre uma diminuição no fluxo de nêutrons em torno de 50%, entre o fluxo incidente e o emergente do cristal, que indica a interação com o elemento dopante lítio na matriz CsI.

A Figura 5.55 mostra o comportamento do fluxo de nêutrons da fonte para o cristal com dopagem de  $10^{-3}$  M com lítio enriquecido. Nota-se que parte dos nêutrons incidentes sofrem reflexão e a fração que penetra no cristal CsI:Li reage com os núcleos de lítio. Nota-se uma redução no fluxo de nêutrons da ordem de  $10^3$  até a quarta fatia, ou seja, 20 mm de espessura de cristal. A partir da quarta fatia até a décima, o fluxo de nêutrons é pouco significativo. A Figura 5.56 mostra a mesma situação, porém com uma visão mais focada nas reações do cristal.

## 6 CONCLUSÕES

Os cristais de CsI:Li se mostraram promissores cintiladores para uso como detectores de nêutrons.

Os cristais de CsI:Li apresentaram qualidades ópticas adequadas. Os cristais crescidos em concentrações mais elevadas de dopante apresentaram uma diminuição significativa no valor de transmitância. O cristal CsI:Li  $10^{-1}$  M apresentou um decréscimo significativo na transmitância quando comparado ao cristal CsI puro.

O espectro de luminescência do cristal de CsI:Li apresentou emissão compatível com a faixa de operação otimizada da fotomultiplicadora usada neste trabalho. A partir da análise da curva de luminescência e da fórmula de Einstein-Planck  $E=h.v$  foi possível inferir que a presença de Li na matriz cristalina de CsI reduziu o *band gap*. Consequentemente, o Li contribuiu para gerar mais fótons de luz (parâmetro de sensibilidade) no detector CsI:Li.

A distribuição do dopante lítio ao longo do eixo de crescimento, apresentou uma região com distribuição adequada. No início do processo de crescimento, a concentração do dopante foi ligeiramente maior, mantendo-se praticamente uniforme entre a fatia 3 a 7 e com aumento significativo no final do crescimento, devido ao fenômeno de segregação de impurezas.

As análises de difratometria de raios X do CsI puro apontaram semelhança com o padrão cristalino cúbico de face centrada (cfc) encontrado na literatura. Os resultados da difratometria de raios X do cristal CsI dopado com Li evidenciaram que o dopante não modificou a estrutura cristalina.

A adição de Li à matriz CsI resultou em cristais com sensibilidade quando excitados com radiação gama e nêutrons. Os cristais mostraram sensibilidade nas energias gama de 59 keV e 662 keV e sensibilidade a nêutrons térmicos.

Na resposta a detecção de nêutrons, o cristal CsI:Li 10<sup>-3</sup> M foi o que apresentou melhor sensibilidade. Esse cristal apresentou um aumento na sensibilidade de detecção em 25,62% em relação ao cristal de referência puro (CsI).

A espessura de parafina adequada, usada como termalizador de nêutrons para aumentar a sensibilidade de detecção, foi de 60 mm.

As simulações de energia depositada do nêutron no cristal CsI:Li realizadas pelo programa MCNP-6, mostraram que não é necessário trabalhar com cristais de grandes proporções, pois os cristais de CsI:Li apresentaram grande sensibilidade à detecção de nêutrons. Assim sendo, a espessura de cristal de 20 mm foi suficiente para detecção eficiente de nêutrons.

A melhora na detecção de nêutrons com o aumento do dopante Li foi atribuída à capacidade do elemento dopante Li absorver o nêutron incidente devido à alta secção de choque para nêutrons térmicos.



## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

BALDOCHI, S.L. **Síntese e crescimento de cristais de BaLiF3 puros e dopados com Pb.**: 1993. Tese (Doutoramento)- Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, USP São Paulo

BIRKS, J.B. **The Theory and Practice of Scintillation Counting.** New York, Pergamon, 1964

BITELLI, ULYSSES D.; MARTINS, FERNANDO P.G.; JEREZ, ROGERIO. Measurements of the neutron spectrum energy in the IPEN/MB-01 reactor core. **Brazilian Journal of Physics**, v. 39, n. 1, p. 39-43, 2009. Disponível em: <http://repositorio.ipen.br/handle/123456789/4884>

BLEICHER, L., SASAKI, J. M., **Introdução à difração de Raios-X em cristais.** Universidade Federal do Ceará, 2000.

BORIO di TIGLIOLE, A.; CESANA, A.; DOLFINI, R.; FERRARI, A.; RASELLI, G.L.; SALA, P.; TERRANI, M. Fluka simulations for low-energy neutron interactions and experimental validation – **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A** 469 347-353 2001

BRIDGMAN, P. W.; Crystal growth process, **American Academy of Arts and Sciences**, v. 60. P. 295-300, 1925

BRUBAKER, E.; DIBBLE, D.; MENGESHA W.; YANG, P., Thermal neutron detection using alkali halide scintillators with Li-6 and pulse shape discrimination **Sandia Report** SAND2013-8329 September 2013

BRUBAKER, ERIK; DIBBLE, DEAN and YANG PIN – Thermal neutron detection using alkali halide scintillators with  $^6\text{Li}$  and pulse shape discrimination. **IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record** 2006-2009, 2011

CALLISTER, W. D.; **Ciência e engenharia de materiais: uma introdução**, New Jersey, NY: John Wiley & Sons, 2002

CÁRDENAS, J. P. N. et al., "Experimental and MCNP studies of Paraffin and Polyethylene in Neutron Moderation and BF<sub>3</sub> Detector Efficiency," 2013 3rd International **Conference** on Advancements in Nuclear Instrumentation, Measurement Methods and their Applications (ANIMMA), Marseille, France, 2013, pp. 1-5, doi: 10.1109/ANIMMA.2013.6727922

CARDOSO, W. **Estudo das Covariâncias Envolvidas no Método  $k_0$  de Análise por Ativação Neutrônica.**: 2011. Tese de Doutorado – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, USP São Paulo

CAREL, W.E. VAN EIJK. – Inorganic Scintillators for thermal neutron detection. **IEEE Transactions on Nuclear Science**, Vol 59, NO. 5, October 2242-2247 2012

CAREL, W.E. VAN EIJK.– Inorganic Scintillators for thermal neutron detection. **Radiation Measurements** 38 337-342 2004

CIEŚLAK MJ, GAMAGE KAA, GLOVER R. Critical Review of Scintillating Crystals for Neutron Detection. **Crystals**. 2019; 9(9):480.  
<https://doi.org/10.3390/cryst9090480>

CURRAN S. C. "**Luminescence and the scintillation counter**" Curran, S. C.; Butterworths Scientific Publications, London, 1953.

DERENZO, S. E.; WEBER, M. J. Prospects for first-principle calculations of scintillator properties. **Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.**, v.A422, p.111-118, 1999.

DIETRICH, H.B.; MURRAY, R.B. **Journal of Luminescence**, 5, 155, 1972

DOCS NRC <https://www.nrc.gov/docs/ML1122/ML11229A704.pdf> (04/12/2012)

DOE **Fundamentals Handbook – Nuclear Physics and Reactor Theory** – DOE HDBK-1019/1-93 January 1993, United States of America

DRABINA, A.; ZORSKI, T.; WOZNICKA, U.; Correlation between Measurements and Monte-Carlo Calculations for the NNTL Logging-Tool – **Report No 1926/AP** Institute of Nuclear Physics 153, 31-342, 2003

EISBERG, RESNICK, **Física Quântica: Átomos, Moléculas, Sólidos, Núcleos e Partículas**, 9ª Edição, Rio de Janeiro: Campus, 1994

GARCIA, A. **Solidificação – Fundamentos e Aplicações** Editora Unicamp 2007

GRASSMANN, H; LORENZ, E.; MOSER H.G. Properties of CsI(Tl)- Renaissance of an old scintillation material. **Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.**, v.228, p.323-326, 1985.

HAMADA, M.M.; COSTA, F.E.; PEREIRA, M.C.C.; KUBOTA, S. Dependence of scintillation characteristics in the CsI(Tl) crystal on TI<sup>+</sup> concentrations under electron and alpha particles excitations. **IEEE Trans. Nucl. Sci.**, vol 48(1), 2001

HAMM D. S.; LUKOSI E. D.; RUST M. R.; HERRERA E. H.;BURGER A.; WIGGINS, B. and STOWE A. C. Characterization of Lithium Indium Diselenite **IEEE Transactions on Nuclear Science**, 978-1-4673-9862-6/15 2015

IAEA – TECDOC – 1935 Modern Neutron Detection – **Proceedings of a Technical Meeting 2020**

JAEA Japan Atomic Energy Agency, Nuclear Data Center, **Tables of Nuclear Data**: [https://www.ndc.jaea.go.jp/j40fig/jpeg/li007\\_f1.jpg](https://www.ndc.jaea.go.jp/j40fig/jpeg/li007_f1.jpg)

KITTEL, C.; **Introduction to solid state physics**. 7 ed. New York, NY: Jhon Willey, 1996.

KNOLL G.F.; **Radiation Detection and Measurement**, New York, Wiley, 1989

LAMARSH, J.R. “**Introduction to Nuclear Reactor Theory**”. Addison-Wesley Pub. Cap. 1.1966

MADI FILHO T.; HAMADA M. M.; SHIRAISHI F.; MESQUITA C. H. Development of Neutron Using the Surface Barrier Sensor With Polyethylene (n,p) and  $^{10}\text{B}(n,\alpha)$  Converters. *Nucl. Instr. And Meth. in Phys. Res. A* 458 441-447 2001

MADI FILHO, T, PEREIRA, M.C.C.; BERRETTA, J.R. CÁRDENAS, J.P.N. Study of a Li doped CsI scintillator Crystal as a neutron detector. *XXXVII Brazilian Meeting on Nuclear Physics* - Journal of Physics 360 2015

MADI FILHO, T. *Desenvolvimento de detector de nêutrons usando sensor tipo barreira de superfície com conversor (n,p) e conversor (n,alfa)*.:1999. Tese de Doutorado – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, USP São Paulo

MILLER, S. R. et al., "LiF/CsI:TI Scintillator for High-Resolution Neutron Imaging," in *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 66, no. 10, pp. 2261-2264, Oct. 2019, doi: 10.1109/TNS.2019.2940915.

MILLER, S. R., M. S. J. MARSHALL, M. WART, J. CRHA, P. TRTIK and V. V. NAGARKAR, "High-Resolution Thermal Neutron Imaging With  $^{10}\text{Boron/CsI:TI}$  Scintillator Screen," in *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 67, no. 8, pp. 1929-1933, Aug. 2020, doi: 10.1109/TNS.2020.3006741.

NAPPI, E. et al., The ALICE HMPID Group. The Present Development of CsI Rich Detectors for the ALICE Experiments at CERN. *ResearchGate* Switzerland 1998.

NEUTRON PRODUCTION AND PROTECTION. *Publicação da High Voltage Engineering Corporation*. Burlington, Mas. USA. 1965

PEREIRA M. C. C.; MADI FILHO T.; CÁRDENAS J. P. N. Inorganic Scintillation Crystals for Neutron Detection. *IEEE trans Nucl. Sci.* v. 63 (3), p. 1699-1702, 2016

PEREIRA M. C. C.; MADI FILHO T.; CÁRDENAS J. P. N. Inorganic Scintillation Crystals for Neutron Detection. *IEEE trans Nucl. Sci.* v. 63 (3), p. 1699-1702, 2016

PEREIRA, M. C. C., MADI FILHO, T., and CÁRDENAS, J. P. N., "Inorganic scintillation crystals for neutron detection," 2013 3rd International Conference on Advancements in Nuclear Instrumentation, Measurement Methods and their Applications (**ANIMMA**), Marseille, France, 2013, pp. 1-4, doi: 10.1109/ANIMMA.2013.6727878.

PEREIRA, M.C.C. **Desenvolvimento de Cristais Baseados em Iodeto de Césio para Aplicação como Detectores de Radiação**. : 2006 Tese de Doutorado. Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, USP São Paulo

PEREIRA, M.C.C.; MADI FILHO, T.; LOPES, V.M.; BERRETTA, J.R. and CÁRDENAS, J.P.N. Scintillation response of CsI:TI Crystal under neutron, gamma, alpha particles and beta excitations. **International Nuclear Atlantic Conference – INAC**. Brazil October 4-9, 2015

PEURRUNG A. J. Recent developments in neutron detection. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research**, A 443 USA 400-415, 2000

PFANN, W.G. **Zone Melting**. New York, N.Y.: John Wiley, 1958

QUEIROZ, A.; KUROSAWA, R.; BARRETO, R.; **Difração de Raios-X** 2010 Instituto de Física de São Carlos Laboratório Avançado de Física Computacional, Universidade de São Paulo

RAJ P. Development and Testing of Self-Powered Detectors for Nuclear Measurements in Fusion Reactors - Department of Mechanical Engineering **Karlsruhe Institute of Technology** – 2019

RODRIGUES, A. C. I.; **Estudo e projeto de novos cestos com boro para armazenamento de elementos combustíveis queimados do reator IEA-R1**. 2016 Dissertação (Mestrado em Tecnologia Nuclear) Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Universidade de São Paulo, São Paulo

SHIRAISHI, F., TAKAMI, Y., HASHIMOTO, T. AND HATORI, K. A new type personnel neutron dosimeter with thin Si detectors **IEEE Transactions on Nuclear Science**, 35(1), 575-578, 1988

SOUZA, A. A., BITTENCOURT, M. A. **A Contribuição da Difração de Raios-X para Configuração Molecular**. Ensino e Pesquisa. v. 1. n. 5. 2008.

Stephen A. D., "Wiley Survey of Instrumentation and Measurement", 2001

SUZART, K. F. **Desenvolvimento e Caracterização do cristal CsI:TI para uso como detector de radiação**. 2022. 98 f. Dissertação (Mestrado em Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN-CNEN, São Paulo.

TAIT, W.H. **Radiation detection**. London: Butterworths, 1980

TAKAMI Y., SHIRAISHI F., KURIHARA H. AND KAWAGUCHI K. A fast neutron spectrometer made of a single wafer DE-E Si detector **IEEE Transactions on Nuclear Science**, 34(1), 461-463, 1987

TOMÁZ; L. F.; **Otimização do crescimento de cristais cintiladores inorgânicos em matriz CsI dopada com lítio para uso como detectores de radiação**. 2019 Dissertação (Mestrado em Tecnologia Nuclear) Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Universidade de São Paulo, São Paulo

TRAVESI, A. Analysis por Activacion Neutronica, Teoria, Prática y Aplicaciones. **JEN-Junta de Energia Nuclear**, Madri 1975

TRENCHER, JOÃO F. MARTINS; MADI FILHO T.;e HAMADA, M. Z.,Desenvolvimento de detector plástico cintilador para medidas de nêutrons, **International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2007** Santos, SP, Brazil, September 30 to October 5, 2007

TSOULFANADIS N.; **Measurement and Detection of Radiation**, New York, N.Y.; Haper& Row 1983

TUFFOUR-ACHAMPONG, K., NYARKO, B.J.B., AKAHO,E.H.K., ASAMOAH, M., SOGBADJI, R.M.B., ABREFAH, R.G., BOFFIE, J.,. Re-design of 241AmBe neutron source irradiator facility at NNRI using MCNP-5 code. **Annals of Nuclear Energy** 40, 60-64 2012

WALTON J.T. AND GOUDING F.S. Silicon radiation detectors with oxide charge state compensation **IEEE Transactions on Nuclear Science**, 34(1), 396-399 1987.

X-5 Monte Carlo Team. **MCNP: A general Monte Carlo N-Particle transport code**, Version 5, Los Alamos National Laboratory. LA-UR-03-1987 USA, 2003

YANG K.; MENGE P. R.; OUSPENSKI V. Li Co-Doped NaI:TI (NaIL) – A Large Volume Neutron-Gamma Scintillator With Exceptional Pulse Shape Discrimination. **IEEE Trans Nucl. Sci.** v.64 (8) p.2406-2413, 2017

ZAHN, GUILHERME S. Eu, o neutron (prazer em conhecer). *In*: ZAMBONI, CIBELE B. (coord.). **Fundamentos da física de nêutrons**. Editora Livraria da Física: São Paulo, 2007, 2007. p. 1-18. Disponível em: <http://repositorio.ipen.br/handle/123456789/23023>. Acesso em: 24 abr. 2023.

**Anexo A – Dados de entrada do arranjo experimental para simulação do cristal de Csl:Li com concentração de Li  $10^{-3}$  M (MCNP-6)**

c Created on: Friday, July 29, 2022 at 17:18

```

1 1 -0.95 -1 2 -5 7 -9 11 $Tampo da mesa
2 1 -0.95 4 -5 1 -3 -9 11 $Blindagem direita
3 1 -0.95 -6 7 1 -3 -9 11 $Blindagem esquerda
4 1 -0.95 8 -9 -4 6 1 -3 $Blindagem frontal
5 1 -0.95 -10 11 -4 6 1 -3 $Blindagem do fundo
6 4 -4.51 14 -13 -12 $Cristal de Csl:Li
7 2 -8.65 15 -16 18 -13 $Revestimento de Cd
8 2 -8.65 -15 18 -17 $Fundo do revestimento de Cd
9 5 -0.001205 -19 #1 #2 #3 #4 #5 #6 #7 #8 $Ar ambiente do laboratorio
   #11 #12 #13
11 3 -8 -22 -20 23 (24 :21 :-25 ) $Encapsulamento da fonte (INOX)
12 6 -1.24 -21 -24 25 $Interior da fonte (Am-Be)
13 7 -0.93 -26 $Bloco de Parafina
90 0 19 $"RESTO DO MUNDO"
```

```

1 pz -3.2 $Topo do tampo da mesa
2 pz -5.74 $Baixo do tampo da mesa
3 pz 21.76 $Topo das blindagens
4 py 7.65 $Face interna da blindagem direita
5 py 15.27 $Face externa da blindagem direita
6 py -7.65 $Face interna da blindagem esquerda
7 py -15.27 $Face externa da blindagem esquerda
8 px 48 $Face interna da blindagem frontal
9 px 50.54 $Face externa da blindagem frontal
10 px -35 $Face interna da blindagem do fundo
11 px -37.54 $Face externa da blindagem do fundo
12 cx 1.3 $Superficie cilindrica do cristal
13 px 0 $Janela de entrada do cristal
14 px -1.4 $Janela de saida do cristal
15 cx 2.8 $Superficie interna do revestimento de Cd
16 cx 2.9 $Superficie externa do revestimento de Cd
17 px -5 $Fundo interno do revestimento de Cd
18 px -5.1 $Fundo externo do revestimento de Cd
19 so 300 $Fronteira limite
20 c/z 15 0 0.9 $Face externa da fonte
21 c/z 15 0 0.7 $Face interna da fonte
22 pz 1 $Topo externo da fonte
23 pz -1 $Fundo externo da fonte
24 pz 0.8 $Topo interno da fonte
25 pz -0.8 $Fundo interno da fonte
26 rpp 0 2 -7.6 7.6 -3.2 10 $Bloco de Parafina
```

mode n

```

m1 1001.80c 0.116 $POLIETILENO BORADO
   5010.80c 0.05
   6000.80c 0.612
```



```

      8016.80c      0.222
m2  48106.80c      1 $Cádmio
m3   6000.80c     -0.00041 $Aço inox 316
      14028.80c    -0.00507
      15031.80c    -0.00023
      16032.80c    -0.00015
      24052.80c    -0.17
      25055.80c    -0.01014
      26056.80c    -0.669
      28058.80c    -0.12
c
m4   53127.80c    -0.4883225 $lodeto de Césio dopado com Li (CsI:Li)
      55133.80c    -0.5114123
      3006.80c     -2.003100E-04
      3007.80c     -2.470490E-03
c
m5   6000.80c     -0.000124 $Ar ambiente
      7014.80c     -0.755268 8016.      -0.231781
m6   95241.80c     0.0022 $ Fonte de Am-Be
      4009.80c     0.99339 8016.      0.00441
m7   1001.80c     -0.148605 $ Bloco de Parafina
      6000.80c     -0.851393
c
imp:n      1 11r 0      $ 1, 13
c
sdef pos=15 0 0 axs=0 0 1 ext=d1 rad=d2
      par=n ERG=d3
si1 -0.8 0.8
sp1 0 1
si2 0 0.7
sp2 -21 1
# SI3 SP3
0.0000 0.0000
0.1067 0.1680
0.3031 0.1577
0.4998 0.1412
0.7266 0.1253
0.9685 0.1076
1.1648 0.0997
1.3990 0.0885
1.5947 0.0973
1.7826 0.1130
1.9938 0.1082
2.2198 0.1136
2.4610 0.1151
2.6859 0.1486
2.8657 0.1797
3.0841 0.1861
3.3183 0.1746
3.4849 0.1546

```

3.7112	0.1505
3.9681	0.1363
4.1638	0.1448
4.3743	0.1601
4.5856	0.1546
4.7963	0.1677
5.0531	0.1533
5.2347	0.1376
5.4466	0.1170
5.6582	0.1033
5.8546	0.0919
6.0809	0.0893
6.2915	0.1026
6.5407	0.0914
6.7296	0.0816
7.1818	0.0849
7.3549	0.0947
7.6038	0.0921
7.8453	0.0852
8.0418	0.0723
8.2538	0.0485
8.4580	0.0323
8.6620	0.0210
8.8732	0.0182
9.1295	0.0191
9.3328	0.0251
9.5286	0.0311
9.7474	0.0275
9.9738	0.0227
10.208	0.0180
10.427	0.0124
10.593	0.0067
10.796	0.0009

c

f1:n 13 12 14 T

c1 0 1 \$ fluxo de neutrons no detector

c

f6:n 6 \$ Energia depositada no cristal

c

fmesh104:n geom rec origin -6 -8 -3

imesh 22 iints 440

jmesh 16 jints 320

kmesh 6 kints 120

out ij

c

c

ctme 900

prdmp j -120 j 3

c nps 100000 \$ Número de neutrons gerados inicialmente

print

**INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES**  
Diretoria de Pesquisa, Desenvolvimento e Ensino  
Av. Prof. Lineu Prestes, 2242 – Cidade Universitária CEP: 05508-000  
Fone/Fax(0XX11) 3133-8908  
SÃO PAULO – São Paulo – Brasil  
<http://www.ipen.br>

**O IPEN é uma Autarquia vinculada à Secretaria de Desenvolvimento, associada à Universidade de São Paulo e gerida técnica e administrativamente pela Comissão Nacional de Energia Nuclear, órgão do Ministério da Ciência, Tecnologia, Inovações e Comunicações.**