



I CONGRESO DE ENSAYOS NO DESTRUCTIVOS PARA AMERICA LATINA Y EL CARIBE
Ist NONDESTRUCTIVE TESTING CONGRESS FOR LATIN AMERICA AND CARIBBEAN
I CONGRESSO DE ENSAIOS NÃO DESTRUTIVOS DA AMÉRICA LATINA E CARIBE
21-24/set./1986 São Paulo-Brazil

Abende: Rua Luiz Góes, 2341 - Cep 04043
São Paulo - SP - Brasil - Tel. (011) 578-6677 - Telex (011) 53881 - AEND - BR.

**DOSIMETRIA TERMOLUMINESCENTE : PRODUÇÃO DE MATERIAIS
DOSIMÉTRICOS**

Letícia Lucente Campos

IPEN/CNEN

Trabalho apresentado no I Congresso de Ensaios Não Destrutivos
da América Latina e Caribe

Auspícios:



SGS do Brasil S.A.

Patrocínio:



*atb/end/e*SINOPSE

Um material dosimétrico totalmente nacional de alta sensibilidade, fácil obtenção e relativamente baixo custo foi pesquisado, desenvolvido e patenteado pelo Departamento de Proteção Radiológica do IPEN.

O método de preparação dos cristais de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ desenvolvido, permite a obtenção de monocristais com qualidades ópticas para aplicação em dosimetria e estudos físicos. Para facilidade de utilização foram produzidas pastilhas as quais apresentam: boa resistência mecânica; sensibilidade 10 vezes maior que a do material importado, exposição mínima detectável de $1,29 \times 10^{-7} \text{ C.kg}^{-1}$ (0,5mR); custo 10 vezes menor; reprodutibilidade dentro de $\pm 3\%$ (1 σ). Foi também desenvolvido um porta-dosímetros com uma combinação de filtros que permite a determinação da exposição bem como da energia da radiação incidente com bastante precisão e exatidão.

A faixa útil de utilização desse dosímetro na forma de pastilhas é de $1,29 \times 10^{-7}$ a $2,58 \times 10^{-1} \text{ C.kg}^{-1}$ ($5 \cdot 10^{-4}$ a 10^5 R) e na forma de pó de $2,58 \times 10^{-10}$ a $2,58 \times 10^1 \text{ C.kg}^{-1}$ (10^{-6} a 10^5 R).

1. INTRODUÇÃO

Alguns anos após a descoberta dos raios-X, as experiências realizadas revelaram que a radiação ionizante causava efeitos danosos ao homem. Além disso, devido ao seu crescente uso nas pesquisas científicas em campos como Física, Biologia, Medicina, aplicações na Indústria e Agricultura, no diagnóstico e terapêutica de certas doenças, reconheceu-se a necessidade de medir a quantidade total de radiação a que o homem é submetido. Esse é o objetivo da dosimetria.

Nos últimos 30 anos, foram alcançados progressos significativos nesse campo, vindo-se a criar unidades radiológicas adequadas e diferentes métodos de medidas experimentais.

Em geral, qualquer material sólido que apresente pelo menos um parâmetro mensurável, que varie com a dose absorvida, pode ser utilizado como um dosímetro de estado sólido. Esses parâmetros podem ser: coloração, descoloração, emissão de luz, variação da condutividade, etc.

O fenômeno da termoluminescência (TL) é conhecido há muito tempo. Boyle observou-o nos diamantes e fluoritas em 1663. O efeito consiste basicamente na emissão de luz estimulada por aquecimento do cristal previamente irradiado.

A dosimetria termoluminescente (TLD) está se desenvolvendo rapidamente e vem sendo largamente empregada na monitoração pessoal e ambiental, devido às várias vantagens que ela apresenta em relação aos outros métodos existentes. Algumas das vantagens são:

- i) os dosímetros são pequenos e de baixo custo;
- ii) precisão e rapidez na leitura;
- iii) pode ser usada na dosimetria das radiações α , β , γ , X, UV, prótons, nêutrons e elétrons;
- iv) pode medir intervalos grandes de exposição $\sim 2,58 \times 10^{-10}$ a $2,58 \times 10^1$ C.kg⁻¹ (10^{-6} a 10^5 R).

As aplicações da TL tem se estendido em diferentes campos como a Arqueologia, na datação das cerâmicas; Biologia e Bioquímica; Ciências Jurídicas, na detecção de falsificações de peças de arte; Geologia, na identificação de minerais e determinação da idade; Controle de Qualidade na Indústria de vidros, cerâmica e semi-condutores; Dosimetria da Radiação; estudo de materiais lunares, etc...

No Brasil a monitoração pessoal e ambiental efetuada nos laboratórios dos institutos, clínicas, indústrias ou instituições que fazem uso de material radioativo ou fontes de radiação, vinha sendo efetuada totalmente com material adquirido no exterior, principalmente o filme dosimétrico e o fluoreto de lítio (LiF) termoluminescente.

ab/enc/e

Com o desenvolvimento do programa nuclear tornou-se necessária a ampliação da monitoração ambiental e pessoal. Com a crescente dificuldade de importação, visando economizar divisas e tornar-se auto-suficiente nesse campo, o Departamento de Proteção Radiológica do IPEN partiu para a pesquisa e desenvolvimento de materiais dosimétricos nacionais que substituíssem com vantagens o material importado.

Com o objetivo de obter esse dosímetro optou-se pelo desenvolvimento de um dosímetro de estado sólido e, dentre eles um que apresentasse efeito termoluminescente. Foram pesquisados vários materiais, o CaF_2 natural, a produção de LiF semelhante ao importado e o CaSO_4 impurificado com terras raras, entre elas o Dy, foi o que se apresentou como um dos mais convenientes. Suas principais vantagens são: alta sensibilidade à radiação ionizante, facilidade de produção em laboratório a partir de matéria-prima nacional e portanto, custo relativamente baixo em comparação com o material importado.

2. TERMOLUMINESCÊNCIA

A. Modelo Simples de Termoluminescência

O fenômeno da TL é caracterizado pela emissão de luz que ocorre aquecendo-se o sólido a uma temperatura abaixo da de incandescência. Esse fenômeno só ocorre quando o material foi previamente exposto à radiação, caso contrário não se verificará emissão de luz durante o processo de aquecimento.

As substâncias que apresentam esse comportamento são denominadas fósforos termoluminescentes.

Os fósforos TL são, em geral, cristais iônicos, nos quais a banda de valência se encontra repleta e a de condução vazia, ambas separadas por uma faixa larga de estados energéticos não permitidos aos elétrons, e denominada, portanto, banda proibida (Fig. 1-a).

A emissão de luz que ocorre durante o aquecimento pode ser explicada qualitativamente da maneira descrita a seguir.

Quando o cristal é exposto à radiação ionizante, os elétrons vão para a banda de condução deixando livres os buracos na banda de valência, podendo ambos ser capturados em armadilhas (Fig. 1-b). A probabilidade de escape do elétron de uma armadilha aumenta com a temperatura. Ele pode ir, durante o aquecimento, para a banda de condução de onde pode vir a se recombinar com o buraco armadilhado, emitindo luz durante o processo (Fig. 1-c).

Aquecendo-se, então, o fósforo, podemos medir a luz emitida em função do tempo ou da temperatura de aquecimento, obtendo, desse modo, a curva de emissão. A altura do pico principal (dosimétrico) é o parâmetro que se relaciona com a dose absorvida ou exposição.

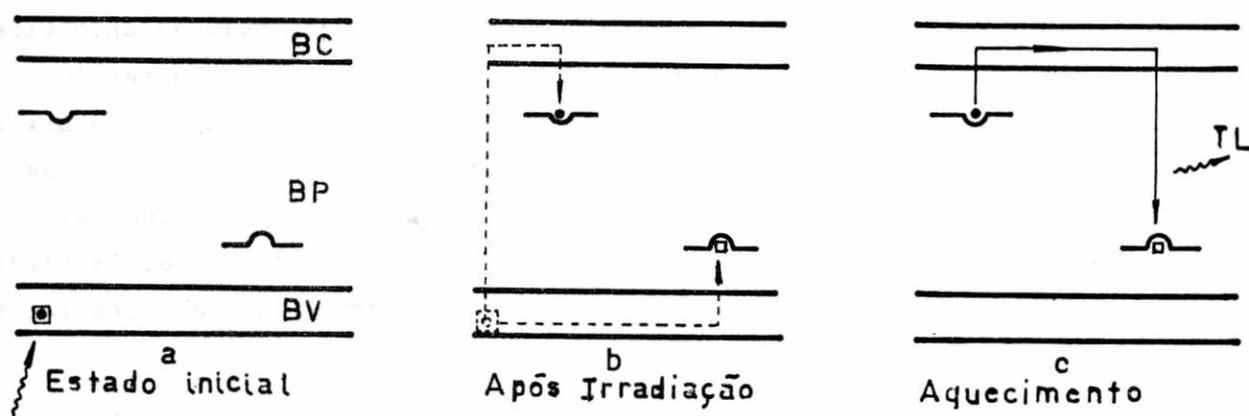


Fig. 1 - Modelo simplificado do fenômeno da Termoluminescência.

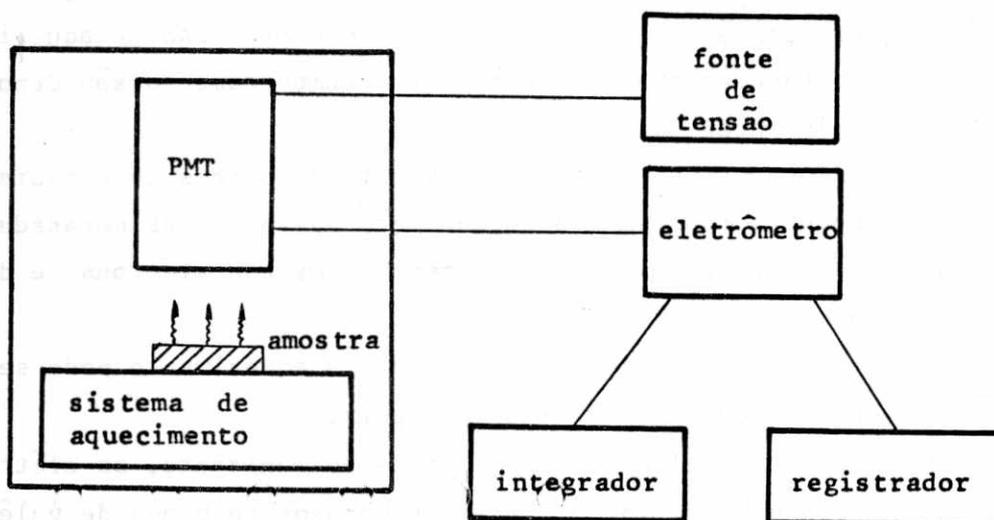


Fig. 2 - Diagrama de blocos do aparelho leitor termoluminescente.

B. Aparelho Leitor TL

O diagrama de bloco do aparelho leitor TL é mostrado na Fig. 2.

C. Características

As principais características da TL são:

- a) Curva de emissão
- b) Estabilidade
- c) Exposição mínima detectável
- d) Curva de resposta em função da exposição
- e) Dependência da resposta TL com a taxa de exposição
- f) Resposta TL em função da energia da radiação incidente
- g) Reusabilidade

3. MATERIAIS E MÉTODOS EXPERIMENTAIS

A. Crescimento dos Cristais

Os cristais de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ são obtidos pelo método de evaporação lenta em um sistema selado⁽¹⁾, desenvolvido nos laboratórios do IPEN (patente junto ao INPI nº 8.106.943). Esse método permite o controle da cristalização, podendo-se obter cristais de dimensões e sensibilidade favoráveis também a outras utilizações.

Os cristais passam por um rigoroso controle de qualidade antes de serem selecionados na granulação adequada para a compactação na forma de pastilhas, o que facilita a sua utilização⁽²⁾.

As pastilhas são obtidas pela prensagem a frio e pela sinterização de uma mistura de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ + Teflon⁽³⁾, ambos sob a forma de pó.

B. Estudo das Características TL

Foram estudadas as principais características TL das pastilhas de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ + Teflon com a finalidade da aplicação das mesmas na monitoração pessoal e ambiental.

C. Leitura TL

As propriedades dosimétricas das pastilhas foram estudadas utilizando-se um Leitor Termoluminescente Harshaw Modelo 2000 A-B. A velocidade de aquecimen

to constante foi de 9°Cs^{-1} . O intervalo de integração da luz emitida foi de 220 a 350°C . Todas as medidas foram efetuadas 24 horas após a irradiação. Cada valor determinado corresponde à média de cinco medidas.

4. RESULTADOS

A. Tratamento Térmico

O primeiro parâmetro determinado foi o tratamento térmico a ser efetuado nas pastilhas, com a finalidade de eliminar os efeitos de exposições prévias. Para as nossas condições, o tratamento térmico escolhido é de 300°C durante 3 horas.

B. Curva de Emissão TL

A Fig. 3 mostra a curva de emissão típica das pastilhas de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{Te}$ flon obtida sob as condições descritas acima. O pico principal que é o chamado pico dosimétrico, aparece a uma temperatura de 250°C . Um outro pico pode ser observado em 140°C . A sensibilidade média, expressa como a razão da intensidade de luz produzida por $2,58 \times 10^{-4} \text{ C.kg}^{-1}$ (1R) de exposição em 1mg de material, é de $1,30\text{nC.R}^{-1}.\text{mg}^{-1}$ e a razão entre a altura do pico dosimétrico e o de mais baixa temperatura é 4,5.

C. Estabilidade

O decaimento do sinal TL foi estudado por um período de 90 dias. Um lote de pastilhas previamente irradiado foi armazenado em local adequado. Periodicamente eram lidas algumas das pastilhas armazenadas. Após um período de armazenamento de 90 dias na temperatura ambiente foi observada uma diminuição no sinal de aproximadamente 7% (Fig. 4).

D. Exposição Mínima Detectável

Considera-se a exposição mínima detectável, três vezes o desvio padrão da média do sinal TL de amostras não expostas à radiação TL (OR), multiplicado pelo fator de calibração do lote de pastilhas utilizado, obtido para valores de exposição maiores do que $2,58 \times 10^{-5} \text{ C.kg}^{-1}$ (100mR). A exposição mínima detectável é de $1,29 \times 10^{-7} \text{ C.kg}^{-1}$ (0,5mR).

E. Dependência com a Taxa de Exposição

Não foi observada qualquer dependência da resposta TL das pastilhas com a

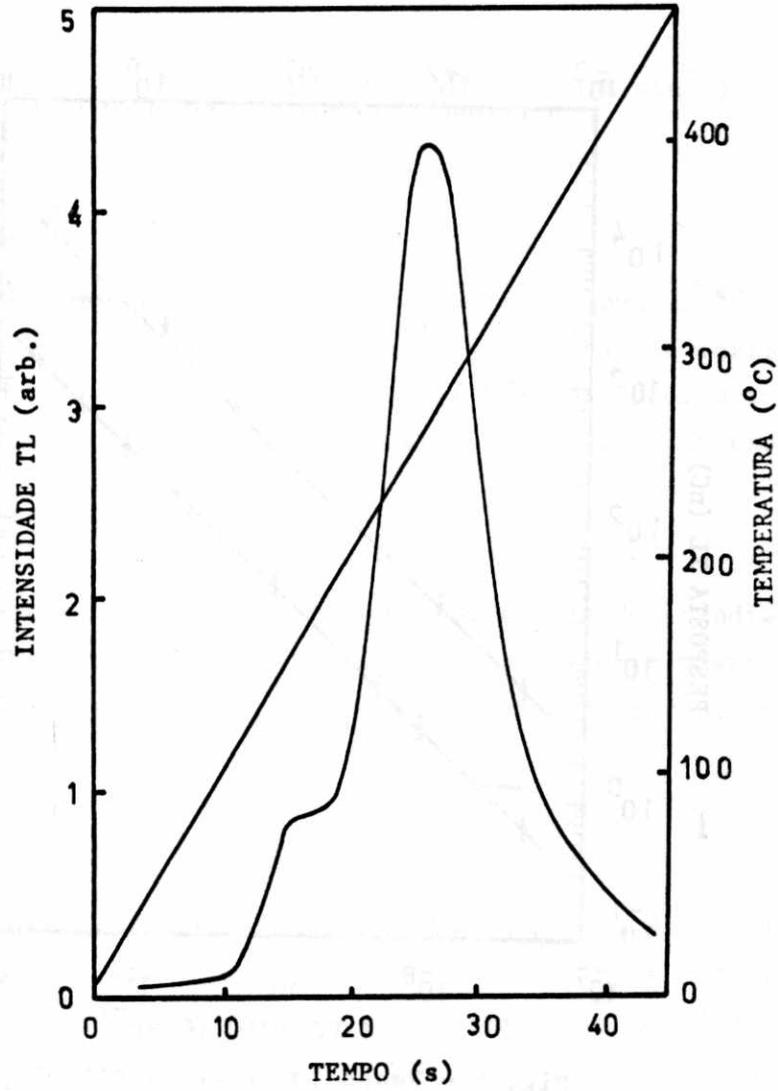


Fig. 3 - Curva de Emissão TL do $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$.

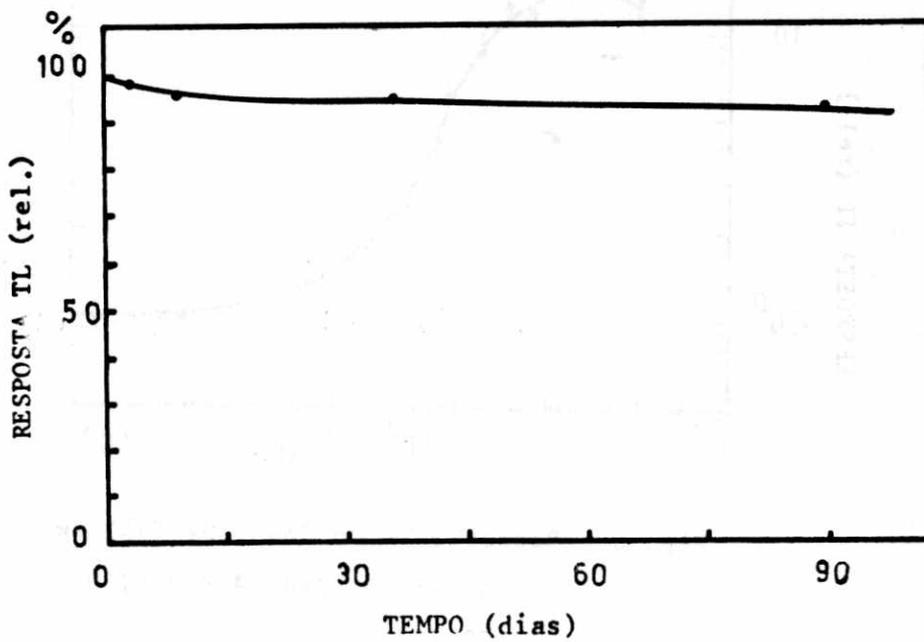


Fig. 4 - Curva de Decaimento do sinal TL das pastilhas.

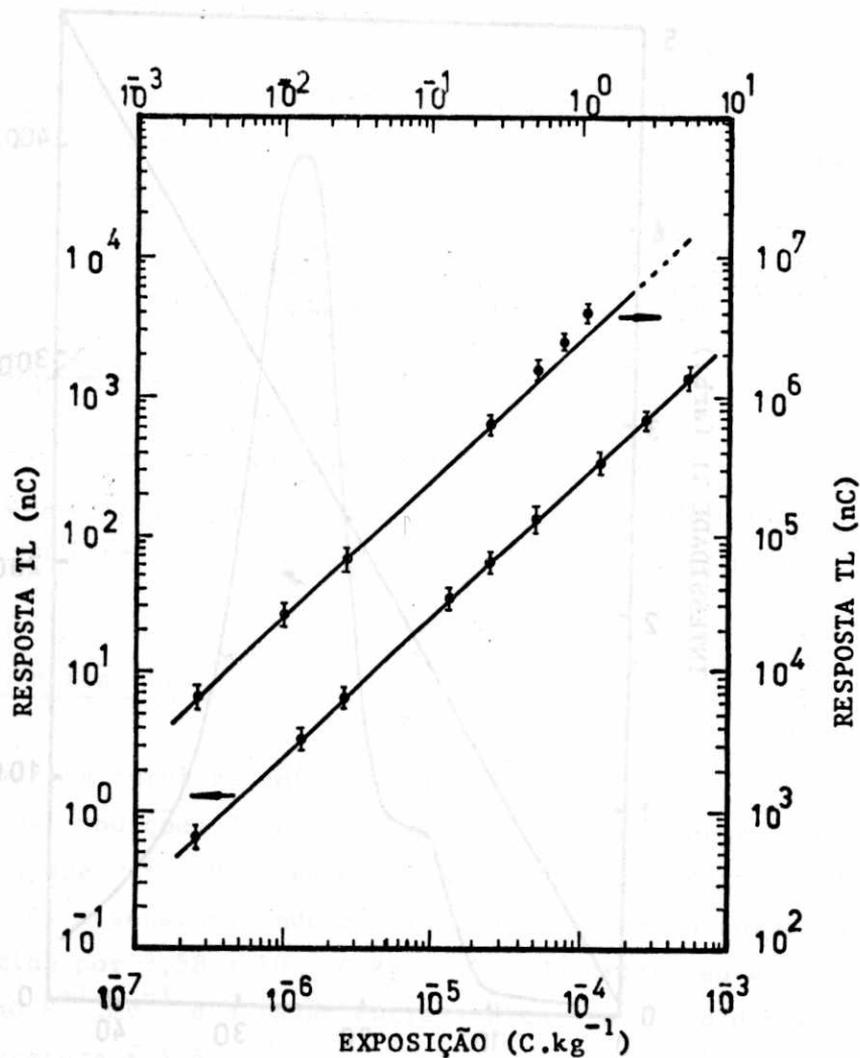


Fig. 5 - Resposta TL das pastilhas de CaSO₄:Dy em função da exposição (⁶⁰Co).

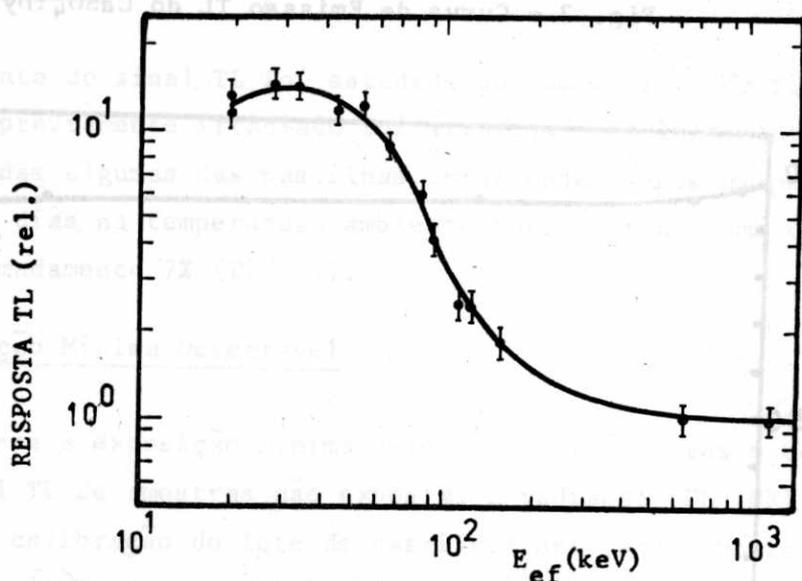


Fig. 6 - Resposta TL do CaSO₄:Dy (põ) em função da energia da radiação incidente.

taxa de exposição entre $2,58 \times 10^{-6} \text{ C.kg}^{-1} \cdot \text{min}^{-1}$ (10mR.min⁻¹)
 $5,28 \times 10^{-3} \text{ C.kg}^{-1} \cdot \text{min}^{-1}$ (20,5R.min⁻¹).

e

F. Resposta em Função da Exposição

A resposta TL em função da exposição à radiação gama do ⁶⁰Co foi medida entre $2,58 \times 10^{-7} \text{ C.kg}^{-1}$ (1mR) e $1,032 \text{ C.kg}^{-1}$ (4×10^3 R) e é mostrada na Fig. 5. Verifica-se que acima de $2,58 \times 10^{-1} \text{ C.kg}^{-1}$ (10^3 R) a resposta torna-se supralinear, o que não impede que se use o dosímetro nessa faixa de exposição.

G. Reutilização

Os estudos efetuados mostraram que após 20 ciclos de irradiação, leitura TL e tratamento térmico de 100 pastilhas, o desvio padrão máximo da média, por pastilha, é de 3,9%. Isso indica que uma pastilha pode ser utilizada 20 vezes sem nova calibração.

H. Resposta em Função da Energia da Radiação

A resposta TL do CaSO₄:Dy (p^o) em função da energia da radiação incidente foi medida para energias de raios-X desde 20 até 155keV e radiação gama do ¹³⁷Cs e normalizada para a resposta TL à radiação gama do ⁶⁰Co. As condições experimentais são dadas na Tabela I e a resposta TL em função da energia é mostrada na Fig. 6.

A forte dependência com a energia verificada abaixo de 200keV, pode ser atribuída ao alto valor do número atômico efetivo (Z) do CaSO₄ (15,3). Nessa região de energias, o tipo de interação da radiação ionizante com a matéria predominante é o efeito fotoelétrico, que depende fortemente de Z.

I. Porta-dosímetro

Para facilidade de utilização das pastilhas, foi desenvolvido um porta-dosímetro especialmente para CaSO₄. O porta-dosímetro possui três filtros: 3mm de plástico; 1mm de chumbo e 0,8mm de chumbo com furo central de 2mm de diâmetro, mostrado na Fig. 7.

A resposta TL dos dosímetros posicionados atrás dos três filtros é mostrada na Fig. 8.

A combinação da resposta TL das pastilhas sob esses filtros permite a determinação da exposição bem como da energia da radiação incidente no intervalo de energias entre 20keV e 1,25MeV.

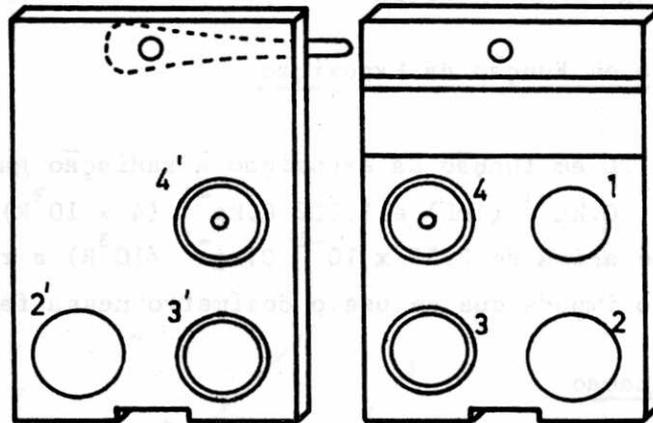


Fig. 7 - Porta-dosímetro de plástico com filtros

- 1- janela aberta
- 2-2'- filtro de plástico (3mm)
- 3-3'- filtro de chumbo (1mm)
- 4-4'- filtro de chumbo (0,8mm) com furo central (2mm diâmetro).

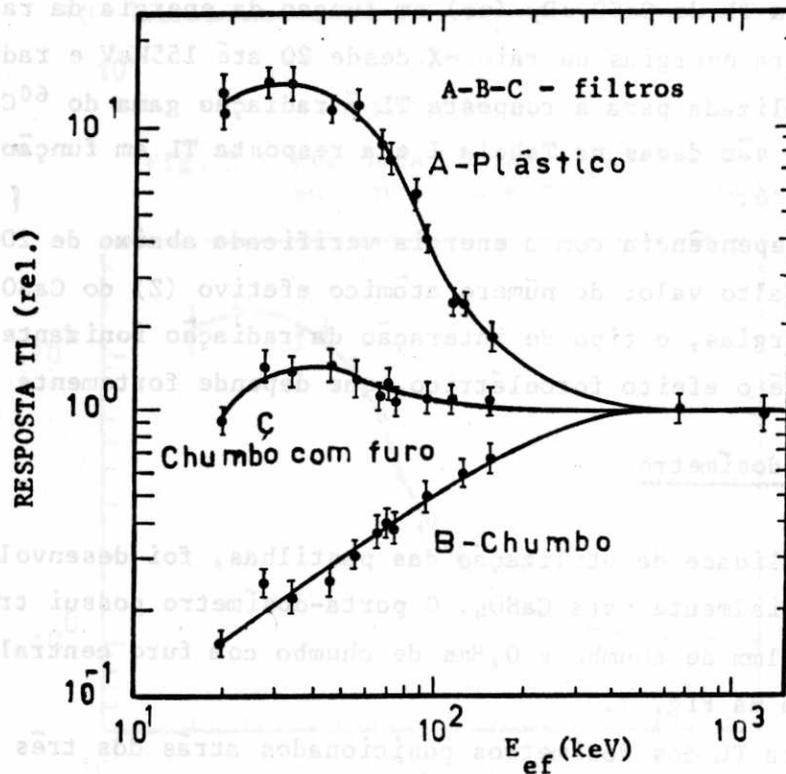


Fig. 8 - Curvas de resposta TL do sistema porta-dosímetro + pastilhas de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ em função da energia da radiação incidente.

TABELA I

Condições Experimentais das Irradiações com Raios-X

ENERGIA EFETIVA keV	FILTRAÇÃO ADICIONAL mm	CAMADA SEMI-REDUTORA mm
20	2,0 Al	0,75 Al
28	2,0 Al	1,62 Al
34	2,0 Al	2,86 Al
45	4,0 Al	5,49 Al
55	0,2 Cu	0,35 Cu
66	0,5 Cu	0,57 Cu
70	0,5 Cu	0,70 Cu
74	0,5 Cu	0,76 Cu
96	1,0 Cu	1,42 Cu
116	Th II	2,07 Cu
126	Th I	2,40 Cu
155	Th III	4,0 Cu

5. CONCLUSÃO

Todos os resultados obtidos: sensibilidade, estabilidade, exposição mínima detectável, linearidade da resposta TL em uma larga faixa de exposições, não dependência com a taxa de exposição, aliados ao fato da reprodutibilidade da resposta TL ser igual ou em alguns casos (altas exposições) menor do que 3% , mostraram que as pastilhas de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ + Teflon preenchem todos os requisitos para serem utilizadas como um dosímetro.

Com a utilização do porta-dosímetro proposto, a sua aplicação em monitoração pessoal e ambiental é imediata, podendo também serem utilizadas para a determinação de taxas de exposição de fontes de radiação ou tubos de raios-X de aplicações médicas ou industriais.

6. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- 1 - Campos L.L., "Preparation of $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ TL Single Crystals". J. of Luminescence, Amsterdam, 28, 481-483 (1983).
- 2 - Campos L.L., "Development of a $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ Dosimeter", Proc. Meeting on Rad. Prot. Dosimetry, Centrecon, Itaipava, Rio de Janeiro, Brasil, B.02, Março (1983).

atb/end/e

3 - Campos L.L., Lima M.F., "Dosimetric Properties of CaSO₄:Dy Teflon - Pellets Produced at IPEN". Radiation Protection Dosimetry, aceito para publicação, Ashford 14, 4 (1986).

AMADIA SEMI-REDUTORA	mm
0,75 Al
1,00 Al
1,25 Al
1,50 Al
1,75 Al
2,00 Al
2,25 Al
2,50 Al
2,75 Al
3,00 Al
3,25 Al
3,50 Al
3,75 Al
4,00 Al

... com a utilização do porta-dosímetro proposto, a sua aplicação em monitoria ...

... aplicação médica ou industrial.

Campos L.L., "Preparação de CaSO₄:Dy Teflon Opacitantes". J. of Luminescence, Amsterdam, 23, 461-483 (1983).

Campos L.L., "Development of a CaSO₄:Dy Dosimeter", Proc. Meeting on Rad. Prot. Dosimetry, Conselho, Itaipava, Rio de Janeiro, Brasil, 8-12, Março (1983).