

DIFERENÇA ENTRE OS MECANISMOS DE FORMAÇÃO DOS PICOS TL DOSIMÉTRICO (5)  
E 6,7 DO TLD-100LUIZ ANTONIO R. DA ROSA<sup>a</sup> E LINDA V. EHLIN CALDAS  
INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES, CNEN-SP.INTRODUÇÃO

O LIF:Mg,TI (TLD-100) É O MATERIAL TERMOLUMINESCENTE MAIS UTILIZADO NA DOSIMETRIA DAS RADIAÇÕES, COM APLICAÇÕES INDUSTRIAIS E MÉDICAS. A TERMOLUMINESCÊNCIA (TL) EXIBIDA PELO TLD-100 IRRADIADO À TEMPERATURA AMBIENTE ( $-20^{\circ}\text{C}$ ) É NORMALMENTE EXPLICADA EM TERMOS DOS MODELOS PROPOSTOS POR MAYHUGH<sup>1)</sup> E CHRISTY E MAYHUGH<sup>2)</sup> QUE ADMITEM A EXISTÊNCIA DE ENTIDADES MÓVEIS QUE SÃO OS ELÉTRONS E OS BURACOS. NESTES MODELOS É CONSIDERADO QUE OS ELÉTRONS SÃO TERMICAMENTE LIBERADOS DE ARMADILHAS RELACIONADAS COM O MAGNÉSIO. ESTES, ENTÃO, RECOMBINAM-SE COM CENTROS  $V_3$  DANDO ORIGEM A CENTROS  $V_k$  QUE POSSUEM UM ELEVADO GRAU DE MOBILIDADE ÀS TEMPERATURAS CONSIDERADAS. ESTES BURACOS MÓVEIS, POR SUA VEZ, SÃO CAPTURADOS EM UM SÍTIO DE RECOMBINAÇÃO PROVAVELMENTE ASSOCIADO AO TITÂNIO. UM ELÉTRON DEVE, ENTÃO, SER LIBERADO DE UM CENTRO F PARA O CENTRO DE TI. A RECOMBINAÇÃO DESTES ELÉTRON COM O BURACO ANTERIORMENTE CAPTURADO LEVA À EMISSÃO DE LUZ. RECENTEMENTE, CONTUDO, SAGASTIBELZA E ALVAREZ RIVAS<sup>3)</sup> PROPUSERAM QUE A TL APRESENTADA PELO TLD-100 IRRADIADO À TEMPERATURA AMBIENTE É CAUSADA PELA RECOMBINAÇÃO DE ÁTOMOS HALOGENEOS INTERSTICIAIS TERMICAMENTE LIBERADOS DE ARMADILHAS COM CENTROS DE VACÂNCIA (F,  $Z_2$ ). DURANTE A IRRADIAÇÃO DO MATERIAL, OS CENTROS F E ÁTOMOS HALOGENEOS INTERSTICIAIS SÃO PRODUZIDOS DE MODO SIMULTÂNEO. OS ÁTOMOS INTERSTICIAIS SÃO ESTABILIZADOS NA PROXIMIDADE DE IMPUREZAS E DISLOCAÇÕES<sup>4)</sup>. OS CENTROS F TAMBÉM SÃO ESTABILIZADOS RELATIVAMENTE PRÓXIMO A IMPUREZAS E DISLOCAÇÕES<sup>5,6)</sup>. A TERMOLUMINESCÊNCIA APRESENTADA PELO TLD-100 IRRADIADO À TEMPERATURA AMBIENTE ORIGINA-SE DA RECOMBINAÇÃO DE CENTROS F COM ÁTOMOS HALOGENEOS INTERSTICIAIS MÓVEIS TERMICAMENTE LIBERADOS DE ARMADILHAS, TAIS COMO IMPUREZAS E DISLOCAÇÕES. QUANDO ESTES DOIS TIPOS DE DEFEITOS DA REDE RECOMBINAM-SE, UMA RECOMBINAÇÃO ELÉTRON-BURACO TAMBÉM OCORRE E LUZ É EMITIDA. DEVE SER RESSALTADO QUE NESTE MODELO AS ENTIDADES MÓVEIS NO PROCESSO TERMOLUMINESCENTE NÃO SÃO NEM ELÉTRONS NEM BURACOS, MAS SIM ÁTOMOS HALOGENEOS INTERSTICIAIS.

UMA VEZ QUE ESTES DOIS MODELOS MENCIONADOS ESTÃO BASEADOS EM SUPOSIÇÕES, É NECESSÁRIO TESTAR A VALIDADE DOS MESMOS, SEM, CONTUDO, DEIXAR DE TER EM MENTE A COMPLEXIDADE DA MÚLTIPLA ESTRUTURA DE PICOS DE EMISSÃO TL APRESENTADA PELO TLD-100 E DO PRÓPRIO PROCESSO TL EM GERAL E, MAIS AINDA, A POSSIBILIDADE DE MAIS DE UM PROCESSO SE FAZER PRESENTE AO MESMO TEMPO. IRRADIAÇÕES A BAIXAS TEMPERATURAS FORNECEM UM ÚNICO MEIO PARA TESTAR A VALIDADE DESTES MODELOS, JÁ QUE A ESTAS TEMPERATURAS OS PROCESSOS DE DIFUSÃO ESTÃO CONGELADOS E, PORTANTO,

<sup>a</sup> Pesquisador do Instituto de Radioproteção e Dosimetria, CNEN-RJ.

OS ÁTOMOS INTERSTICIAIS ESTÃO IMÓVEIS<sup>7)</sup>, E, ASSIM, AS ARMADILHAS TL CAUSADAS PE LA MIGRAÇÃO E/OU AGREGAÇÃO DE ENTIDADES INTERSTICIAIS OU IMPUREZAS DEVEM ESTAR AUSENTES. UMA COMPARAÇÃO ENTRE AS ESTRUTURAS DAS CURVAS DE EMISSÃO DO TLD-100 IRRADIADO A TEMPERATURA AMBIENTE E A BAIXAS TEMPERATURAS DEVE REVELAR QUAIS OS PICOS DE EMISSÃO TL QUE SÃO CAUSADOS POR RECOMBINAÇÃO DE ÁTOMOS INTERSTICIAIS - EM MOVIMENTO COM OS CENTROS F.

OS ESTUDOS JÁ EFETUADOS DO TLD-100 IRRADIADO A BAIXAS TEMPERATURAS SÃO POUCOS E LIMITADOS A PICOS TL RELACIONADOS COM TEMPERATURAS INFERIORES A 200°C<sup>8,9)</sup>, EMBORA REGULLA<sup>10)</sup> TENHA FEITO MENÇÃO AO DESAPARECIMENTO DO PICO TL DE 260°C QUANDO O TLD-100 É EXPOSTO À RADIAÇÃO GAMA À TEMPERATURA DE 77K. RECENTEMENTE LAKSHMANAN E COLABORADORES<sup>11,12)</sup> E LAKSHMANAN<sup>13)</sup>, BASEADOS EM DADOS OBTIDOS ATRAVÉS DAS TÉCNICAS DE TERMOLUMINESCÊNCIA E ABSORÇÃO ÓPTICA, CORRELACIONARAM OS PICOS DE EMISSÃO TL7 (260°C) E 10 (400°C) DO TLD-100 RESPECTIVAMENTE COM CENTROS Z<sub>2</sub> (280nm) E Z<sub>3</sub> (225nm). KOS E NINK<sup>14)</sup> PROPUSERAM QUE A MIGRAÇÃO DE Mg<sup>2+</sup> E Mg<sup>+</sup> PARA CENTROS F LEVA DIRETAMENTE À FORMAÇÃO DE CENTROS Z:



OS ESTUDOS COM ABSORÇÃO ÓPTICA REALIZADOS POR NEPOMNYASHCHIKH E RADZHABOV<sup>15)</sup> DEMONSTRAM QUE, EM CRISTAIS DE LiF:Mg EXPOSTOS À RADIAÇÃO X a 120K, OS CENTROS F ESTÃO AUSENTES. SE OS CENTROS F ESTÃO AUSENTES A TEMPERATURAS DE IR RADIAÇÃO BAIXAS É RAZOÁVEL ANTECIPAR QUE OS PICOS TL RELACIONADOS A CENTROS Z (Z<sub>1</sub>, Z<sub>2</sub>, Z<sub>3</sub> ETC.) TAMBÉM ESTÃO AUSENTES, UMA VEZ QUE OS CENTROS F ESTÃO PRESENTES NOS CENTROS Z.

NESTE TRABALHO, PARA SE DETERMINAR QUAL O MODELO QUE MELHOR EXPLICA O MECANISMO DE FORMAÇÃO DOS PICOS TL 5, 6 E 7 DO TLD-100, FORAM OBTIDAS E COMPARADAS ENTRE SI AS CURVAS DE EMISSÃO DO MATERIAL IRRADIADO À TEMPERATURA AMBIENTE E A 77K.

### MATERIAIS E MÉTODOS

DOSÍMETROS TERMOLUMINESCENTES DE LiF:Mg,Ti (TLD-100), COM DIMENSÕES 3 x 3 x 0,9mm<sup>3</sup>, PRODUZIDOS PELA HARSHAW CHEMICAL COMPANY, EUA, FORAM UTILIZADOS NO TRABALHO. O TRATAMENTO TÉRMICO EMPREGADO NA REGENERAÇÃO DOS DOSÍMETROS FOI DE 400°C DURANTE 15 MINUTOS. AS AMOSTRAS FORAM AVALIADAS ENTRE A TEMPERATURA AMBIENTE E 400°C EM UM LEITOR TL HARSHAW 2000 A+B. A TAXA DE AQUECIMENTO UTILIZADA FOI DE 1°C/s, OBTIDA COM O USO DE UM PROGRAMADOR DE TEMPERATURA EXTERNO AO APARELHO. NA IRRADIAÇÃO DOS DOSÍMETROS FOI EMPREGADA UMA FONTE DE <sup>60</sup>Co COM UMA ATIVIDADE DE APROXIMADAMENTE 530 Ci. OS DOSÍMETROS FORAM IRRADIADOS SOB CONDIÇÃO DE EQUILÍBRIO ELETRÔNICO. NAS IRRADIAÇÕES A 77K OS TLD-100 FORAM COLOCADOS EM UM RECIPIENTE DE ISOPOR, PREENCHIDO COM NITROGÊNIO LÍQUIDO. FOI UTILIZADA UMA EXPOSIÇÃO DE 0,187C/kg NA IRRADIAÇÃO DAS AMOSTRAS.

## RESULTADOS E DISCUSSÃO

NA FIGURA 1 É MOSTRADA A CURVA DE EMISSÃO TL DO TLD-100 IRRADIADO A TEMPERATURA AMBIENTE. SÃO OBSERVADOS 8 PICOS DE EMISSÃO SITUADOS RESPECTIVAMENTE A 70, 110, 140, 170, 185, 240, 260 E 315°C. NA FIGURA 2 SÃO MOSTRADAS AS CURVAS DE EMISSÃO DO TLD-100 IRRADIADO A TEMPERATURA AMBIENTE (LINHA FECHADA) E 77K (LINHA ABERTA). OBSERVA-SE QUE NÃO HÁ VARIAÇÃO NA INTENSIDADE DE PICO TL 5. ISTO INDICA QUE A MIGRAÇÃO DE ÁTOMOS HALOGENEOS INTERSTICIAIS NÃO É RESPONSÁVEL PELA FORMAÇÃO DE TAL PICO E QUE SEU MECANISMO DE FORMAÇÃO É MELHOR EXPLICADO PELOS MODELOS DE MAYHUGH<sup>1)</sup> E CHRISTY E MAYHUGH<sup>2)</sup>. O PICO TL 6, POR SUA VEZ, DESAPARECEU QUASE QUE COMPLETAMENTE DA CURVA DE EMISSÃO DO TLD-100 IRRADIADO A 77K, E O PICO TL 7 APRESENTOU-SE DRÁSTICAMENTE (APROXIMADAMENTE DE 60 VEZES), REDUZIDO EM SUA INTENSIDADE NESTA MESMA CURVA DE EMISSÃO. TAL FATO DEMONSTRA QUE AS INTENSIDADES DESTES PICOS ESTÃO ASSOCIADAS AO MOVIMENTO DE CENTROS F E ÁTOMOS HALOGENEOS DURANTE A IRRADIAÇÃO DO MATERIAL. SEUS MECANISMOS DE EMISSÃO SÃO MELHOR APLICADOS PELO MODELO DE SAGASTIBELZA E ALVAREZ RIVAS<sup>3)</sup>. MAIS AINDA, ESTES RESULTADOS CONCORDAM COM A ASSOCIAÇÃO DO PICO TL 7 COM UM CENTRO Z. O FATO DO PICO TL 7 AINDA SE FAZER PRESENTE, EMBORA COM UMA INTENSIDADE BEM MENOR, NA CURVA DE EMISSÃO DO TLD-100 IRRADIADO A TEMPERATURA DO NITROGÊNIO LÍQUIDO, INDICA QUE EXISTE AINDA UMA PEQUENA PROBABILIDADE NA FORMAÇÃO DAS ARMADILHAS A ELE RELACIONADAS, MESMO A ESTA TEMPERATURA, DEVIDO AO REDUZIDO MOVIMENTO DE ÁTOMOS INTERSTICIAIS. UMA OUTRA OBSERVAÇÃO QUE SE PODE OBTER DA FIGURA 2 É QUE O PICO TL 8 TAMBÉM APRESENTA UMA REDUÇÃO, POR UM FATOR DE APROXIMADAMENTE 4,5, EM SUA INTENSIDADE APÓS A IRRADIAÇÃO DO TLD-100 A 77K. ISTO PARECE INDICAR QUE AS ARMADILHAS ASSOCIADAS AO PICO TL 8 ESTÃO TAMBÉM RELACIONADAS A CENTROS F E QUE ELE É UM POSSÍVEL CANDIDATO A RELACIONAR-SE COM CENTROS Z, CUJA PRESENÇA NO LiF:Mg FOI PREVISTA POR KOS E NINK<sup>14)</sup>.

## CONCLUSÕES

CONCLUI-SE DOS MODELOS MENCIONADOS QUE OS DE MAYHUGH<sup>1)</sup> E CHRISTY E MAYHUGH<sup>2)</sup> EXPLICAM MELHOR O MECANISMO DE EMISSÃO DO PICO TL DOSIMÉTRICO (5) DO TLD-100. QUANTO AOS MECANISMOS DE EMISSÃO DOS PICOS TL 6 E 7 DESTES DOSÍMETRO, ESTES SÃO MELHOR EXPLICADOS PELO MODELO DE SAGASTIBELZA E ALVAREZ RIVAS<sup>3)</sup>.

## REFERÊNCIAS

1. MAYHUGH MR, 1970, J. APPL. PHYS. 41, 4776.
2. CHRISTY RV E MAYHUGH MR, 1972, J. APPL. PHYS. 43, 3216.
3. SAGASTIBELZA F E ALVAREZ RIVAS JL, 1981, J. PHYS. C: SOLID STATE PHYS. 14, 1873.
4. SONDER E E SIBLEY WA, 1972, POINT DEFECTS IN SOLIDS VOL. 1, EDS JH CRAWFORD AND LM SLIFKIN (NEW YORK AND LONDON: PLENUM) PP 201-90.
5. HODGSON ER, DELGADO A E ALVAREZ RIVAS JL, 1979, J. PHYS. C: SOLID STATE PHYS. 12, 4393.
6. HODGSON ER, DELGADO A E ALVAREZ RIVAS JL, 1979, J. PHYS. C: SOLID STATE PHYS. 12, 1239.
7. AGULLO-LOPEZ F, LOPEZ FJ E JAQUE F, 1982, CRYST. LATT. DEF. AMORPH. MATER. 9, 227.
8. COOKE DW E RHODES JF, 1981, J. APPL. PHYS. 52, 4244.
9. KUULA SP, 1984, RADIAT. EFFEC. 80, 47.
10. REGULLA DF, 1981, IN APPLIED THERMOLUMINESCENT DOSIMETRY EDS. M. OBERHOFER AND A SCHARMANN (BRISTOL: ADAM HILGER) CAP. 7 P. 127.
11. LAKSHMANAN AR, BHUMAN CHANDRA E BHATT RC, 1982, J. PHYS. D: APPL. PHYS. 15, 1501.
12. LAKSHMANAN AR, BHUMAN CHANDRA E BHATT RC, 1983, PHYS. STATUS SOLIDI A 75, 263.
13. LAKSHMANAN AR, 1984, RADIAT. PROT. DOSIM. 6, 52.
14. KOS HJ E NINK R, 1977, PROC. 5TH INT. CONF. LUMINESCENCE (SÃO PAULO) P. 21.
15. NEPOMNYASHCHIK AI E RADZHABOV EA, 1980, OPT. SPECTROSC. (URSS) 48, 154.

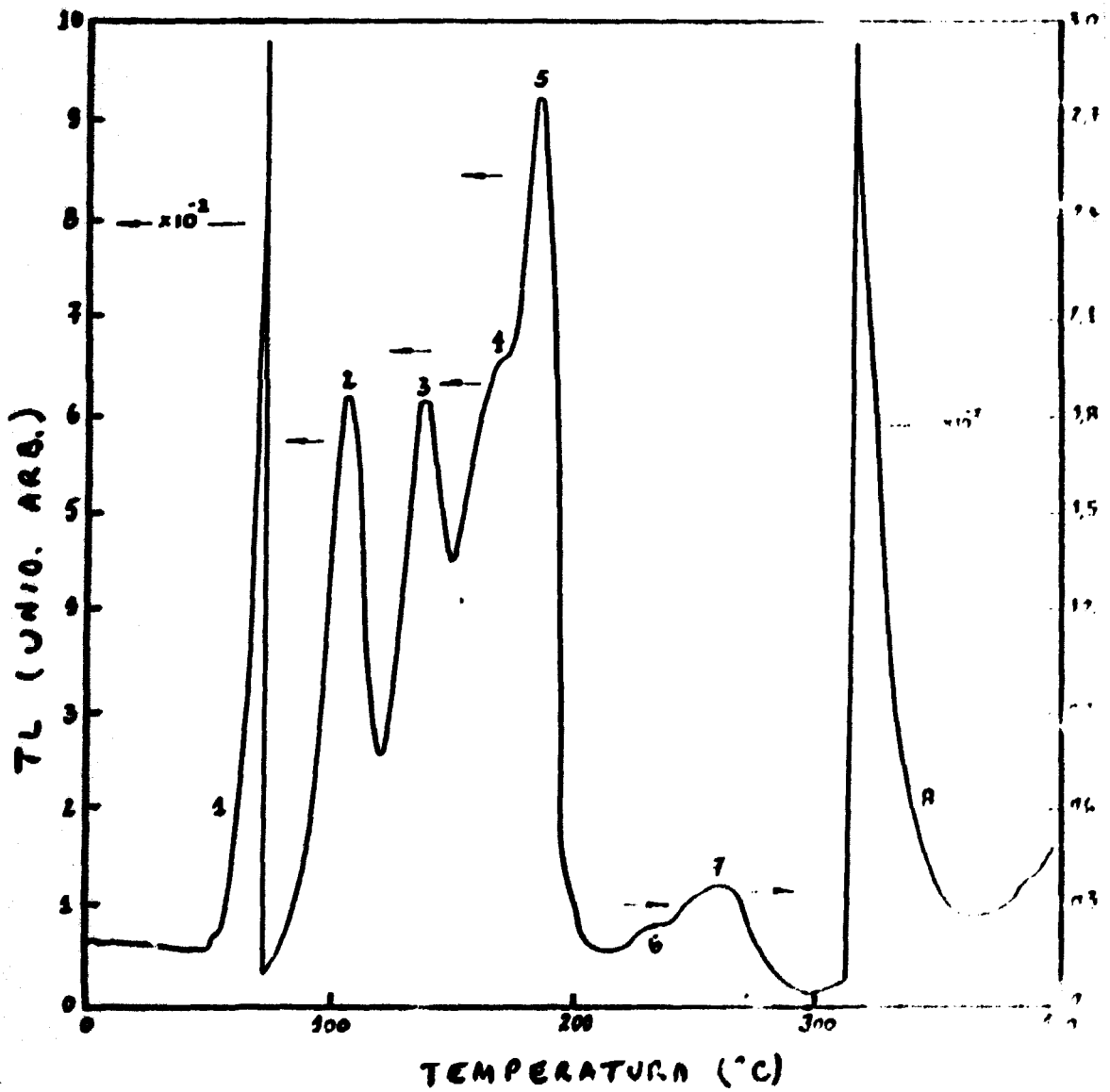


FIG. 1: CURVA DE ENERGIA TL DO TLD-100 IRRADIADO A TEMPERATURA AMBIENTE COM 0,187 C/ho.

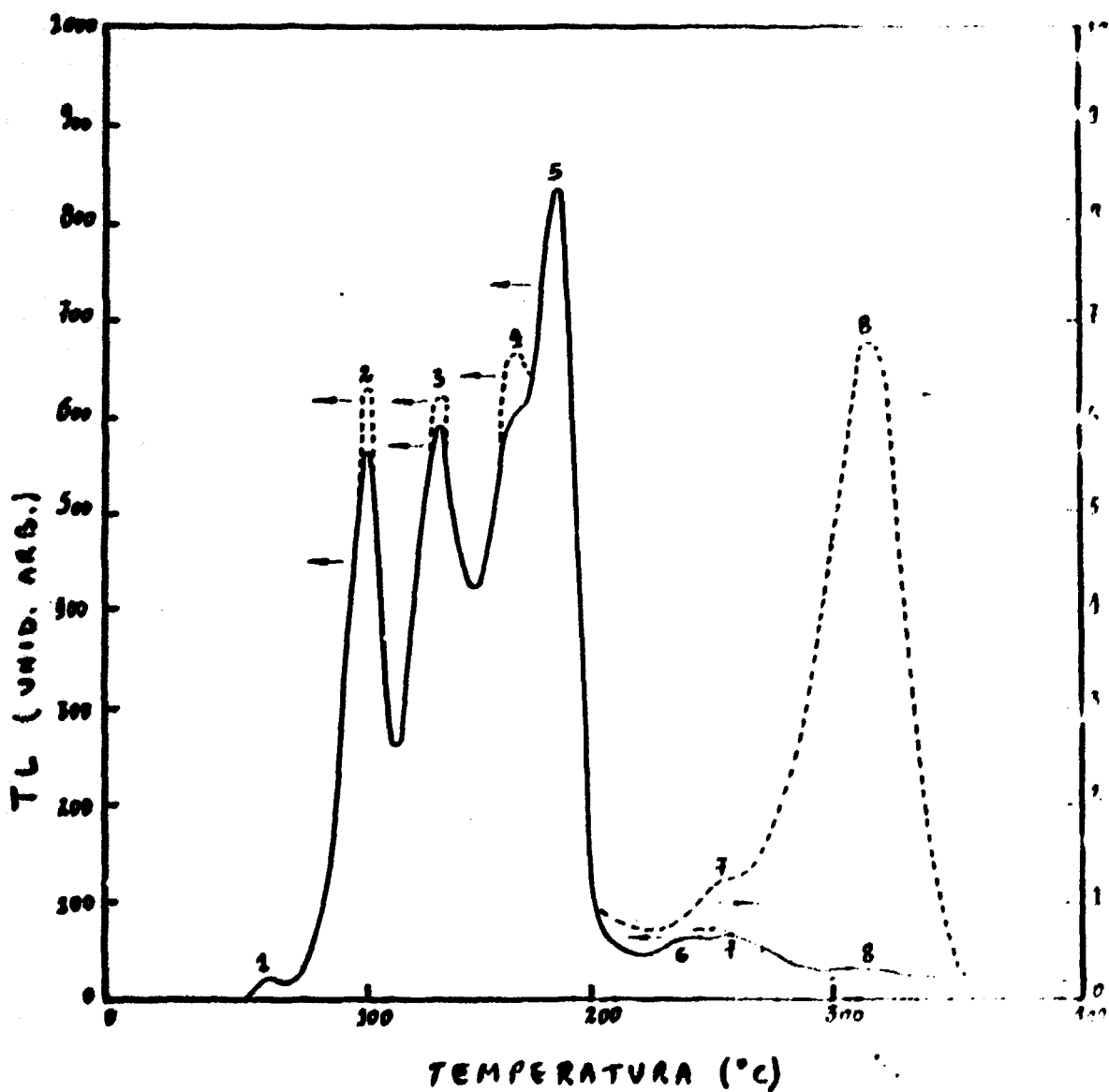


FIG. 2: CURVA DE EMISSÃO TL DO 110-100 IRRADIADO A 110°C E A 77K (----) COM 0,197 C/100.

"Difference between the Formation Mechanism of the Thermoluminescent Peaks 5,6 and 7 of TLD-100", Rosa, L.A.R. and Caldas, L.V.E. (Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, CNEN/SP). (In Portuguese). "Diferença entre os Mecanismos de Formação dos Picos TL Dosimétrico (5) e 6,7 do TLD-100. Paper presented at the Simpósio de Física Médica Esther Nunes Perelra, Curitiba, Paraná, Brazil, July 1986.

LIF:Mg,Ti (TLD-100) is the most employed thermoluminescent material in radiation dosimetry, with industrial and medical applications. The thermoluminescence (TL) induced in LIF:Mg,Ti (TLD-100) material by irradiation at room temperature (20°C) is commonly explained in terms of a model proposed by Hayhugh (J. Appl. Phys., 41, 4776, 1970) in which the mobile entities are electrons and holes. However, Sagastibelza and Alvarez Rivas (J. Phys. C, 14, 1873, 1981) have recently proposed that the TL process in LIF (TLD-100) irradiated at room temperature is caused by the recombination of interstitial halogen atoms thermally released from traps with vacancy centres (F<sub>2</sub>). Irradiations at low temperatures provide an unique opportunity to test the validity of these models because at these temperatures the diffusion processes are frozen and hence the TL traps caused by interstitial or impurity migration and/or aggregation should be absent. Glow-curves of TLD-100, irradiated with 0,187 C/kg, at room-temperature and at 77K, were obtained in order to determine the formation mechanism of TL glow peaks 5 (dosimetric), 6 and 7 of the material. There was no change in the intensity of TL peak 5. This indicates that the migration of interstitial entities is not responsible for the formation of the traps associated to this TL peak. TL peak 6, however, was completely absent in the TL glow-curve of TLD-100 irradiated at 77K, and the TL peak 7 presented a very reduced intensity for the same irradiation conditions. This fact demonstrates that the intensities of these peaks are associated to the creation of the corresponding traps during the material irradiation.

**Palavras chave: THERMOLUMINESCENT DETECTORS**

**SIMPÓSIO DE FÍSICA MÉDICA ESTHER NUNES PEREIRA**  
09 a 16 de julho de 1966  
Curitiba / PR

**FORMULÁRIO PARA INSCRIÇÃO DE TRABALHOS**

Forma de apresentação:  Painei  
 Comunicação Oral

Título do Trabalho: Diferença entre os Mecanismos de  
Formação dos Picos TL Dosimétricos 5' e 5.7' de  
STD-100.

Autores: Luiz A. R. da Rosa e Linda W. E. Caldas.

Instituição: Instituto de Pesquisas Energéticas e Nu-  
cleares, CPEN-SP.

Assinatura do primeiro autor: 

Este formulário deve ser devolvido até 10 de junho para:

Arístides Marquês de Oliveira Neto (Moderador)  
Secretário Regional, Sul  
Clínica Paranaense de Tumores S.C.  
Rua Rosa Saborski, 194  
13110 - Curitiba - PR  
Tel. (041) 224.1411 após 18:00 h

## RESUMO

O  $\text{LiF:Mg,Ti}$  (TLD-100) é o material termoluminescente mais utilizado na dosimetria das radiações, com aplicações industriais e médicas. A termoluminescência (TL) exibida pelo TLD-100 irradiado à temperatura ambiente ( $20^\circ\text{C}$ ) é normalmente explicada em termos do modelo proposto por Hayhugh (J. Appl. Phys. 41, 4776, 1970), que admite a existência de entidades móveis que são os elétrons e os buracos. Recentemente, contudo, Sagastibelza e Alvarez Rivas (J. Phys. C, 14, 1677, 1981) propuseram que a TL apresentada pelo TLD-100 irradiado à temperatura ambiente é causada pela recombinação de átomos halogenetos intersticiais termicamente liberados de armadilhas com centros de vacância ( $\text{F}_2$ ,  $\text{Z}_2$ ). Irradizações a baixas temperaturas fornecem um único meio para testar a validade destes modelos, já que a estas temperaturas os processos de difusão estão congelados e, assim, as armadilhas TL causadas pela migração e/ou agregação de entidades intersticiais ou impurezas devem estar ausentes. Foram obtidas curvas de emissão do TLD-100 irradiado com  $0,197\text{ Mrad/kg}$  à temperatura ambiente e a  $77\text{K}$  para se determinar o mecanismo de formação dos picos de emissão TL 5 (dosimétrico), 6e7 do TLD-100. Não houve mudança na intensidade do pico TL 5 indicando que a migração de entidades intersticiais não é responsável pela formação das armadilhas associadas a tal pico. O pico TL 6, por sua vez, desapareceu da curva de emissão do TLD-100 irradiado a  $77\text{K}$  e o pico TL 7 apresentou-se drasticamente reduzido em sua intensidade. Tal fato demonstra que as intensidades destes picos estão associadas à criação das armadilhas correspondentes durante a irradiação do material.