

ESTUDO DO EQUILÍBRIO ELETRÔNICO NO ALUMÍNIO UTILIZANDO O DOSÍMETRO TERMOLUMINESCENTE DE $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$

Claudio A. Federico^{*}, Luiz P. Geraldo^{**}, Odair L. Gonzalez^{*}, Renato Semmler^{***},
Alexandre D. Caldeira^{*} e Leda S. Y. Rigolon^{*}

^{*}Instituto de Estudos Avançados – IEAv/CTA
Rod. Dos Tamoios, km 5,5
12231-970 São José dos Campos, SP, Brasil

^{**}Instituto de Pesquisas Científicas IPECI/UNISANTOS
Rua Piauí, 58
11065-420, Santos, SP, Brasil

^{***}Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN-CNEN/SP
CP 11049 Pinheiros
05422-970 São Paulo, SP, Brasil

RESUMO

Neste trabalho, são apresentados os resultados das medidas experimentais do perfil de dose absorvida em um corpo de alumínio, irradiado por feixes colimados de radiação gama de captura de nêutrons térmicos, produzida por 23 alvos apropriados no canal tangencial do reator de pesquisa IEA-R1 do IPEN/CNEN-SP. A espessura de equilíbrio de partículas carregadas (ETPC) foi obtida a partir da análise do perfil de dose para cada espectro de captura. Os resultados são comparados com o alcance CSDA dos elétrons de maior energia gerados no meio pela radiação gama. É sugerida uma correção empírica do alcance CSDA para a descrição do comportamento da espessura de ETPC em função da energia média do espectro de raios gama, no intervalo entre 3275 e 7850 keV.

Keywords: absorbed dose, profile, equilibrium, gamma.

I. INTRODUÇÃO

A dosimetria por meio de materiais termoluminescentes é comumente utilizada para dosimetria pessoal, de área e de materiais irradiados por fontes de radiação naturais, industriais e médicas, onde, usualmente, as energias médias de raios X e gamas envolvidas situam-se abaixo ou próximas à energia média da radiação gama emitida pelo ^{60}Co (1,25MeV)[1]. No entanto há várias situações de particular interesse para a dosimetria, onde há a ocorrência de radiação gama com energias maiores do que aquelas emitidas pelo ^{60}Co , destacando-se:

a) Em ambientes de reatores [2,3], onde há, em vários locais, a geração de radiação gama com energias que podem atingir até 11MeV por meio da captura de nêutrons térmicos em materiais estruturais, no moderador e nas blindagens. Por exemplo, as reações de captura de nêutrons térmicos na água, $^1\text{H}(n,\gamma)^2\text{H}$ e $^{16}\text{O}(n,\gamma)^{17}\text{O}$, produzem raios gama de 2,23MeV e 6MeV, respectivamente.

b) Em ambientes de aceleradores lineares de elétrons [4], onde há a produção de radiação de “bremsstrahlung”,

com espectro de energia contínuo, que se estende até a energia do feixe primário do acelerador.

A resposta de um material dosimétrico depende fortemente do tipo e da espessura do material (ou filtro) utilizado para se atingir a condição de equilíbrio eletrônico. Para energias baixas da radiação gama (até 1,5 MeV, aproximadamente) a atenuação do feixe primário, na profundidade (ou espessura) correspondente ao alcance dos elétrons gerados na superfície do material irradiado, pode ser considerada desprezível, podendo-se admitir, sem grande margem de erro, a condição de equilíbrio eletrônico, já em profundidades iguais ao alcance dos elétrons gerados na direção de propagação do feixe de radiação gama.

O mesmo não acontece para energias maiores, onde a atenuação do feixe primário, pela espessura correspondente ao alcance dos elétrons gerados na superfície do material, não pode ser desprezada, uma vez que, o alcance desses elétrons aumenta com a energia mais acentuadamente que a penetração do feixe primário, resultando, em até 12,7 % de atenuação do feixe na profundidade correspondente ao alcance máximo dos

elétrons produzidos por um feixe de radiação gama de 10MeV [5].

Nestas condições, o fluxo de elétrons primários e secundários gerados pela radiação cresce com a profundidade do material atravessado pelo feixe gama, atinge um máximo, passando, a partir dessa profundidade, a diminuir proporcionalmente à atenuação do feixe gama. Essa condição é denominada de Equilíbrio Transitório de Partículas Carregadas (ETPC). A partir desse máximo (espessura de ETPC) a dose absorvida é proporcional ao kerma de colisão, podendo-se obter uma relação direta entre a dose absorvida e o fluxo de radiação gama [5].

Assim, o conhecimento do comportamento da dose absorvida por um dosímetro ao longo da espessura de um material atravessado pelo feixe de radiação gama, com energias maiores que a do ^{60}Co , é de interesse para a melhoria da formulação de critérios e processos de dosimetria pessoal e de área, bem como, para uma descrição adequada, do comportamento da dose no interior de materiais irradiados, por fontes de radiação gama.

Neste trabalho, dosímetros termoluminescentes de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ foram distribuídos no interior de um conjunto de placas de alumínio e irradiados com radiação gama de captura de nêutrons térmicos com energia média variando no intervalo entre 3275,16 a 7850,02 keV. Foi medido o perfil de dose no alumínio e obteve-se a espessura de equilíbrio de partículas carregadas (ETPC) em função da energia média do feixe gama incidente, para este material.

II. APARATO EXPERIMENTAL

As irradiações foram realizadas no arranjo montado no canal tangencial BH-12 do reator de pesquisa IEA-R1 do IPEN/CNEN-SP (2 MW), ilustrado na figura 1 [6], utilizando-se pastilhas dosimétricas produzidas pelo IPEN [7], compostas por $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ em matriz de teflon (com massa de 50 mg, diâmetro de 6 mm e espessura de 0,8 mm).

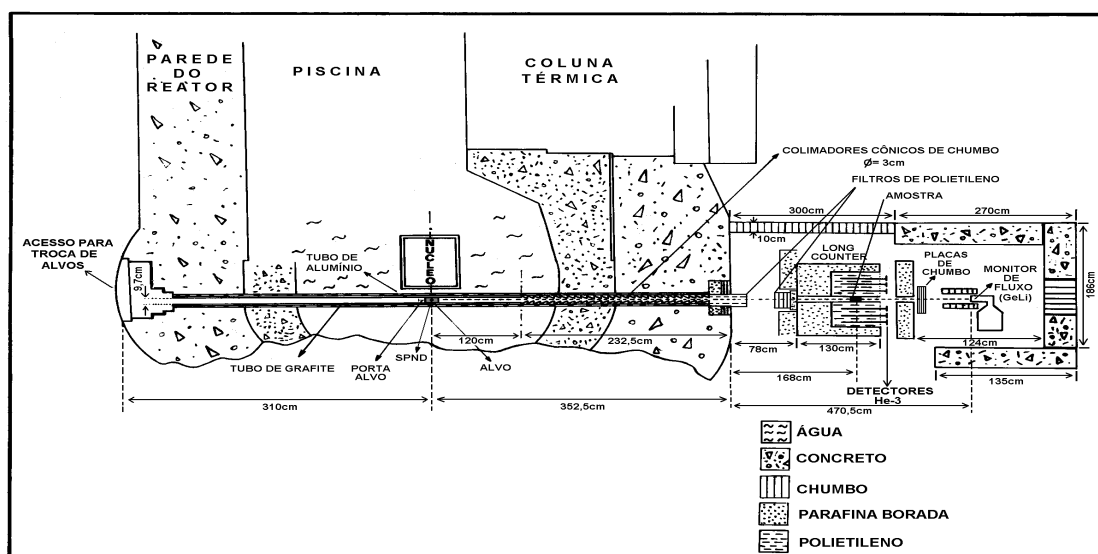


Figura 1. Arranjo montado no canal tangencial BH-12 do reator de pesquisa IEA-R1 do IPEN/CNEN-SP.

Em cada irradiação foram utilizadas 12 pastilhas dosimétricas posicionadas no interior de um arranjo de placas de alumínio (espessura de 1,1 mm), conforme mostrado na figura 2. As medidas de dose foram realizadas em profundidades de espessura de alumínio entre 0 e 33,1 mm de Al.

A radiação gama de captura de nêutrons térmicos foi produzida em diversos materiais alvos convenientemente escolhidos (tabela 1), posicionados no interior do canal tangencial, junto ao núcleo do reator [6]. O feixe de radiação gama de captura foi direcionado para o local de irradiação das pastilhas dosimétricas, por um conjunto de colimadores cônicos de chumbo, de 2m de comprimento e 3 cm de diâmetro interno. Para a remoção de nêutrons provenientes do reator, foram utilizados filtros de polietileno (56,2 cm) e de parafina borada (8,4 cm). O feixe de raios gama foi monitorado por meio de um detector

Ge(Li) (ORTEC, 25 cm³, 5% de eficiência relativa), previamente calibrado [8]. Possíveis variações da potência do reator durante as medidas foram monitoradas utilizando um detector de nêutrons térmicos do tipo SPND ('Self Powered Neutron Detector'), posicionado próximo ao alvo de captura.

Os dosímetros foram irradiados no interior de um detector do tipo 'Long Counter', que oferece uma excelente blindagem para nêutrons do ambiente, a uma distância de 520,5 cm dos alvos de captura. As doses nas quais foram submetidas as pastilhas situaram-se entre 1 e 15 mGy, com taxas de dose entre 1 e 10 mGy/h.

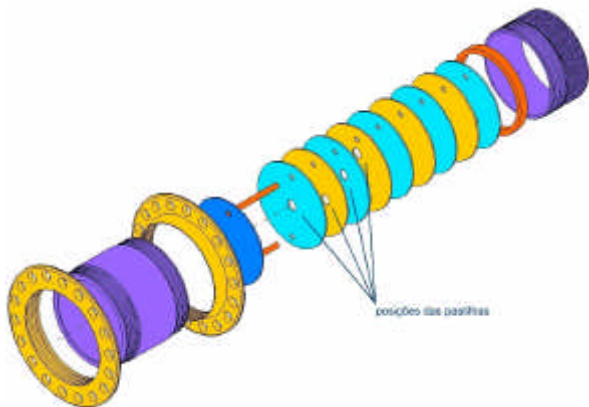


Figura 2. Suporte com arranjo de placas de alumínio.

Para efeito de ilustração, na figura 3 é mostrado o espectro de raios gama de captura produzidos pelo alvo de cromo. Como pode ser visto na figura, o espectro de captura emitido por um alvo i é usualmente constituído por um conjunto de linhas de energia E_{ij} e intensidade I_{ij} . A energia média associada a cada espectro de captura é definida por:

$$E_i = \frac{\sum_{j=1}^{N_i} E_{ij} I_{ij}}{\sum_{j=1}^{N_i} I_{ij}}, \quad (1)$$

onde N_i é o número de linhas do espectro de captura do alvo i .

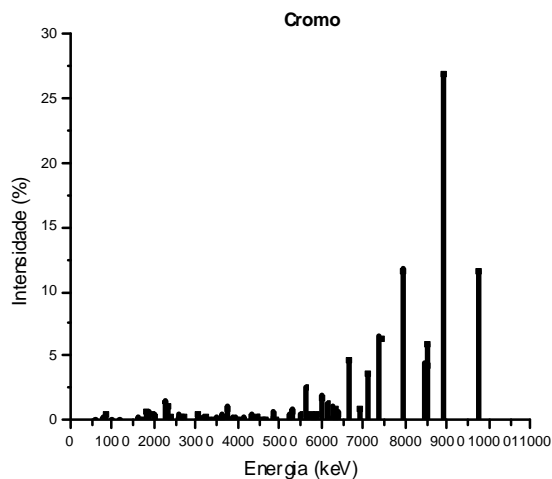


Figura 3. Espectro de raios gama de captura de nêutrons térmicos emitido pelo alvo de cromo.

Antes das irradiações, as pastilhas dosimétricas foram submetidas a um tratamento térmico a 300 °C por 13h, para remoção do sinal termoluminescente (TL) proveniente das irradiações anteriores. As curvas de emissão TL das pastilhas irradiadas foram obtidas em uma leitora modelo 2800M da VICTOREEN, com um pré-aquecimento de 65 °C seguido de um aquecimento a taxa de 7°C/s para um ciclo de 45s. A prancheta suporte das

pastilhas foi submetida a um fluxo de nitrogênio de aproximadamente 400ml/min durante as medidas.

O espectro de carga coletada pela fotomultiplicadora em 450 canais (carga versus tempo de aquecimento) foi armazenado na memória da leitora e transferido para um microcomputador para posterior análise. A dose absorvida em cada pastilha foi obtida por meio do ajuste de uma função gaussiana ao pico principal do espectro de emissão TL, conforme ilustrado na figura 4. O fator de calibração (dose absorvida em função da área do pico) foi determinado para cada pastilha dosimétrica em um campo conhecido de radiação gama produzido pelo ^{60}Co [9].

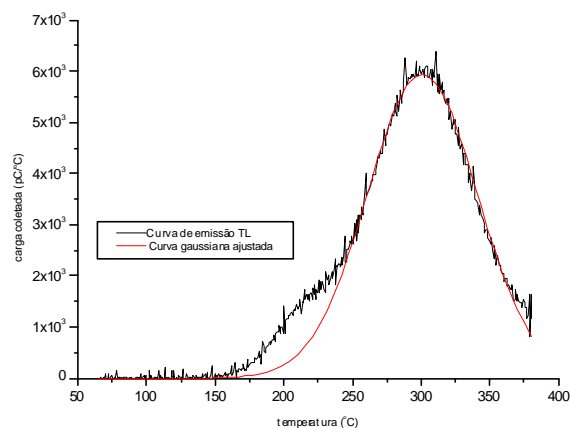


Figura 4. Espectro de emissão TL com gaussiana ajustada ao pico principal.

III. RESULTADOS

Foram medidos os perfis da distribuição de dose no alumínio, na direção de propagação do feixe gama, para os 23 alvos de captura de nêutrons térmicos listados na tabela 1. Aos dados experimentais foi ajustada, pelo método dos mínimos quadrados, a seguinte expressão semi-empírica para a dose absorvida (d) em função da espessura (x) de alumínio:

$$d = d_0 + (d_1 - d_0)(1 - e^{-m_1 x})e^{-m_2 x}, \quad (2)$$

onde o termo $(1 - e^{-m_1 x})$ está relacionado ao crescimento (“build-up”) de partículas próximo à superfície do material. O termo exponencial $e^{-m_2 x}$ corresponde à atenuação do feixe primário, sendo m_1 o coeficiente de atenuação para fótons no alumínio na energia média E_i de cada espectro de raios gama de captura.

Para cada ajuste foram fixados o coeficiente m_1 e o termo d_0 correspondentes ao coeficiente de atenuação do fluxo de fótons no alumínio e ao valor experimental da dose registrada pelo dosímetro não blindado ($x=0$), respectivamente. Os outros parâmetros (d_1 e m_2) foram deixados livres para o ajuste.

Na figura 5 é apresentado o perfil de dose obtido no alumínio para o espectro de captura produzido pelo alvo de

chromo, juntamente com o ajuste da expressão 2 realizado aos dados experimentais.

A espessura de equilíbrio de partículas carregadas (ETPC), para cada espectro de captura, foi obtida

igualando-se a zero a primeira derivada de cada função ajustada e os resultados são listados na tabela 1.

TABELA 1 – Coeficientes do ajuste da função semi-empírica para cada alvo utilizado.

Alvo	Energia Média (keV)	d_0 (mGy/SPND)	d_1 (mGy/SPND)	m_1 (mm ⁻¹)	m_2 (mm ⁻¹)	ETPC (mm)
In	3275,16	0,068	0,3348 ± 0,0021	0,298 ± 0,086	0,00917	11,8 ± 3,4
Sm	3558,80	0,085	0,3332 ± 0,0056	0,505 ± 0,052	0,00883	8,04 ± 0,83
Yb	3964,84	0,120	0,5098 ± 0,0049	0,512 ± 0,029	0,00841	8,06 ± 0,46
Na	4082,49	0,026	0,1518 ± 0,0018	0,348 ± 0,019	0,00831	10,79 ± 0,61
K	4184,01	0,058	0,458 ± 0,016	0,325 ± 0,050	0,00823	11,4 ± 1,8
Hf	4247,57	0,136	0,5339 ± 0,0066	0,386 ± 0,026	0,00818	10,05 ± 0,68
C	4496,88	0,0055	0,01688 ± 0,00055	0,406 ± 0,082	0,00798	9,7 ± 2,0
S	4503,77	0,060	0,333 ± 0,012	0,323 ± 0,056	0,00798	11,5 ± 2,0
Si	4682,59	0,022	0,1493 ± 0,0013	0,2711 ± 0,0097	0,00786	13,16 ± 0,49
Mn	5395,54	0,251	1,316 ± 0,024	0,261 ± 0,020	0,00744	13,8 ± 1,1
Y	5399,82	0,041	0,2530 ± 0,0032	0,266 ± 0,014	0,00744	13,56 ± 0,74
Al	5433,17	0,059	0,3387 ± 0,0028	0,2634 ± 0,0092	0,00742	13,66 ± 0,49
Ti	5582,88	0,133	1,692 ± 0,027	0,265 ± 0,016	0,00735	13,62 ± 0,84
Be	5617,03	0,0021	0,01107 ± 0,00054	0,301 ± 0,068	0,00733	12,4 ± 2,9
Se	5869,26	0,26	1,477 ± 0,019	0,285 ± 0,016	0,00722	12,97 ± 0,75
V	5911,04	0,152	1,076 ± 0,015	0,210 ± 0,015	0,00721	16,2 ± 1,1
N	5921,91	0,0124	0,0690 ± 0,0012	0,276 ± 0,020	0,00720	13,32 ± 0,99
Zn	5983,07	0,0918	0,5583 ± 0,0054	0,2479 ± 0,0098	0,00718	14,40 ± 0,58
Fe	6643,09	0,102	0,686 ± 0,011	0,211 ± 0,013	0,00694	16,3 ± 1,1
Cu	6907,32	0,129	0,783 ± 0,021	0,210 ± 0,021	0,00686	16,5 ± 1,7
Pb	7337,44	0,0043	0,02905 ± 0,00069	0,194 ± 0,017	0,00673	17,5 ± 1,5
Cr	7376,13	0,215	1,842 ± 0,029	0,1743 ± 0,0093	0,00672	18,9 ± 1,1
Ni	7850,02	0,184	1,235 ± 0,030	0,162 ± 0,013	0,00661	20,0 ± 1,7

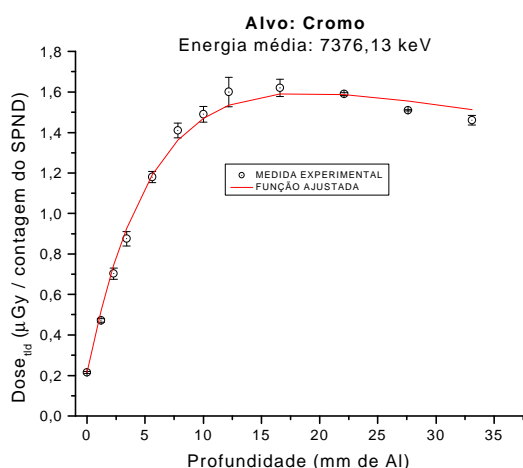


Figura 5. Perfil de dose no alumínio para o espectro de captura do alvo de cromo.

aos dados experimentais em função da energia média associada a cada espectro de captura são mostrados na figura 6. Nessa figura são também apresentadas a curva do alcance CSDA ('continuous slowing down approximation') $R(E)$ e a do alcance corrigido, $X(E)$, definido pela seguinte expressão [9]:

$$X(E) = R(E) e^{m(E)R(E)} \quad (3)$$

onde E é a energia máxima do elétron (admitida como sendo igual à energia média do feixe gama), e $m(E)$ é o coeficiente de atenuação dos fótons de energia E no alumínio. Os valores de $R(E)$ e $m(E)$ foram extraídos da referência 10.

Os valores da espessura de equilíbrio de alumínio (ETPC) determinados a partir dos ajustes do perfil de dose

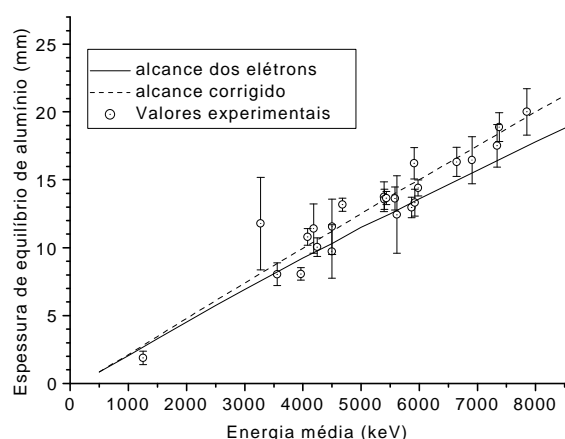


Figura 6. Espessura de ETPC em função da energia média do espectro gama.

Na expressão (3), o termo exponencial corresponde à mesma correção, associada à atenuação do feixe gama no material, sugerida por *Roesch* [5] no cálculo da dose absorvida, para espessuras maiores ou iguais à ETPC. Conforme pode ser observado na figura 6, esta correção se torna mais significativa com o aumento da energia do feixe.

Na tabela 2 são apresentados os resultados do teste de qui-quadrado aplicado ao alcance CSDA ($R(E)$) e ao alcance CSDA corrigido ($X(E)$). Tais resultados indicam que existe uma melhor consistência de $X(E)$ com os dados experimentais, podendo assim ser admitida esta função como sendo uma razoável aproximação para descrição da ETPC, em função da energia da radiação gama, à um nível de confiança de 99%.

TABELA 2 – Resultados do teste de qui-quadrado aplicado ao ajuste de $R(E)$, alcance CSDA, e $X(E)$, alcance CSDA corrigido, aos dados experimentais, com 23 graus de liberdade.

Função	Qui-quadrado	Probabilidade de excesso do qui-quadrado (%)
$R(E)$	69,8	0
$X(E)$	40,4	1,5

IV. CONCLUSÕES

As medidas experimentais do perfil de dose no alumínio para radiação gama com energias médias no intervalo entre 3275 a 7850 keV, indicam que a espessura de equilíbrio de partículas carregadas (ETPC), cresce com a energia da radiação gama segundo o alcance CSDA corrigido, calculado para elétrons com energia igual à energia média do espectro gama.

Considerando que a relação entre o fluxo de raios gama e a dose absorvida é analiticamente definida somente

em condições de equilíbrio eletrônico, a função $X(E)$ permite um dimensionamento adequado das camadas de equilíbrio a serem utilizadas na confecção de um dosímetro, para o intervalo de energia média estudado neste trabalho. Por outro lado, uma medida da ETPC permite uma boa estimativa da energia média de um campo de radiação gama desconhecido e, conseqüentemente, o cálculo da dose absorvida.

V. REFERÊNCIAS

- [1] MAHESH K.; WENG P.S.; FURETTA C. **Thermoluminescence in Solids and its Applications**, Nuclear Technology Publish., Ashford, 1989.
- [2] LOBDELL, J. L.; and HERTEL, N. E.: Gamma-ray dose rate measurements at a boiling water reactor, **Rad. Prot. Dos.**,74(1997)163-171.
- [3] ANGELONE M.; BATISTONI, P.; PILLON, M.; RADO, V. and ESPOSITO, A.: Gamma and neutron dosimetry using $\text{CaF}_2:\text{Tm}$ thermoluminescent dosimeters for fusion reactor shielding experiments, **Nucl. Sci. Eng.**,126(1997)176-186.
- [4] ANGELESCU, T.; GHIORDANESCU, N.; BALTATEANU, N.; LABAU, V. and VASILESCU, A.: Intercomparison of photon dose measurements at the 8 MeV electron accelerator, **Nucl. Instr. and Meth.**,B-132(1997)193-198.
- [5] ATTIX, F. H.; **Introduction to Radiological Physics and Radiation Dosimetry**, Wiley-Interscience, 1986.
- [6] SEMMLER, R. and GERALDO, L. P.: A new experimental apparatus for production and utilization of capture gamma rays, **Nucl. Instr. Meth.**,A-336(1993)171-175.
- [7] CAMPOS, L. L.: Determination of TL parameters of $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ produced at Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), **Appl. Radiat. Isot.**,39(1988)233-236.
- [8] GONÇALEZ, O. L.: **Fotoprodução de nêutrons no ^{232}Th e ^{238}U com radiação gama de captura de nêutrons térmicos no intervalo de energia entre 5,61 e 10,82 MeV.**, Tese de Doutorado, IPEN/USP, São Paulo, 1998.
- [9] FEDERICO, C. A.: **Medida do perfil de dose no alumínio irradiado com raios gama de captura de nêutrons térmicos utilizando o dosímetro termoluminescente $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$** , Dissertação de Mestrado, IPEN/USP, São Paulo, 2002.

- [10] HUBBEL, J. H.; S. M. SELTZER; Tables of X-Ray Mass Attenuation Coefficients and Mass Energy-Absorption Coefficients 1 keV to 20 MeV for Elements Z=1 to 92 and 48 Additional Substances of Dosimetric Interest. **NISTIR 5632**, 1995.

ABSTRACT

In this work the experimental results of the absorbed dose profile measurements for an aluminum sample irradiated by collimated beams of thermal neutron capture gamma rays are presented. The gamma radiations

were produced by 23 appropriated capture targets in the tangential beam hole of the IPEN-CNEN/SP IEA-R1 (2MW) research reactor. The charged particle transient equilibrium (CPTe) thickness was obtained from the analysis of the dose profile for each gamma ray capture spectrum. The results are compared with the CSDA electron range, calculated at the maximum electron energy produced by the gamma radiation. A semi-empirical correction applied to the CSDA electron range is suggested for fitting the CPTe thickness as a function of the mean energy of the capture gamma-ray spectrum in the interval from 3275 to 7850 keV.