**UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO
INSTITUTO DE FÍSICA**

**PROPRIEDADES TERMOLUMINESCENTES DE LiF
DOPADOS COM Cu e/ou Mg**

SBI-IFUSP

305M810T1763

Agnes Maria da Fonseca Fausto

Dissertação apresentada ao Instituto de Física da Universidade de São Paulo para obtenção do título de mestre.

Orientadora: *Profa. Dra. Emico Okuno*
Laboratório de Dosimetria - IFUSP

Revisado
W. Caldas
M. Regina Kuen

**Dezembro
1990**

Dfesa: 17/12/90

539.722

F268 P

M

e.1

FICHA CATALOGRÁFICA

Preparada pelo Serviço de Biblioteca e Informação
do Instituto de Física da Universidade de São Paulo

Fausto, Agnes Maria da Fonseca

Propriedades termoluminescentes de LiF do-
pados com Cu e/ou Mg. São Paulo, 1990.

Dissertação (Mestrado) - Universidade de
São Paulo. Instituto de Física. Departamento
de Física Nuclear.

Área de Concentração: Física Nuclear

Orientador: Profª Drª Emico Okuno

Unitermos: 1. Dosimetria termoluminescen-
te; 2. LiF(Mg, Cu); 3. Termoluminescência;
4. Dosímetro.

USP/IF/SBI - 51/90

Agradecimentos,

à Profa. Dra. Emico Okuno, pela orientação deste trabalho, pela sua constante preocupação pedagógica e, principalmente, por saber equilibrar o trabalho científico sério com um grande humanismo;

a todos que trabalham no Laboratório de Dosimetria, especialmente pelo clima familiar que existe no dia-a-dia;

ao Serviço de Engenharia, Segurança e Medicina do Trabalho (SESMT), pelo apoio e incentivo de todos a este trabalho;

aos bons amigos, que desde o início encontrei na USP;

à Adriana e ao Beto, pela velha grande amizade;

à minha família, pela experiência de vida que sempre me ofereceram;

ao Anderson, pelo amor, carinho, apoio, jeito, modo e forma bonita que imprime à minha vida;

ao Chubaci, pela inestimável ajuda na impressão deste trabalho;

à equipe de desenho do Instituto de Física, pelo esmero nas figuras e

ao CNPq pelo apoio financeiro.

RESUMO

Foi pesquisada a termoluminescência (TL) do LiF dopado com diversas concentrações de Mg e/ou Cu. O efeito do tratamento térmico em cada ciclo (recozimento, irradiação com raios gama e leitura) foi estudado para cinco ciclos sucessivos. Três diferentes tratamentos térmicos foram pesquisados: 230°C - 10 min, 400°C - 1h e 400°C-1h + 100°C-2h. Este último foi o tratamento utilizado em todas as amostras para o resto do trabalho, pois provocou o aparecimento de um único pico (IV_g) na curva de emissão na temperatura de $(242 \pm 4)^\circ\text{C}$, com sensibilidade razoável, para amostras dopadas com Mg ou Mg + Cu, expostas aos raios gama.

As curvas de emissão de todas as amostras foram analisadas quanto à sensibilidade TL e temperatura de máximo dos picos, após uma exposição com 0,26 mC/kg de raios gama ou com $0,4 \text{ J/cm}^2$ de radiação ultravioleta ou ainda após as duas exposições anteriores consecutivamente. Para as exposições citadas, de um modo geral, o pico a $(242 \pm 4)^\circ\text{C}$ devido aos raios gama é bem mais alto que os picos a $(102 \pm 3)^\circ\text{C}$ e $(168 \pm 4)^\circ\text{C}$ resultantes da iluminação com os raios ultravioleta. Foi constatado que nessas amostras a radiação ultravioleta preenche as armadilhas diretamente, sem promover a foto-transferência de portadores de carga de armadilhas profundas, preenchidas após exposição à radiação ionizante, para as mais rasas. Além disso os dois tipos de radiação preenchem preferencialmente armadilhas com profundidades diferentes. Esses fatos nos permitem propor o uso do LiF dopado com 0,1 ou 0,2 mol% de Mg com 0,03 mol% de Cu entre as amostras estudadas para fins de dosimetria da radiação gama e ultravioleta simultaneamente.

O efeito das impurezas de Mg e Cu na sensibilidade do LiF à radiação gama foi estudado, através de uma análise empírica, ajustando uma curva às alturas do pico IV_g de todas as amostras. Dessa análise é possível concluir que se o LiF for dopado somente com Mg ele pode atingir uma grande sensibilidade à radiação ionizante sendo, porém, muito crítica a concentração de Mg para a obtenção da sensibilidade máxima. Essa situação crítica pode ser contornada com a adição de Cu que desempenha, de uma certa forma, o papel de desativador diminuindo a proporção dos Mg responsáveis pela TL.

ABSTRACT

Thermoluminescence (TL) of LiF doped with different concentrations of Mg and/or Cu has been investigated. The effect of the thermal treatment on the crystals in each cycle (annealing, gamma ray exposure and readout) was studied for five successive cycles. Three different thermal treatments were examined: 230°C for 10 min, 400°C for 1h and 400°C for 1h followed by 100°C for 2h. LiF doped with Mg or Mg + Cu submitted to the last quoted thermal treatment and irradiated with ^{137}Cs gamma rays showed a reasonable sensitivity and glow curve with only one peak (IV_g) at $(242\pm4)^\circ\text{C}$. From these data, this annealing was adopted for all samples.

TL sensitivity and glow peak temperatures for all available samples exposed to 0,26 mC/kg of gamma rays or 0,4 J/cm² of UV or to both radiations consecutively were also analysed. The glow peak due to gamma rays appears at $(242\pm4)^\circ\text{C}$ and is higher than the peaks at $(102\pm3)^\circ\text{C}$ and $(168\pm4)^\circ\text{C}$ due to UV light. It has been shown experimentally that UV radiation fills directly the traps, producing no phototransference of charge carriers from deep traps, filled by ionizing radiation, to the shallow ones. Furthermore, each radiation, gamma or UV, fills different depth traps preferentially. These characteristics show the potential usefulness of LiF:Mg,Cu in gamma and UV radiation dosimetry simultaneously. The best choice amongst all the analysed samples is LiF doped with 0,1 or 0,2 mol% of Mg and 0,03 mol% of Cu.

Also the influence of dopants (Mg and Cu) on the TL sensitivity of LiF to gamma rays was investigated performing an empirical analysis. An excellent fit between the experimental data and a mathematical relation was obtained. From this study it was possible to conclude that if LiF has only Mg as impurity, its glow curve can exhibit a high sensitivity to ionizing radiation, being however the maximum sensitivity extremely dependent on the Mg concentration. This fact can be avoided adding small quantity of Cu, which behaves as a poisoner, decreasing the quantity of Mg responsible for TL signal.

CAPÍTULO 4	COMPORTAMENTO DOS LiF(s) QUANDO EXPOSTOS À RADIAÇÃO GAMA OU ULTRAVIOLETA.....	40
4.1.	Resposta TL dos LiF: Mg,Cu expostos à radiação gama.....	40
4.1.a.	Análise das temperaturas dos picos.....	47
4.1.b.	Discussão e conclusões.....	49
4.2.	Resposta TL dos LiF: Mg,Cu expostos à radiação ultravioleta (UV).....	53
4.2.a.	Curva da resposta TL em função da exposição radiante.....	62
4.2.b.	Análise das temperaturas dos picos.....	66
4.2.c.	Discussão e conclusões.....	68
CAPÍTULO 5	COMPORTAMENTO DOS LiF(s) QUANDO EXPOSTOS À RADIAÇÃO GAMA E A SEGUIR À RADIAÇÃO ULTRAVIOLETA.....	73
5.1.	Resposta TL dos LiF: Mg,Cu expostos à radiação gama e a seguir expostos à radiação UV.....	73
5.1.a.	Análise das temperaturas dos picos.....	80
5.2.	Discussão e conclusões.....	82
5.2.a.	Comparação das temperaturas dos picos TL.....	82
5.2.b.	Comparação das alturas dos picos TL.....	85
5.2.b.I.	Amostras dopadas com Mg ou Mg + Cu.....	85
5.2.b.II.	Amostra S_{00} e as dopadas só com Cu.....	90
CAPÍTULO 6	ANÁLISE EMPÍRICA DO EFEITO DAS IMPUREZAS DE Mg E Cu NA SENSIBILIDADE DAS AMOSTRAS IRRADIADAS COM OS RAIOS GAMA.....	93
CAPÍTULO 7	CONCLUSÕES GERAIS.....	101
7.1.	Conclusões.....	101
7.2.	Sugestões para futuros trabalhos.....	108

CAPÍTULO 1

INTRODUÇÃO

Ao expormos um cristal iônico a uma radiação ionizante, parte de sua energia é armazenada no cristal. Quando ele é aquecido desde a temperatura da irradiação, no nosso trabalho, à temperatura ambiente, a energia armazenada pode ser liberada sob a forma de luz. O sólido que emite fótons dessa forma recebe o nome de fósforo termoluminescente ou simplesmente fósforo, e o fenômeno é denominado TERMOLUMINESCÊNCIA (TL). A TL também pode ser induzida no fósforo por outros agentes, tais como campos elétricos ou pressões elevadas.

Esse fenômeno já havia sido observado em 1663 por Boyle em diamantes e em fluoritas porém só na década de 1950(CAM-68) um grupo de pesquisadores desenvolveu a instrumentação necessária e começou a utilizar a TL como dosímetro de radiação. As primeiras aplicações da dosimetria TL (TLD-Termoluminescent Dosimeter) foram realizadas utilizando-se o fluoreto de lítio (LiF), para medir a dose de radiação após os testes com a bomba atômica e em pacientes "in vivo" depois de receber uma dose terapêutica com ^{131}I . O uso de dosímetros TL cresceu rapidamente devido às vantagens que oferece comparado a outras técnicas de medida das radiações.

No Brasil, o estudo da TL de fósforos, principalmente de cristais naturais brasileiros, teve início em 1968 com a liderança de um grupo pelo Prof. S. Watanabe. Desde então muitos trabalhos foram realizados e a fluorita de Criciúma é hoje utilizada na monitoração rotineira de trabalhadores expostos à radiação ionizante. Algumas teses defendidas por elementos do grupo foram usadas para o estudo básico da TL (WAT-69), (MOR-70), (OKU-71), (CRU-72), (CAL-73), (BLA-73), (ZAN-72), (YOS-80) e (TRZ-85).

1.1. Modelo simples de termoluminescência

Uma teoria físico-química que explica a base de funcionamento dos dosímetros TL ainda não é completamente conhecida, mas existe um modelo simples, qualitativo que emprega o conceito de bandas nos sólidos com relação aos seus níveis de energia eletrônicos. Esse modelo leva em conta a existência de defeitos e impurezas nos cristais iônicos e pode ser entendido observando-se a figura 1.1.

- Na figura 1.1.a está representado o diagrama de níveis de energia de um cristal isolante durante uma exposição à radiação ionizante que libera elétrons da banda de valência. Esses atingem a banda de condução deixando os respectivos buracos (0) na banda de valência. A seguir, tanto os elétrons quanto os buracos se movem dentro do cristal até se recombinarem ou cada um deles pode ser capturado em estados metastáveis existentes no cristal. Esses estados metastáveis, chamados ARMADILHAS, estão associados à presença de uma impureza ou de um defeito na rede cristalina, modificando-a localmente, criando poços de potencial local e levando ao aparecimento de níveis de energia dentro da faixa proibida.

- Na figura 1.1.b está representado o passo seguinte em que o elétron capturado permanece na armadilha até o momento em que recebe energia térmica suficiente para vencer a barreira de potencial local e tornar-se "livre" novamente, indo então para a banda de condução. Esse elétron "livre" pode ser recapturado por alguma armadilha ou então sofrer uma recombinação com um buraco capturado, emitindo assim um fóton de luz. Caso os buracos capturados sejam menos estáveis que os elétrons armadilhados, eles poderão ser liberados primeiro. Esses buracos capturados obedecem a um mecanismo análogo ao descrito para o elétron (fig. 1.1.c). Como as possibilidades de liberação dos elétrons ou dos buracos armadilhados são equivalentes fica mais conveniente considerar apenas o caso da fig. 1.1.b, ou seja, da liberação do elétron. A profundidade da armadilha está relacionada com a energia E necessária para liberar o elétron da armadilha que pode ser fornecida sob forma de calor.

Figura 1.1. Diagrama esquemático dos níveis de energia de um cristal isolante, com representação do fenômeno da TL.

Um processo alternativo é a recombinação do elétron ou do buraco capturado com um centro de recombinação ou de luminescência. Na prática, quando um cristal é exposto à radiação ionizante, muitos elétrons são liberados da banda de valência e são armadilhados. Quando o cristal é aquecido, a probabilidade de recombinação do elétron-buraco ou do elétron com um centro de luminescência, ou ainda do buraco com um centro de luminescência, aumenta. Isso explicaria porque a luz TL emitida começa com uma intensidade pequena, apresenta um máximo e decresce até zero. O gráfico da intensidade TL em função do tempo de aquecimento ou da temperatura recebe o nome de curva de emissão e o máximo atingido é chamado altura do pico de emissão TL.

A vida-média de um elétron em uma armadilha é expressa teoricamente por:

$$\tau^{-1} = s \cdot e^{-\left[\frac{E}{(kT)}\right]} \quad (1.1)$$

onde:

E - é a energia de profundidade da armadilha tendo por referência a banda de condução.

T - é a temperatura do fósforo em Kelvin (K).

k - é a constante de Boltzmann.

s - é uma constante para cada centro, conhecida como fator de frequência.

A luz emitida pelo fósforo (TL) depende dessa vida-média, tendo uma intensidade fraca quando se inicia o aquecimento. À medida que a temperatura de aquecimento vai aumentando, a vida-média diminui e a luz TL vai aumentando até atingir um máximo para decrescer em seguida. A existência do máximo é explicada supondo-se que há um número limitado de elétrons capturados devido à irradiação, que podem ser liberados pelo aquecimento. Isto também explica porque um segundo aquecimento do mesmo material, realizado logo após o primeiro, não libera mais luz, pois não haveria mais cargas capturadas.

A TL emitida por um fósforo pode ser estudada através da observação das curvas de emissão. Ela depende do fósforo particular utilizado, do tipo e da exposição à radiação incidente, das histórias térmicas e radioativas do fósforo.

Em geral, nos cristais existem conjuntos de armadilhas com profundidades diferentes e a curva de emissão apresenta, portanto, vários picos TL. Muitas vezes nem todos os picos são identificados se a diferença de energia entre as armadilhas for muito pequena ou se for utilizada uma taxa de aquecimento do cristal muito grande. Se a profundidade da armadilha E for menor que 0,8 eV, muitos elétrons armadilhados poderão ser liberados à temperatura ambiente.

1.2. Considerações gerais

Hoje em dia é necessário e fundamental se efetuar uma medição precisa da radiação ionizante em ambientes distintos para evitar os possíveis efeitos biológicos danosos. Por causa disso, o desenvolvimento de dosímetros capazes de medir a dose absorvida pelo tecido humano, normalmente submetido a vários campos distintos de radiação (gama, X, beta, neutrônica) e com boa precisão para as baixas doses é muito importante. Essa necessidade tem sua origem com a crescente utilização da radiação na indústria e na Medicina, pois o conhecimento dos possíveis riscos envolvidos nas curtas ou longas exposições à radiação se transformou em uma questão de saúde pública. O princípio ALARA, sigla de "as low as reasonably achievable", adotado pela Comissão Internacional de Proteção Radiológica (ICRP) em 1977(ICRP-26) especifica que qualquer exposição à radiação deve ser tão baixa quanto razoavelmente exequível, levando em conta fatores econômicos e sociais(OKU-88), além de que ela deve ser sempre justificada com algum benefício líquido. Sua aplicação no dia-a-dia necessita de medições e controle de exposições o mais preciso possível.

Entre os sistemas e metodologias dosimétricas usuais o dosímetro termoluminescente (TLD) oferece uma grande variedade de aplicações, como por exemplo:

- a) Dosimetria do meio ambiente - o controle da radiação ambiental e a medição da exposição à radiação nas

regiões próximas às instalações nucleares (usinas nucleares, aceleradores de partículas, etc.) e nos casos de acidentes que espalham material radioativo pelo meio ambiente como ocorreu em Windscale (1957), Three Mile Island (1979), Chernobyl (1986) ou em Goiânia (1987).

- b) Dosimetria Pessoal - a necessidade de dosímetros sensíveis nessa aplicação é muito grande, pois o número de trabalhadores com radiação nas instalações nucleares, nas indústrias que utilizam radiação, nos hospitais, nas unidades de radioterapias, de radiologia, de medicina nuclear, nos consultórios, nos centros de pesquisas em universidades ou indústrias é muito grande.
- c) Dosimetria Clínica - nessa aplicação os TLDs são particularmente muito úteis pela grande versatilidade. Eles podem ser confeccionados de diversas formas, possibilitando a sua inserção dentro do corpo do paciente durante as exposições. Dessa maneira pode-se monitorar quase diretamente a dose aplicada ao paciente no local de interesse (dosimetria "in vivo"), ou efetuar medições "in vivo" em outras regiões durante a exposição, como por exemplo, nos olhos. A irradiação de fantomas com dosímetros TLD no seu interior para simulações é muito usada.

O dosímetro de LiF(Mg,Ti), chamado TLD-100, é produzido pela Harshaw Chemical Co. e é considerado padrão por ser equivalente ao tecido humano, além de apresentar características dosimétricas bastante estáveis. Entretanto possui alguma inconveniência, sendo uma delas relacionada as medições de exposições menores que $1 \mu\text{C/kg}$ (5 mrem), e uma outra para nós é a necessidade de importação, além de seu preço elevado. Assim, o desenvolvimento de novos materiais TL para aplicação na dosimetria da radiação ionizante tem tido muita im-

portância, pois sua aplicação seria imediata. Na opinião do Prof. Horowitz(HOR-90) surgiram dois novos materiais bastante promissores: o LiF(Mg,Cu,P) e $\text{ALFA-AL}_2\text{O}_3\text{:C}$, que foram temas de diversas discussões na última "International Conference on Solid State Dosimetry" em Viena (1989).

Os primeiros a publicar informações sobre o LiF(Mg,Cu,P) foram os cientistas japoneses(NAK-78) e a comercialização deles foi feita pela Memoto Tokushu Hagaku Co. Também a Harshaw Chemical Company pesquisou esse material. Grupos na China(WU-84) relataram o crescimento do LiF(Mg,Cu,P) em forma de pó, estável e muito sensível. Esse grupo e outro em Beijing (Radiation Detector Works), o qual está comercializando esse material em forma de pastilha, continuam pesquisando nessa direção. Cientistas da Ben Gurion University de Negev também estão estudando as propriedades do LiF(Mg,Cu,P) e a sua aplicação dosimétrica. O intenso interesse nesse material é evidente, podendo ser comprovado pelo número de publicações descrevendo pesquisas para caracterização desse material e suas propriedades TL (NAK-78); (NAK-79); (SHA-82); (SHA-83); (DEW-83); (WU-84); (SHO-86) e (BOS-88). Apesar de muitos estudos que estão sendo feitos por pesquisadores de diferentes laboratórios do mundo todo, ainda existem questões relacionadas ao tratamento térmico antes da exposição, à perda de sensibilidade TL com a reutilização e à mudança na estrutura da curva de emissão. Questões estas, que ainda precisam ser resolvidas.

O grande interesse com o LiF é evidente, haja visto que só na seção de "características dos materiais" do "9th International Conference on Solid State Dosimetry, que se realizou em Viena em 1989, foram apresentados 50 painéis. Desses, 14 se relacionavam diretamente com o LiF dopado com Ti, Mg e Ti, Mg, Cu e P, Mg e Cu. Outros trabalhos tratavam dos diversos materiais, entre eles: $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$, $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7\text{:Mn}$, $\text{Mg}_2\text{SiO}_4\text{:Tb}$, $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$, CaF_2 , KMgF_3 , $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy}$, $\text{LaCl}_3\text{:Tr}$, MgO , CaCO_3 , BeO , quartzo, vidro etc..

Na opinião do Prof. S. W. S. Mckeever(McK-84) o desenvolvimento desses novos materiais é importante, não só pelas suas inúmeras aplicações mas principalmente pelo impacto que causariam, possibilitando estudos ainda não realizados. Ele acredita que só haverá um avanço significativo nos TLDs quando for-

mos capazes de prever o seu comportamento. Para que isso ocorra se faz necessário o estudo básico dos defeitos nos materiais TL.

O LiF pela sua importância como dosímetro da radiação ionizante tem sido muito estudado. As suas propriedades podem ser encontradas em duas resenhas (STO-75) e (JAI-82). Muitos pesquisadores, entre eles McKeever(McK-84), fazem uma tentativa para associar os defeitos existentes nesse material com suas propriedades características TL. Provavelmente, a superação das dificuldades encontradas com o novo material LiF(Mg,Cu,P) venha do estudo do LiF dopado com Mg e Cu, que até hoje não foi muito pesquisado. Encontramos apenas dois estudos publicados utilizando o LiF(Mg;Cu) (BHA-89) e (BHAT-89).

1.3. Objetivos do presente trabalho

Visando conhecer um pouco mais os LiF dopados com Mg e Cu e sua possível aplicação como dosímetro da radiação, estudamos neste trabalho a termoluminescência das 14 amostras de LiF dopadas com diferentes concentrações de impurezas de Mg e Cu, para verificarmos a dopagem ideal.

Em primeiro lugar estudamos os efeitos dos tempos e das temperaturas de tratamento térmico antes de sua colocação em uso, isto é, antes da exposição. A seguir pesquisamos e comparamos para cada amostra, os efeitos da radiação gama. Analisamos também os efeitos da radiação ultravioleta na termoluminescência das amostras não expostas à radiação ionizante para verificar se existe e quanto é a sensibilidade delas a esse tipo de radiação. Finalmente, estudamos os efeitos da radiação ultravioleta em amostras previamente expostas à radiação ionizante, pois se confirmado será preciso um cuidado muito grande no manuseio dos dosímetros em uso rotineiro.

CAPÍTULO 2

MATERIAIS E MÉTODOS EXPERIMENTAIS

2.1. Fósforos termoluminescentes

Neste trabalho utilizamos 14 amostras de fluoreto de lítio (LiF) dopado com diferentes concentrações de Mg e Cu. Na tabela 2.1 está relacionada a denominação dessas amostras com as respectivas concentrações de impurezas Mg e Cu. Elas foram crescidas em laboratório e gentilmente cedidas pelo Prof. Nakajima da Division of Physics, National Institute of Radiological Sciences, Japão. A técnica de crescimento do LiF dopado com diferentes impurezas tais como: LiF(Mg,Cu,P); LiF(Mg,Cu,B) e LiF(Mg,Cu,Si) está descrita na referência NAK-78. O fluoreto de lítio puro existente no mercado é misturado com a água e com os ativadores CuF_2 e MgCl_2 . A esse material adiciona-se ainda ácido bórico, silicato ou fosfato de amônia; a mistura úmida é seca a 80°C durante 4 horas num cadinho de platina e depois sua temperatura é aumentada até 1050°C em atmosfera de nitrogênio, permanecendo durante 30 minutos. A seguir, a mistura é esfriada rapidamente para 400°C e mantida nessa temperatura por 30 minutos. O policristal de LiF obtido por esse processo é pulverizado e peneirado para seleção granulométrica, estando pronto para ser usado. Os LiF(Mg,Cu) utilizados nas nossas experiências estão em forma de pó com a granulação entre 74 e $149\ \mu\text{m}$.

Tabela 2.1. Amostras de LiF(Mg,Cu) com as respectivas concentrações de Mg e Cu.

<div> <div>Cu</div> <div>Mg (mol %)</div> <div>(mol %)</div> </div>	0,0	0,03	0,06	0,12
0,0	S ₀₀	S ₀₁	S ₀₂	S ₀₃
0,1	S ₁₀	S ₁₁	S ₁₂	-
0,2	S ₂₀	S ₂₁	S ₂₂	S ₂₃
0,4	S ₃₀	-	S ₃₂	S ₃₃

Uma análise visual das amostras, à luz natural, indica que: quanto maior a concentração de Cu mais forte é seu tom esverdeado, ou seja, as amostras da 1ª coluna da tabela 2.1 são praticamente brancas, com exceção da S_{30} que é ligeiramente amarela. A seguir vêm as da 2ª coluna, que são um pouco esverdeadas; nela, a S_{01} é a mais esverdeada entre as três. Na direção de fortalecimento do verde temos as amostras da 3ª coluna, onde a S_{32} possui o tom verde mais fraco entre as quatro, intensificando a tonalidade verde de S_{22} , S_{02} para S_{12} . As da 4ª coluna possuem um tom verde-amarelo, sendo a amostra S_{03} a que possui a cor mais forte seguida pela S_{33} e S_{23} .

Também usamos o fluoreto de lítio (TLD-100) produzido pela Harshaw Chemical Company, contendo como impurezas o magnésio e o titânio. Este dosímetro contém o Li na sua proporção isotópica natural (7,5% de ^6Li e 92,5% de ^7Li)(CAM-68) e é encontrado comercialmente sob diferentes formas. Os TLD-100 do presente trabalho foram prensados a quente e são paralelepípedos de $3 \times 3 \times 1 \text{ mm}^3$.

2.2.Tratamentos térmicos

Os tratamentos térmicos foram efetuados no forno da Forlab (de 0° a 1200°C), na estufa da FABBE (de 50°C a 300°C) e num forno montado no Laboratório de Dosimetria do Instituto de Física da USP (LD-USP). Todos eles tiveram suas temperaturas monitoradas mediante o uso de termopares do tipo chromel-alumel. O erro máximo encontrado nas temperaturas foi de $\pm 5^\circ\text{C}$.

As amostras de LiF:Mg,Cu em pó, quando preparadas para os tratamentos térmicos, foram separadas em lotes iguais, com material suficiente para várias leituras TL($\pm 200 \text{ mg}$). Cada lote era envolto em uma fina folha de papel alumínio e levado ao forno ou à estufa conforme o tipo de tratamento a que iria ser submetido. Como as temperaturas e os tempos de tratamentos térmicos das amostras são objeto de estudo da presente pesquisa eles estão descritos no capítulo 3. O resfriamento até a temperatura ambiente sempre foi feito colocando os pacotes de alumínio em contato direto com a placa de Cu, imediatamente após sua retirada do forno. Como esses fósforos apresentam sensibilidade à luz ambiente,

sempre evitamos a incidência direta de luz neles depois dos tratamentos térmicos, durante e após as irradiações, assim como durante o processo de leitura.

Os dosímetros TLD-100 foram sempre submetidos a um mesmo tratamento térmico antes das irradiações que consistia em:

- I. recozimento a 400°C por 1 h no ar, em panela de alumínio;
- II. rápido resfriamento, colocando a panela com a amostra sobre uma placa de cobre e/ou alumínio até atingir a temperatura ambiente;
- III. recozimento a 100°C durante 2 h no ar dentro da panela de alumínio;
- IV. idem procedimento II.

Esse tratamento é utilizado internacionalmente e é também recomendado pelos próprios fabricantes, pois estabiliza a resposta TL dos LiF(s), mantendo a sensibilidade constante, igual a da condição inicial, além de deixar proeminente somente um pico dosimétrico.

2.3. Métodos de irradiação

2.3.a. Irradiações com a radiação gama

Utilizamos a fonte de ^{137}Cs com uma atividade de 374 mCi em 23 de junho de 1983 do Laboratório de Dosimetria da USP (LD-USP). Ela foi aferida pelo método comparativo, irradiando-se LiF(s) (TLD-100 nessa fonte e numa outra de ^{137}Cs do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN.), uma vez que a atividade nominal fornecida pela firma Amersham não foi dada com precisão. Isto foi possível graças à colaboração da Profa. Dra. Linda Caldas. Essa é uma fonte de radiação gama que possui algumas vantagens como fonte de aferição: uma meia-vida longa (30 anos) e emissão gama com energia de 0,662 MeV. O sistema de irradiação do LD possibilita expor simultaneamente várias amostras. A mesa de irradiação possui um tampo de isopor para minimizar a quantidade de radiação espalhada e possui marcas (semi-arcos) em distâncias conhecidas entre 60 e 220 cm da fonte.

Para irradiação com a fonte de ^{137}Cs , os fósforos LiF:Mg,Cu foram colocados em cápsulas cilíndricas de polietileno com 5 mm de diâmetro externo, 1 mm de espessura da parede e 15 mm de comprimento. As cápsulas, por sua vez, foram acondicionadas em saquinhos plásticos pretos, opacos à luz.

Os TLD-100 foram intercalados entre duas placas de lucite de 3 mm de espessura para atingir o equilíbrio eletrônico. O conjunto foi fixado num suporte que, por sua vez, foi colocado sobre o tampo de isopor para exposição, juntamente com as outras amostras, à radiação gama com 0,26 mC/kg (1R).

2.3.b. Irradiação com a radiação ultravioleta (UV)

Como fonte de UV utilizamos uma lâmpada a vapor de mercúrio de alta pressão tipo HPL-N com 400 W da Philips, normalmente utilizada para iluminação pública, porém sem o bulbo externo de vidro. Assim, o que resta da lâmpada é um tubo de descarga de quartzo(PHI-85) encaixado horizontalmente num suporte de alumínio, com possibilidade para regular a distância dele à amostra.

Quando a lâmpada é ligada, a pressão de vapor do mercúrio é baixa e a descarga que percorre o bulbo aparece na cor azul com emissão, no ultravioleta, relativamente alta. À medida que a temperatura aumenta e com ela a pressão do vapor, a irradiação vai se concentrando progressivamente no espectro de linhas da região do visível e surge em pequena proporção uma emissão no contínuo, ocorrendo descarga na cor branca. Depois de 5 ou 6 minutos a lâmpada está em pleno funcionamento com a sua pressão correspondente. A distribuição do espectro de potência de uma lâmpada de mercúrio de pressão média (2-10 atm) no envólucro de quartzo é apresentada na figura 2.1 e consiste no espectro de linhas do mercúrio com alguma irradiação no contínuo(DIF-82). No nosso caso a lâmpada utilizada foi a de alta pressão (10-100 atm) o que acarreta um alargamento no espectro de linhas e um crescimento relativo do contínuo.

Figura 2.1. Espectro de potência de uma lâmpada de mercúrio com pressão média (DIF-82).

Portanto, nesta tese, quando dizemos irradiação com UV está implícito que é irradiação com uma lâmpada a vapor de mercúrio de alta pressão, que sem dúvida, apresenta várias raias espectrais na região do ultravioleta (cerca de 50% da emissão total).

Para a iluminação com UV as amostras foram cuidadosamente espalhadas numa lâmina de vidro que era colocada sobre duas placas, uma de cobre e outra de alumínio. A distância entre a amostra e a lâmpada foi fixa em 10 ou 20 cm. Durante toda a iluminação monitoramos a temperatura da amostra através de um termopar do tipo chromel-alumel ligado ao termômetro digital da ECB-modelo MDT 2000, que possui uma referência interna do 0°C. A temperatura média das amostras durante a irradiação foi de aproximadamente 30°C. A desvantagem desse sistema com relação à fonte de ^{137}Cs é que só é possível irradiar uma amostra de cada vez.

Sempre que o tempo de exposição a UV terminava, a amostra era esfriada rapidamente até a temperatura ambiente, colocando-a em contato com uma placa de Cu. Também tomamos muito cuidado para proteger essas amostras da incidência direta de luz ambiente. O tratamento térmico e os esfriamentos eram feitos no escuro e a iluminação com a lâmpada de mercúrio era feita dentro de uma sala escura. Quando tínhamos que guardar ou transportar a amostra, ela era colocada dentro de um envelope preto, próprio para filme fotográfico.

Medimos a densidade de potência da lâmpada de mercúrio na região do UV nas mesmas condições de iluminação das amostras, colocando-se o sensor exatamente no mesmo lugar das amostras. Para isso utilizamos o radiômetro digital 88 XL da Photodyne Inc., que possui diferentes sensores para cada caso. No nosso trabalho usamos o sensor modelo 450, próprio para medir luz UV.

2.4. Método de leitura da termoluminescência

Para o nosso trabalho utilizamos o sistema de leitura TL montado no LD-USP. Medir a TL emitida por um fósforo resume-se, basicamente, em aquecê-lo sob um detector de luz. No nosso caso usamos uma placa aquecedora constituída de

uma liga de platina que possui uma pequena superfície rebaixada de $6 \times 6 \text{ mm}^2$, sobre a qual colocamos a amostra. Ela está presa a um conjunto que fica hermeticamente vedado à luz durante a leitura. A luz emitida pelo fósforo é detectada por uma válvula fotomultiplicadora modelo EMI nº 9789, devidamente alimentada por uma fonte de alta tensão.

A placa chamada panela é aquecida pela passagem de uma corrente elétrica fornecida por um transformador ou um sistema programador, que permite uma taxa de aquecimento linear ou manter a uma determinada temperatura. Um termopar de chromel-alumel fixo com solda ponta na parte lateral, inferior da panela, e com a referência no gelo fundente, permite a medida da temperatura da panela e o controle do programador. É importante ressaltar que, na realidade, o que se mede é a temperatura da panela, e não a da amostra. A diferença de temperatura entre ambas é tanto menor quanto menor a taxa de aquecimento da panela utilizada e quanto menor a massa da amostra. O programador de temperatura, também montado no LD-USP, possibilita até seis taxas de aquecimento constantes ou estabilizar a temperatura num determinado valor.

No nosso sistema a panela pode ser aquecida até 550°C . À medida que a temperatura dela aumenta, ocorre a emissão de radiação do corpo negro da panela e da amostra. Para evitar que essa emissão atinja a fotomultiplicadora, principalmente em temperaturas altas, foi colocado um filtro entre a amostra e a fotomultiplicadora. No nosso trabalho, a escolha do filtro de luz foi feita tendo em vista dois objetivos:

I. alta transparência à luz na faixa de $3400\text{\AA}$ e $4100\text{\AA}$, pois temos interesse em estudar a emissão dos nossos fósforos TL dentro desses comprimentos de onda. Sabemos pela referência (NAK-78) que o espectro de emissão dos fósforos LiF(Mg,Cu) consiste de dois picos de emissão intensos em $3400\text{\AA}$ e $4100\text{\AA}$;

II. baixa transmissão na região do infravermelho para cortar ao máximo a emissão de radiação térmica da panela.

Analizamos então as curvas de transmitância de vários filtros. Entre eles, optamos pelo KG-1 Schott que transmite entre 65% e 94% na faixa desejada e na que se refere ao infravermelho próximo ele corta no mínimo 40% (figura 2.2). Esse filtro apresenta a mais baixa transmitância na região do infravermelho entre os filtros analisados.

A corrente da fotomultiplicadora é monitorada por um eletrômetro bastante sensível, também montado no IF-USP, e graficada numa registradora ECB modelo RB 102, de dois canais. Simultaneamente registra-se a temperatura da panela, utilizando-se o termopar de chromel-alumel cuja resposta é praticamente linear entre a temperatura ambiente e a máxima utilizada que foi de 400°C.

A garantia de reprodutibilidade do nosso sistema baseia-se no uso de um estabilizador de tensão que alimenta todos os aparelhos. Para observar alguma modificação no ganho do sistema fotossensível, usamos uma fonte de luz padrão encaixada na mesma gaveta onde se encontra a panela, a cerca de 10 cm dela. Esta luz é emitida por uma pinga de aproximadamente 0,5 cm de diâmetro de tinta fluorescente misturada ao rádio radiativo.

Por fim, os componentes básicos necessários para se medir TL estão esquematizados na figura 2.3 (TAK-88).

Figura 2.2. Curva de transmitância do filtro KG-1 utilizado na nossa pesquisa.

Figura 2.3. Esquema de um sistema para leitura TL.

2.4.a. Processo de leitura

Na presente pesquisa era extremamente importante obter curvas TL que pudessem ser reprodutíveis. Por isso tivemos muito cuidado em fixar os fatores que afetavam a forma dessas curvas que são: checagem da leitora, massa da amostra, seu espalhamento na panela, fluxo de nitrogênio gasoso passando pela amostra durante a leitura, tipo de radiação a qual serão expostas as amostras, valor da exposição, tipo de recozimento utilizado e os efeitos espúrios.

Variações na taxa de aquecimento produzem grandes efeitos na curva TL. O mesmo pico TL aparece em temperaturas mais altas à medida que aumentamos a taxa de aquecimento e a sua altura também é alterada. Nas figuras 2.4 e 2.5 podemos observar a variação na altura do pico e o deslocamento da temperatura dele em função da taxa de aquecimento para o LiF TDL-100 e para o fluoreto de cálcio natural de cor verde(OKU-90).

Figura 2.4. Curvas de emissão TL de LiF - TLD - 100 da Harshaw Chemical Co. obtidas com diferentes taxas de aquecimento (OKU-90).

Figura 2.5. Curvas de emissão TL da fluorita verde obtidas com diferentes taxas de aquecimento (OKU-90).

Uma taxa de aquecimento uniforme, reprodutível e relativamente lenta é extremamente conveniente para se comparar curvas de emissão TL. Todas as nossas medidas foram efetuadas usando uma mesma taxa de aquecimento (TA) de: 3,7°C/s. A velocidade de registro, por sua vez, foi fixada em 4 cm/min.

Outro cuidado que tivemos foi com o fenômeno conhecido como TL espúria (CAM-68). Ela corresponde à emissão TL não induzida por radiação ionizante ou UV e cuja origem pode ser mecânica ou química. Quando as exposições recebidas pelos fósforos TL são baixas, que é uma das preocupações do presente trabalho, a TL espúria pode encobrir a emissão TL devido à radiação ionizante ou UV. Sabendo que a leitura em atmosfera de gás inerte, tal como N₂, livre de oxigênio, elimina em grande parte esse problema (SVA-65), mantivemos sempre um fluxo constante de nitrogênio gasoso (N₂) no compartimento que contém a panela. Na figura 2.6 podemos comparar as curvas TL de uma mesma amostra de LiF(Mg,Cu), recozida e lida no ar e na atmosfera de N₂ sem ter sido exposta a nenhum tipo de radiação. Quando a leitura TL foi feita em atmosfera de N₂, não conseguimos registrar nenhum pico TL como era de se esperar. Porém, ao fazermos essa leitura em atmosfera não controlada obtivemos um pico TL espúrio. Esse comportamento foi confirmado em todas as nossas amostras.

Figura 2.6. Amostra de LiF (Mg;Cu) recozida a 400°C - 1h + 100°C - 2h:

a. Lida no ar

b. Lida em atmosfera de N₂

Para os dosímetros em forma de pó, a quantidade de amostra utilizada em cada leitura foi a correspondente ao volume contido em uma pequena concavidade em um bloco cilíndrico de lucite, que equivale a $(31,1 \pm 0,1)$ mg de massa*. A amostra era bem distribuída por toda a superfície da panela, despejando-a cuidadosamente através de um funil, obtendo-se uma fina camada de pó. Os dosímetros TLD-100 eram colocados no meio da panela de leitura com o auxílio de uma pinça. O aquecimento era feito desde a temperatura ambiente até 400°C , enquanto se registrava simultaneamente a curva de emissão TL e a de temperatura da panela. Os fósforos foram sempre lidos em ambiente escuro (cortinas laterais de tecido grosso, preto e teto de plástico vermelho).

Sempre que era obtida uma curva de emissão TL, tomávamos o cuidado de não mexer na gaveta para que a posição da amostra não fosse alterada. Esperávamos que a amostra esfriasse até a temperatura ambiente e reacionávamos o sistema para obter a contribuição da panela na curva de emissão. Graças a esse procedimento conseguimos subtrair essa contribuição para cada curva de emissão TL medida. Com o intuito de agilizar nosso trabalho desenvolvemos um programa para o micro computador Apple II, o qual arquiva curvas, realiza operações de subtração entre elas e efetua mudanças de escalas. A conversão da curva em dados digitais é feita através de uma prancheta eletrônica digitalizadora.

2.5. Determinação dos erros

Os erros que afetam o nosso trabalho experimental podem ser classificados da seguinte forma:

- I. os que afetam a medida de uma emissão TL;
- II. os erros devidos à irradiação.

Os fatores que consideramos responsáveis pelos desvios das nossas medidas de uma emissão TL são:

* média de 20 pesagens

I.a. variação da corrente de aquecimento da panela que provoca alteração na TA do fósforo, que por sua vez acarreta mudanças nas curvas de emissão TL;

I.b. variação na quantidade de fósforo a ser lida nas amostras em pó e diferenças no espalhamento na panela;

I.c. diferença de contato entre a pastilha e a superfície da panela nos dosímetros TLD-100;

I.d. alterações no ganho do sistema fotossensível, produzidas por pequenas variações na alta tensão da fotomultiplicadora;

I.e. variações na quantidade de luz que atinge o fotocatodo na fotomultiplicadora, devido a diferentes caminhos seguidos pela luz desde o fósforo TL até o eletrodo (YOS-80);

II.a. erro na distância entre as amostras e a fonte de irradiação (^{137}Cs e/ou a lâmpada de Hg).

II.b. erro no tempo de irradiação;

II.c. variação na tensão da rede que acarreta variação na intensidade da lâmpada de Hg.

Em nosso trabalho consideramos à priori a homogeneidade do campo de irradiação da fonte de ^{137}Cs , já que essa característica havia sido comprovada por diversas experiências realizadas pelo LD-USP.

Cada cápsula com fósforo nos fornecia 5 leituras sendo em geral cada experiência repetida no mínimo três vezes.

Para minimizar os erros de leitura de uma série de medidas TL, sempre que possível, elas foram realizadas sem interrupções. Caso os períodos de leitura fossem longos, tivemos o cuidado de sempre irradiar, junto com as amostras, LiF(s) TDL-100 e utilizá-los como referência. Uma curva de emissão obtida por nós do LiF TLD-100 (paralelepípedo) está na figura 2.7. Dessa forma, se ocorressem variações no ganho, entre um período de leitura e outro, tínhamos como fazer as correções necessárias. Cumpre mencionar que esse método para verificar variações no ganho era complementar ao da medida da luz padrão.

Figura 2.7. Curva de emissão do LiF TLD - 100 (paralelepípedo), recozido a 400°C - 1h + 100°C - 2h e exposto à radiação gama com 0,26 mC/kg.

A reprodutibilidade entre as diversas séries de medidas que realizamos esteve sempre dentro da faixa de erros de cada leitura. Por isso acreditamos que os erros de leitura são os determinantes na precisão das medidas no nosso trabalho.

Superestimamos o erro de leitura quanto à estimativa do intervalo de incerteza da temperatura (T) do máximo do pico TL, considerando $T = 40^{\circ}\text{C}$ que corresponde à largura da meia altura do pico TL mais largo encontrado nas nossas medidas. Dessa forma, podemos garantir com segurança que a temperatura do pico TL está contida no intervalo considerado. O erro estimado no valor médio da temperatura dos máximos dos picos TL, para cada amostra ou conjunto delas, apresentado nas tabelas está vinculado ao número de medidas efetuadas.

Estimamos para a amplitude ou para a altura do pico TL um intervalo de incerteza ($\pm H$) associado a cada fundo de escala utilizada em nosso eletrômetro. Para o fundo de escala: $1 \times 10^{-7} \text{A}$ o erro $\pm H$, correspondente, estimado no papel da registradora foi de 2 u.a.; para o fundo de escala $1 \times 10^{-6} \text{A}$ foi $\pm H = 0,5$ u.a. e para o fundo de escala $3 \times 10^{-6} \text{A}$ foi $\pm H = 0,2$ u.a. Nos três casos o $\pm H$ considerado inclui o ruído da pena do registrador e as variações nas alturas dos picos encontrados entre as leituras de uma mesma amostra.

CAPÍTULO 3

TRATAMENTOS TÉRMICOS PESQUISADOS

3.1. Tratamentos térmicos

No início do nosso trabalho foi necessário definir o tratamento térmico mais adequado ao qual as nossas amostras seriam submetidas. Desejávamos encontrar um tratamento térmico que esvaziasse as armadilhas correspondentes aos picos de interesse dosimétrico. Na prática, após o recozimento, a amostra não deve apresentar sinal TL residual. Além disso, é desejável que o tratamento térmico adotado, quando possível, provoque o aparecimento de um único pico TL proeminente à temperatura suficientemente alta que não decaia à temperatura ambiente e à temperatura suficientemente baixa para não ser mascarado pela emissão infravermelha da panela. Gostaríamos também de poder reutilizar o mesmo pó diversas vezes, mas isso só é possível se a amostra já utilizada apresentar curva de emissão reprodutível tanto na forma como na sensibilidade, ao ser submetida novamente ao ciclo: recozimento - exposição - leitura TL.

Adotamos como procedimento na nossa pesquisa o seguinte roteiro:

- seleção de uma amostra virgem de cada coluna da tabela 2.1 que foi: S_{30} ; S_{21} ; S_{12} e S_{23} ;
- subdivisão das amostras selecionadas em lotes iguais e um lote de cada amostra constituiu um conjunto de amostras;
- submissão de cada conjunto de amostras sempre ao mesmo tipo de tratamento térmico;
- exposição a 0,26 mC/kg de radiação gama do ^{137}Cs , juntamente com os LiF TLD-100 da Harshaw Chemical Co.;
- leitura TL das amostras irradiadas;
- após a leitura, o conjunto de amostras foi novamente submetido ao mesmo tratamento térmico, irradiado e lido em idênticas condições.

Esse ciclo foi repetido até no máximo cinco vezes para cada conjunto (1º, 2º, 3º, 4º e 5º recozimento). Em todas as etapas do processo guardávamos um pouco de cada amostra para poder acompanhar o que estava ocorrendo. Os fornos utilizados, o método empregado nos diferentes recozimentos, no resfriamento rápido, a exposição à radiação gama, a leitura TL e os cuidados tomados para que não ocorresse incidência de luz sobre as amostras foram os mesmos descritos no capítulo anterior. Essa sistemática no trabalho foi fundamental para poder confrontar os resultados das várias leituras TL. Os tratamentos pesquisados foram:

I. recozimento a 230°C durante 10 minutos no ar;

II. recozimento a 400°C durante 1 hora no ar;

III. recozimento a 400°C durante 1 hora no ar, seguido de recozimento a 100°C durante 2 horas no ar;

3.2. Resultados

3.2.a Tratamento térmico a 230°C - 10 minutos

Não poderíamos ter iniciado por outro tipo de tratamento térmico, pois foi o próprio Prof. T. Nakajima que sugeriu no seu artigo (NAK-78) um recozimento a temperatura inferior a 240°C durante 10 minutos para os LiF dopados com Mg, Cu e mais um terceiro dopante (P ou Si ou B). Optamos então por tentar um tratamento térmico de 230°C durante 10 minutos nas nossas quatro amostras selecionadas.

Na figura 3.1 apresentamos como exemplo três curvas de emissão da amostra S₁₂ recozida a 230°C - 10' e exposta a 0,26 mC/kg de gama: o número do recozimento significa o número de vezes que essa amostra foi submetida a um ciclo. Podemos notar que cada curva de emissão apresenta pelo menos três picos, além do surgimento de mais um pico ao passarmos do 1º para o 2º recozimento. As outras amostras também apresentaram comportamento similar.

Sempre acompanhando a altura do pico que mais se destaca no 1º recozimento montamos a figura 3.2. A temperatura do pico mais alto está na faixa de 170°C a 200°C, para todas as amostras estudadas. Os dados da figura 3.2 parecem

indicar que, dentro dos erros experimentais, a altura do pico analisado parece manter-se constante. Cumpre observar, entretanto, que esse recozimento não é suficiente para esvaziar totalmente as armadilhas correspondentes ao pico de cerca de 230°C que aparece após o 2º ciclo.

Figura 3.1. Curvas de emissão da amostra S₁₂ de LiF recozida a 230°C - 10', exposta a 0,26 mC/kg de radiação gama e aquecida para leitura TL sucessivamente por três vezes.

Figura 3.2. Altura do pico mais proeminente em função do número de recozimentos que a amostra foi submetida. Amostras tratadas a 230°C - 10' e expostas a 0,26 mC/kg de radiação gama.

Para a amostra S_{12} , por exemplo, não foi detectado nenhum sinal TL após o 1º recozimento. Depois do 2º recozimento, porém, antes da 2ª exposição à radiação gama, ao fazermos a leitura TL da amostra encontramos um pico TL residual com aproximadamente 8% da altura do pico após o 2º ciclo. Depois do 3º recozimento, novamente encontramos esse pico TL antes da nova irradiação com 14% da altura encontrada após o 3º ciclo. Esse sinal TL residual, aparentemente acumulativo, foi detectado também em outras amostras. É necessário ressaltar que as alturas do pico da figura 3.2 não foram descontadas a altura do pico residual.

3.2.b. Tratamento térmico a 400°C - 1h

Como os resultados obtidos com o tratamento térmico de 230°C - 10' não satisfizeram as nossas expectativas, principalmente no que se refere à quantidade de picos e ao resíduo cumulativo, resolvemos fazer uma outra tentativa. A opção seguinte recaiu no tratamento térmico de 400°C - 1h.

A escolha de um tratamento tão distinto do anterior teve como principal causa o artigo de S. S. Shastry e outros (SHA-83). Nele, eles relatam a utilização de um LiF semelhante ao nosso: LiF dopado com Cu e Mg e alguns outros dopantes. Esse material ao ser recozido a 450°C - 1h e exposto à radiação gama apresenta um único pico TL, estável, em torno de 200°C. Além disso pode ser reusado com pouca perda da sensibilidade TL desde que se repita o mesmo tratamento térmico.

As curvas de emissão encontradas agora são bem distintas das obtidas após o tratamento de 230°C - 10': em todas as amostras aparece somente um pico TL cujo máximo está na faixa de temperatura entre 200°C e 230°C. Algumas curvas de emissão típicas (da amostra S_{21}) podem ser vistas na figura 3.3.

Na figura 3.4 as alturas do pico TL (u.a.) foram graficadas em função do número de recozimento. Podemos observar que a altura do pico TL para as amostras S_{23} e S_{30} vai diminuindo à medida que o nº de recozimento aumenta; já para a amostra S_{21} , a altura do pico TL cresce com o 2º recozimento para cair com os recozimentos sucessivos. O comportamento do pico TL da amostra S_{12} é mais ir-

regular: aumenta após o 2º recozimento, cai com os recozimentos seguintes e se recupera um pouco com o quinto recozimento.

Figura 3.3. Curvas de emissão da amostra S_{21} de LiF recozida a 400°C - 1h e exposta a 0,26 mC/kg de radiação gama e aquecida para leitura TL sucessivamente por quatro vezes.

Figura 3.4. Altura do pico TL em função do número de recozimentos que a amostra foi submetida. Amostras tratadas a 400°C - 1h e expostas a 0,26 mC/kg de radiação gama.

3.2.c. Tratamento térmico a 400°C-1h + 100°C-2h

Resultados bem interessantes foram obtidos com o tratamento térmico de 400°C - 1h: curvas de emissão com um único pico TL cujo máximo está localizado em uma temperatura adequada para fins dosimétricos. Entretanto, a variação das alturas desses picos com o aumento do n e ciclos nos motivou a tentar outro tratamento. A idéia de acrescentar mais um tratamento térmico de 100°C durante duas horas (100°C - 2h) já tinha sido feito em amostras de LiF(Mg, Cu,P) por Wu DA-KE e outros, (WU-84). Eles observaram uma queda menor na sensibilidade do LiF com a sua reutilização. Assim, para os LiF(Mg,Cu), optamos por testar o tratamento térmico de 400°C - 1h mais o de 100°C - 2h.

Novamente, as curvas de emissão apresentadas pelas amostras com esse tratamento térmico só tinham um pico TL, localizado em uma faixa de temperatura alta (entre 200°C e 250°C). Na figura 3.5 estão algumas das curvas de emissão obtidas para a amostra S_{21} , quando submetida ao ciclo: tratamento térmico de 400°C-1h + 100°C-2h, exposição a 0,26 mC/kg e leitura, cinco vezes. Na figura 3.6 estão registradas as alturas desse pico em função do n^o de recozimento. Nessa figura temos um resultado muito interessante: para todas as amostras, a altura do pico é constante nos dois primeiros recozimentos e cai aproximadamente para a metade no terceiro recozimento. As alturas do pico após o 3º, 4º e 5º recozimento parecem ter se mantido iguais, dentro dos erros experimentais. Não foi observado sinal TL residual entre um ciclo e outro.

Figura 3.5. Curvas de emissão da amostra S₂₁ de LiF recozida a 400°C - 1h + 100°C - 2h e exposta a 0,26 mC/kg de radiação gama e aquecida para leitura TL sucessivamente por cinco vezes.

Figura 3.6. Altura do pico TL em função do número de recozimentos que a amostra foi submetida. Amostras tratadas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e expostas a 0,26 mC/kg de radiação gama.

3.3. Conclusões

O recozimento das amostras a $230^{\circ}\text{C} - 10'$ não é adequado, pois além de propiciar o aparecimento de vários picos TL na curva de emissão, deixa um sinal residual que vai se acumulando.

O tratamento térmico a $400^{\circ}\text{C} - 1\text{h}$ é melhor do que o anterior pois a forma da curva de emissão de todas as amostras testadas não modificou com os vários recozimentos. Além disso, estaríamos trabalhando apenas com um pico TL. Entretanto, há uma queda gradativa na sensibilidade, de um modo geral, com as sucessivas reutilizações.

O 3º tratamento testado de $400^{\circ}\text{C} - 1\text{h} + 100^{\circ}\text{C} - 2\text{h}$ provocou respostas um pouco melhores: um único pico TL, cuja forma se mantém após submissão da amostra a alguns ciclos. Após dois ciclos, sua sensibilidade cai à metade, mas ela ainda continua razoavelmente alta.

Entretanto, para poder garantir as comparações entre as amostras nos estudos dos efeitos das radiações gama e ultravioleta decidimos utilizá-las somente uma vez, recozendo as amostras virgens a $400^{\circ}\text{C} - 1\text{h} + 100^{\circ}\text{C} - 2\text{h}$. Em nenhum momento o mesmo pó de $\text{LiF}(\text{Mg,Cu})$ foi, portanto, reutilizado, isto é, todos os dados apresentados nos capítulos 4 e 5 provêm de amostras virgens, recozidas uma vez, irradiadas e lidas.

CAPÍTULO 4

COMPORTAMENTO DOS LiF(s) QUANDO EXPOSTOS À RADIAÇÃO GAMA OU ULTRAVIOLETA

4.1. Resposta TL dos LiF:Mg,Cu expostos à radiação gama

Para comparar as curvas de emissão, todas as amostras foram irradiadas com raios gama de ^{137}Cs com uma exposição de 0,26 mC/kg e lidas na leitora TL. Na prática todas as leituras foram realizadas 24 h após o término da irradiação, exclusivamente por razões de conveniência do laboratório, uma vez verificado que as curvas de emissão de todas as amostras não apresentavam nenhuma diferença quando lidas logo após o término da irradiação com gama ou 24 h depois.

As amostras dopadas apenas com a impureza de Mg com as concentrações de: 0,1; 0,2 e 0,4 mol% (S_{10} , S_{20} e S_{30}) estão com suas curvas de emissão apresentadas na figura 4.1. Elas nos mostram que a sensibilidade termoluminescente à radiação gama diminui à medida que a concentração de Mg cresce. As alturas do pico das amostras S_{20} e S_{30} (0,2 e 0,4 mol% de Mg) são praticamente iguais, considerando-se o nosso erro de medida, enquanto que a altura do pico da amostra S_{10} é cerca de 16 vezes maior que a das outras duas amostras. As curvas de emissão das amostras com concentração fixa de 0,06 mol% de Cu e concentração crescente de Mg : 0,1; 0,2 e 0,4 mol% (S_{12} , S_{22} e S_{32}) podem ser observadas na figura 4.2. O comportamento dessas curvas é similar ao das curvas já apresentadas na figura 4.1, ou seja, as alturas do pico diminuem com o aumento da concentração de Mg, com a diferença de que a altura do pico da amostra mais sensível com 0,06 mol% de Cu é cerca de 4 vezes menor que a da amostra S_{10} (sem Cu). A diferença entre as alturas do pico das amostras S_{12} e S_{22} é pequena considerando-se o erro da medida. Já a diferença entre as alturas do pico das amostras S_{12} e S_{32} é da ordem de 8 vezes.

Figura 4.1. Curvas de emissão das amostras de LiF dopadas com varias concentrações de Mg, recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e expostas à radiação gama com 0,26 mC/kg.

Figura 4.2. Curvas de emissão das amostras de LiF dopadas com 0,06 mol% de Cu e 0,1; 0,2 e 0,4 mol% de Mg, recozidas a 400°C - 1h + 100°C 2h e expostas à radiação gama com 0,26 mC/kg.

As curvas de emissão das duas amostras com concentração fixa de 0,03 mol% de Cu e variável de Mg: 0,1 e 0,2 mol% (S_{11} e S_{21}) estão na figura 4.3. Podemos observar que a altura do pico da amostra S_{21} com maior concentração de Mg é mais alta que a da outra amostra, ao contrário do que ocorre com as amostras com 0 mol% e 0,06 mol% de Cu. Já as duas amostras com 0,12 mol% de Cu e 0,2 e 0,4 mol% de Mg (S_{23} e S_{33}) apresentam sensibilidade termoluminescente crescente com o aumento da impureza de Mg (figura 4.4), similarmente às amostras da figura 4.3, sendo a diferença entre as alturas dos picos de cerca de três vezes, no caso da figura 4.4.

As amostras dopadas somente com a impureza de Cu com as concentrações 0,03; 0,06 e 0,12 mol% (S_{01} , S_{02} e S_{03}) e a amostra S_{00} sem Cu e nem Mg têm suas curvas de emissão representadas na figura 4.5. Elas apresentam dois picos principais nas regiões de temperatura onde não existe nenhum pico para amostras dopadas só com Mg ou com Mg e Cu, cujas curvas de emissão estão apresentadas nas figuras 4.1, 4.2, 4.3 e 4.4. A sensibilidade termoluminescente à radiação gama é maior para a amostra sem nenhum dopante e decai à medida que a concentração de Cu aumenta de 0,03 a 0,12 mol% de Cu. É interessante notar que as diferenças entre as alturas dos picos TL das três amostras com o dopante são razoavelmente pequenas. Também é interessante chamar a atenção para o "ombro" que aparece na curva de emissão da amostra S_{00} , em torno de 240°C, pois é justamente nessa região que encontramos o pico TL nas amostras de LiF quando dopadas com Mg.

Figura 4.3. Curvas de emissão das amostras de LiF dopadas com 0,03 mol% de Cu e 0,1 e 0,2 mol% de Mg, recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e expostas à radiação gama com 0,26 mC/kg.

Figura 4.4. Curvas de emissão das amostras de LiF dopadas com 0,12 mol% de Cu e 0,2 e 0,4 mol% de Mg, recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e expostas à radiação gama com 0,26 mC/kg.

Figura 4.5. Curvas de emissão das amostras de LiF dopadas com: 0,03; 0,06 e 0,12 mol% de Cu e a sem Cu e Mg, recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e expostas à radiação gama com 0,26 mC/kg.

4.1.a. Análise das temperaturas dos picos

A temperatura de máximo dos picos das 14 amostras virgens recozidas a 400°C -1h + 100°C -2h e expostas a 0,26 mC/kg de radiação gama, estão apresentadas na tabela 4.1. Para uma melhor visualização dividimos a tabela em quatro quadros, cada um referente a um determinado pico (pico I_G , II_G , III_G e IV_G).

As amostras dopadas só com Mg ou com Cu e Mg apresentam um único pico cujo máximo está em torno da temperatura $(242\pm 4)^{\circ}\text{C}$ (tab. 4.1; quadro IV).

Três das amostras sem Mg apresentaram quatro picos. O primeiro deles está na tabela 4.1, quadro I e tem o seu máximo em torno de $(127\pm 6)^{\circ}\text{C}$. Este pico não foi levado em conta na análise das curvas de emissão, pois sua altura é muito pequena comparada com a dos outros picos. As temperaturas dos picos II_G e III_G das quatro amostras estão na tabela 4.1; quadro II e III respectivamente e apresentam o seu máximo em torno de $(182\pm 6)^{\circ}\text{C}$ e $(202\pm 6)^{\circ}\text{C}$. As temperaturas desses dois picos são difíceis de serem determinadas corretamente, uma vez que seus máximos são muito próximos e cada pico tem a contribuição do pico vizinho. O máximo do pico pode estar deslocado um pouco para a esquerda ou para a direita, dependendo se é o pico III_G ou II_G por causa da superposição. O pico IV_G dessas amostras aparecem na forma de "ombro" também em torno da temperatura de $(242\pm 4)^{\circ}\text{C}$, (tab. 4.1; quadro IV).

Tabela 4.1. Temperatura de máximo dos picos TL das amostras recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e expostas à radiação gama com 0,26 mC/kg.

I	Cu(mol %) Mg (mol %)	0,0	0,03	0,06	0,12	T _m ≅ (127±6)°C
	0,0	(129±10)°C	(125±14)°C	(126±8)°C	(132±14)°C	
II	Cu(mol %) Mg (mol %)	0,0	0,03	0,06	0,12	T _m ≅ (182±6)°C
	0,0	(182±10)°C	(180±14)°C	(181±8)*°C	(186±14)°C	
III	Cu (mol%) Mg (mol %)	0,0	0,03	0,06	0,12	T _m ≅ (202±6)°C
	0,0	(199±10)*°C	(198±15)*°C	(203±8)*°C	(207±15)*°C	
IV	Cu(mol %) Mg (mol %)	0,0	0,03	0,06	0,12	T _m ≅ (242±4)°C
	0,0	(245±15)*°C	(245±15)*°C	(242±15)*°C		
	0,1	(246±9)°C	(241±10)°C	(237±7)°C	-	
	0,2	(248±7)°C	(238±12)°C	(241±8)°C	(243±10)°C	
	0,4	(242±5)°C	-	(241±9)°C	(236±10)°C	

* Ombro

4.1.b. Discussão e conclusões

Todas as dez amostras que foram dopadas com Mg ou com Cu + Mg apresentaram um único pico cujo máximo está em $(242 \pm 4)^\circ\text{C}$, que é uma temperatura suficientemente alta para garantir a estabilidade do pico aos efeitos da temperatura ambiente e portanto adequado à dosimetria TL. Já as três amostras dopadas somente com Cu e inclusive a amostra sem nenhum dopante apresentaram mais de um pico e superpostos.

Quanto à sensibilidade TL temos que fazer uma análise cuidadosa. Para isso, na figura 4.6, apresentamos a altura do pico IV_G TL (u.a.) em função da variação da concentração de Mg (mol%) para cada concentração de Cu (mol%). Identificando aqui a altura do pico como medida da sensibilidade à radiação, também nesse tipo de figura unimos os pontos no sentido de separar as famílias e sublinhar as tendências, sem nenhuma pretensão neste momento de definir as curvas que regem o comportamento em cada caso. No decorrer deste trabalho manteremos sempre essa intenção na elaboração desse tipo de figuras.

Figura 4.6. Altura do pico IV_G TL em função da concentração de Mg (mol%) das amostras recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e expostas à radiação gama com 0,26 mC/kg, tendo como parâmetro a concentração de Cu (mol%).

Podemos observar, nas três amostras sem Cu, (0 mol%) que à medida que a concentração de Mg aumenta de 0,1 para 0,4 mol%, a altura do pico TL diminui drasticamente. Também notamos que ao ser adicionado o Cu como dopante, a altura do pico IV_G de todas as amostras com os dois dopantes, são mais baixas que a da amostra S_{10} , dopada somente com 0,1 mol% de Mg. Além disso, entre as amostras dopadas com Mg e Cu as mais sensíveis são S_{11} e S_{21} que justamente são aquelas que possuem a menor concentração de Cu (0,03 mol%).

Pelos resultados da fig. 4.6 notamos que para a amostra com 0,03 mol% de Cu e 0,1 de Mg, o acréscimo da impureza de Mg para 0,2 mol% favoreceu um aumento na sensibilidade TL. O mesmo comportamento ocorreu para a amostra S_{23} , dopada com 0,12 mol% de Cu e 0,2 mol% de Mg. Ao ser acrescida a impureza de Mg para 0,4 mol% ocorre um aumento significativo na sensibilidade. Porém, para as amostras com 0,06 mol% de Cu o mesmo comportamento não foi encontrado. Nelas a sensibilidade aumenta ligeiramente com o aumento da concentração de Mg de 0,1 para 0,2 mol% para diminuir cerca de nove vezes quando a concentração de Mg passa para 0,4 mol%.

Na figura 4.7 apresentamos as alturas dos picos II_G e III_G em função da variação da concentração de Cu (mol%) para as amostras sem Mg como dopante. Fica clara a queda de sensibilidade TL dessas amostras quando é aumentada a concentração de Cu até 0,12 mol%.

Figura 4.7. Altura dos picos II_G e III_G TL em função da concentração de Cu (mol%) das amostras recozidas a $400^\circ\text{C} - 1\text{h} + 100^\circ\text{C} - 2\text{h}$ e expostas à radiação gama com $0,26 \text{ mC/kg}$.

A amostra S_{00} , nominalmente sem dopante, apresenta dois picos ligeiramente superpostos e mais altos que os das outras amostras dopadas somente com Cu (fig. 4.5). Seus máximos aparecem nas temperaturas $(182 \pm 10)^\circ\text{C}$ e $(199 \pm 10)^\circ\text{C}$, isto é, nas mesmas regiões de máximo das temperaturas dos picos das amostras só dopadas com Cu (tab. 4.1; quadros II e III). A temperatura do seu pico III_G até pode ser melhor determinada, efetuando-se primeiro uma leitura até esvaziar as armadilhas correspondentes ao pico ao redor de 180°C . Em seguida, ao aquecer de novo o pico III_G aparecerá com pouca influência do pico II_G .

Os resultados apresentados nos mostram que a dopagem do LiF somente com Cu propicia o aparecimento de picos TL relativamente baixos e pouco diferenciados à medida que a sua concentração é aumentada (fig. 4.5), e que a dopagem com Mg é essencial para a presença de um único pico TL em uma faixa de temperatura mais interessante para seu uso em dosimetria.

Ao compararmos a amostra de LiF S_{00} (0 mol% de Cu e Mg) com a amostra S_{10} (0,01 mol% de Mg), percebemos que a dopagem com 0,1 mol% de Mg foi a responsável pelo surgimento de um único pico TL alto e na temperatura de $(246 \pm 9)^\circ\text{C}$, (fig. 4.6). Porém um acréscimo maior desse dopante provoca uma drástica queda na sensibilidade TL (S_{20} e S_{30} ; fig. 4.6). Os resultados obtidos nas outras curvas também nos mostram que existe uma estreita relação entre a concentração do Mg e do Cu com a altura do pico TL encontrada. Uma discussão mais detalhada sobre isso será feita no capítulo 6.

4.2. Resposta TL dos LiF: Mg,Cu expostos à radiação ultravioleta.

Para verificar a sensibilidade de cada amostra à radiação UV fixamos a exposição radiante em $0,4 \text{ J/cm}^2$, uma vez que as alturas de pico para essa exposição são razoavelmente altas e, como verificaremos mais adiante, quase saturadas. Tomamos o cuidado de sempre manter as nossas amostras reservadas dentro de recipientes para filmes fotográficos, assim, impedindo a exposição a qualquer luz ambiente. Só eram retiradas do recipiente no escuro, no momento de cada leitura e de exposição a UV. As curvas de emissão apresentam geralmente dois picos, es-

tando a temperatura de máximo do primeiro pico (pico I_U) entre 100 e 120°C e a do segundo (pico II_U) entre 150 e 175°C.

As amostras dopadas somente com a impureza de Mg com as concentrações de 0,1; 0,2 e 0,4 mol% (S_{10} , S_{20} e S_{30}) apresentaram dois picos largos. As curvas de emissão da figura 4.8 mostram que a sensibilidade termoluminescente à radiação UV é maior para a amostra com maior concentração de Mg (0,4 mol%). A altura do pico I_U da amostra com 0,4 mol% de Mg (S_{30}) é cerca de duas vezes maior que a altura do pico I_U das outras duas amostras.

Nas amostras com concentração fixa de 0,03 mol% de Cu e variável de Mg: 0,1 e 0,2 mol% (S_{11} e S_{21}), a amostra S_{21} com maior concentração de Mg apresenta uma sensibilidade aproximadamente duas vezes maior que a S_{11} . A figura 4.9 ilustra esse fato. Nota-se também a presença de um 3º pico em torno de $(241 \pm 15)^\circ\text{C}$ na amostra S_{21} .

As amostras com 0,06 mol% de Cu e concentração crescente de Mg 0,1; 0,2 e 0,4 mol% (S_{12} ; S_{22} e S_{32}) apresentaram um comportamento irregular. A amostra S_{32} com 0,4 mol% de Mg apresentou curvas TL não reprodutíveis para cada leitura TL efetuada, não tendo sido possível definir a sua curva de emissão, apesar de ter feito um número muito grande de medições. Assim, as curvas de emissão das outras duas amostras, S_{12} e S_{22} , estão na figura 4.10 e podem ser observados dois picos largos. O primeiro pico das duas amostras praticamente coincide em temperatura de máximo e em altura, sendo a diferença entre as alturas menor que o erro de medida. As temperaturas de máximo do pico II_U também estão bem próximas e a diferença entre a sensibilidade TL nesse caso é pequena, aproximadamente 30%, sendo que a amostra S_{22} com maior concentração de Mg é a que apresenta o 2º pico ligeiramente mais sensível.

Figura 4.8. Curvas de emissão das amostras de LiF dopadas com várias concentrações de Mg, recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e submetidas à exposição radiante de 0,4 J/cm² de UV.

Figura 4.9. Curvas de emissão das amostras de LiF dopadas com 0,03 mol% de Cu e 0,1; 0,2 mol% de Mg, recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e submetidas à exposição radiante de 0,4 J/cm² de UV.

Figura 4.10. Curvas de emissão das amostras de LiF dopadas com 0,06 mol% de Cu e 0,1; 0,2 mol% de Mg, recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e submetidas à exposição radiante de 0,4 J/cm² de UV.

As amostras com 0,12 mol% de Cu e 0,2 e 0,4 mol% de Mg (S_{23} e S_{33}) também apresentam sensibilidade termoluminescente crescente com o aumento da impureza de Mg. Na amostra S_{33} aparece um pico TL cujo máximo se encontra em uma temperatura acima de 200°C. A figura 4.11 ilustra as duas curvas de emissão e pode-se observar que a sensibilidade da amostra S_{33} à radiação UV é aproximadamente duas vezes maior que a da amostra S_{23} .

As amostras dopadas apenas com a impureza de Cu nas concentrações: 0,03; 0,06 e 0,12 mol% (S_{01} ; S_{02} e S_{03}) apresentam dois picos sendo o primeiro um pouco mais alto que o segundo (fig. 4.12). A amostra com menor concentração de Cu apresentou a maior sensibilidade termoluminescente à radiação ultravioleta. A altura do primeiro pico dessa amostra (0,03 mol% de Cu) é 30% e 36% maior respectivamente que a do 1º pico da amostra com 0,06 e 0,12 mol%. Quanto ao segundo pico a diferença é de 23% e 35% respectivamente entre a amostra com 0,03 mol% de Cu e as amostras com 0,06 e 0,12 mol%.

É interessante notar que a amostra S_{00} , propositadamente crescida sem Cu e sem Mg, é a única que apresenta só um pico, porém, largo com o seu máximo na temperatura de $(118 \pm 9)^\circ\text{C}$ como pode ser observado na curva de emissão da amostra na figura 4.13 e com mais sensibilidade à radiação UV entre todas as amostras.

Figura 4.11. Curvas de emissão das amostras de LiF dopadas com 0,12 mol% de Cu e 0,2; 0,4 mol% de Mg, recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e submetidas à exposição radiante de 0,4 J/cm² de UV.

Figura 4.12. Curvas de emissão das amostras de LiF dopadas com 0,03; 0,06 e 0,12 mol% de Cu, recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e submetidas à exposição radiante de 0,4 J/cm² de UV.

4.2.a. Curva da resposta TL em função da exposição radiante

Com o objetivo de estudarmos o comportamento da resposta TL das nossas amostras, ao serem submetidas a diferentes exposições radiantes(DIF-82) de UV, todas elas inicialmente passaram pelo mesmo tratamento térmico de 400°C - 1h + 100°C - 2h.

Os resultados obtidos estão apresentados nas figuras 4.14 e 4.15, onde cada curva corresponde a uma amostra. Nota-se em todas as curvas uma subida rápida na altura do pico TL para em seguida atingir a saturação. Por causa disso fixamos para o nosso trabalho a exposição radiante a UV em 0,4 J/cm², que corresponde a 30 minutos de iluminação a 20 cm da lâmpada. Optamos por registrar no gráfico o pico TL da amostra que melhor se definiu (I_U ou II_U dependendo da amostra), pois queríamos descobrir a região onde tem início a saturação dos picos. Como os picos se superpõem, o acompanhamento de um deles é suficiente para nos fornecer essa informação.

Observamos o decaimento dos picos TL à temperatura ambiente das amostras S_{10} , S_{11} e S_{21} após serem tratadas termicamente e submetidas à exposição radiante de 1,6 J/cm² de UV. Isso também foi realizado para nos certificarmos de que esses picos não existem realmente em amostras irradiadas com os raios gama e lidas até uma hora depois da irradiação. As curvas encontradas foram normalizadas e estão na figura 4.16. A primeira leitura foi realizada imediatamente após o término da irradiação. Por causa do rápido decaimento do pico TL observado nessas amostras e uma meia-vida aproximada de 60 min., para o pico I_U das amostras S_{11} e S_{21} , todas as medidas que envolviam exposição radiante foram feitas imediatamente após a exposição.

Figura 4.13. Curva de emissão da amostra de LiF sem Cu e Mg, recozida a 400°C - 1h + 100°C - 2h e submetida à exposição radiante de 0,4 J/cm² de UV.

Figura 4.14. Altura dos picos TL em função da exposição radiante a UV para as amostras de LiF recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h.

Figura 4.15. Altura do pico TL em função da exposição radiante à UV para as amostras de LiF recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h.

Figura 4.16. Decaimento normalizado do pico TL à temperatura ambiente das amostras de LiF recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e submetidas a exposição radiante à UV de 1,6 J/cm².

4.2.b. Análise das temperaturas dos picos

As temperaturas dos máximos dos picos das amostras recozidas a 400°C-1h + 100°C - 2h e submetidas à exposição radiante de 0,4 J/cm² estão apresentadas na tabela 4.2. Para uma melhor visualização dividimos esta tabela em três quadros, cada um correspondendo a um determinado pico TL.

As curvas de emissão, na sua maioria, apresentam dois picos. A temperatura dos picos I_U e II_U está respectivamente na faixa de 100 a 120°C e de 150 a 175°C. Uma análise mais detalhada indica que todas as amostras com exceção da amostra S_{00} (sem Cu e Mg) apresentam seu pico I_U com o máximo localizado na temperatura de $(102 \pm 3)^\circ\text{C}$ (tab. 4.2; quadro I). Coerente com o resultado de que as amostras com Mg e Cu apresentam o mesmo pico I_U encontramos que o decaimento desse pico à temperatura ambiente das amostras S_{11} e S_{21} (fig. 4.16) coincidem, o que é outra indicação de que se trata realmente do mesmo pico. A amostra S_{00} apresenta somente uma banda larga com o pico na temperatura de $(118 \pm 9)^\circ\text{C}$ (tab. 4.2; quadro I), que é uma faixa de temperatura mais alta comparando-se com a temperatura de máximo do pico I_U das outras amostras.

Tabela 4.2. Temperatura de máximo dos picos TL das amostras recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e submetidas à exposição radiante de 0,4 J/cm² de UV.

I	Cu(mol %) Mg (mol %)	0,0	0,03	0,06	0,12	T _m ≅ (102±3)°C (sem S ₀₀)
	0,0	(118±9) °C	(106±10) °C	(102±10) °C	(102±9) °C	
	0,1	(108±10) * °C	(95±8) °C	(102±8) °C	-	
	0,2	(109±10) * °C	(107±14) * °C	(113±14) * °C	(102±10) °C	
	0,4	(101±10) °C	-	- - -	(97±14) °C	
II	Cu(mol %) Mg (mol %)	0,0	0,03	0,06	0,12	T _m ≅ (153±5) °C
	0,0		(154±9) * °C	(150±10) °C	(152±9) * °C	
	0,1	(159±10) °C	(164±9) °C	(173±15) °C	-	
	0,2	(174±9) °C	(166±15) °C	(173±15) °C	(167±15) °C	
	0,4	(167±10) °C	-	- - -	(159±12) °C	
III	Cu(mol %) Mg (mol %)	0,0	0,03	0,06	0,12	T _m ≅ (242±10) °C
	0,0					
	0,1				-	
	0,2		(241±15) °C			
	0,4		-		(242±15) °C	

* Ombro

No quadro II da tabela 4.2 podemos observar que as três amostras dopadas só com Cu apresentam o pico II_U em $(153\pm 5)^\circ\text{C}$, enquanto que as outras nove apresentam o máximo do pico II_U em $(168\pm 4)^\circ\text{C}$.

As amostras S_{21} (0,03 mol% de Cu e 0,2 mol%) e S_{33} (0,12 mol% de Cu e 0,4 mol% de Mg) apresentam mais um pico (pico IV_U), além dos picos I_U e II_U , quando iluminadas com a lâmpada de UV cujo máximo está localizado em torno da temperatura de $(242\pm 10)^\circ\text{C}$ (tab. 4.2; quadro III).

4.2.c. Discussão e conclusões

Todas as amostras recozidas e expostas à radiação UV apresentaram mais de um pico TL, com exceção da amostra S_{00} (fig. 4.13) que é justamente a única que foi crescida sem Mg e sem Cu.

Quase todas as amostras dopadas apresentaram dois picos. As exceções a isto ocorreram para as amostras S_{33} e S_{21} (fig. 4.9 e 4.11) que têm um pico IV_U com máximo em $(242\pm 15)^\circ\text{C}$ (tabela 4.2; quadro III). Porém não podemos deixar de chamar a atenção para as curvas das seguintes amostras S_{11} (fig. 4.9); S_{12} e S_{22} (fig. 4.10); S_{23} (fig. 4.11) e S_{01} e S_{02} (fig. 4.12), que se observadas com cuidado nos dão uma idéia da existência do terceiro pico em torno de 240°C . O sinal emitido pela panela foi descontado nas curvas das figuras acima citadas.

As amostras dopadas somente com Mg e com Cu mais Mg apresentaram o pico I_U com o máximo na temperatura de $(102\pm 3)^\circ\text{C}$ e o pico II_U em $(168\pm 4)^\circ\text{C}$. As três amostras dopadas só com Cu, também apresentaram o seu pico I_U com o máximo na temperatura de $(102\pm 3)^\circ\text{C}$ e o pico II_U não muito bem definido em torno de $(153\pm 5)^\circ\text{C}$ (tabela 4.2; quadros I e II).

Quanto às alturas dos picos TL temos que fazer uma análise mais cuidadosa. Para isso, nas figuras 4.17 e 4.18, respectivamente, apresentamos as alturas dos picos I_U e II_U em função da variação da concentração de Mg (mol%) para cada concentração de Cu (mol%). Fixada a concentração do Cu, podemos observar uma tendência de aumento da sensibilidade TL à radiação UV à medida que aumentamos a concentração de Mg, com exceção para o pico I_U das amostras S_{20} e S_{22} .

Figura 4.17. Altura do pico I_U TL em função da concentração de Mg (mol%) para as amostras recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e expostas a 0,4 J/cm² de UV.

Figura 4.18. Altura do pico II₀ TL em função da concentração de Mg (mol%) para amostras recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e expostas a 0,4 J/cm² de UV.

A amostra S_{00} sem nenhum dopante apresenta uma banda larga com um máximo em $(118 \pm 9)^\circ\text{C}$ (tab. 4.2; quadro I), e é a que apresenta maior sensibilidade à radiação UV (fig. 4.13). A amostra S_{30} com 0,4 mol% de Mg e sem Cu é a seguinte mais sensível à radiação UV, apresentando os dois picos mais altos, seguido das amostras S_{33} e S_{21} . As outras amostras apresentam sensibilidade semelhante à radiação UV, porém parece existir uma tendência de diminuição da sensibilidade com o aumento da concentração de Cu.

A sensibilidade do pico I_U das amostras sem Cu (S_{10} ; S_{20} e S_{30}) à radiação UV é bastante peculiar, passando de mínima sensibilidade (S_{20}) para a máxima (S_{30}), e pode ser observado na figura 4.17.

Na figura 4.19 estão representadas as alturas dos picos I_U e II_U das amostras só dopadas com Cu em função justamente dessa concentração. É interessante notar que entre as amostras S_{01} , S_{02} e S_{03} sem Mg como dopante e com concentrações de Cu respectivamente de 0,03; 0,06 e 0,12 mol%, os picos da amostra com menos cobre são os mais altos, diminuindo à medida que aumenta a concentração de Cu.

A figura 4.18 também mostra que, para as amostras com os dois dopantes, fixando-se a concentração de Mg, há uma diminuição da sensibilidade à radiação UV com o aumento da concentração de Cu. Portanto, a sensibilidade à radiação UV tende a ser menor para amostras com maior quantidade de Cu na faixa de 0 a 0,12 mol% e com menor quantidade de Mg na faixa de 0,1 a 0,4 mol%.

Figura 4.19. Altura dos picos I_U e II_U TL em função da concentração de Cu (mol%) das amostras recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e expostas a 0,4 J/cm² de UV.

CAPÍTULO 5

COMPORTAMENTO DOS LiF(s) QUANDO EXPOSTOS À RADIAÇÃO GAMA E A SEGUIR À RADIAÇÃO ULTRAVIOLETA

5.1. Resposta TL dos LiF:Mg,Cu expostos à radiação gama e a seguir à radiação UV

Estudamos especialmente neste capítulo o efeito da radiação UV em amostras previamente expostas à radiação gama e não lidas, porque muitas vezes esse tipo de fato ocorre com dosímetros usados rotineiramente na monitoração pessoal. Em grande parte dos fósforos, a radiação UV afeta a altura dos picos devidos a raios gama, abaixando-a ou aumentando-a.

O procedimento para esse estudo foi o seguinte: todas as amostras virgens passaram pelo mesmo tratamento térmico (400°C - 1h + 100°C - 2h) antes de serem irradiadas com raios gama de ^{137}Cs e a seguir iluminadas com UV. Nos dois casos reproduziram-se as mesmas condições utilizadas anteriormente ou seja: uma exposição à radiação gama de 0,26 mC/kg seguida de uma exposição radiante de 0,4 J/cm² de UV e lidas a seguir com os mesmos procedimentos utilizados nas outras experiências. As amostras de uma forma geral apresentaram três picos TL: aqueles devidos à radiação gama e à radiação ultravioleta.

As amostras dopadas com 0,1; 0,2 e 0,4 mol% de Mg (S_{10} ; S_{20} e S_{30}) estão com suas curvas de emissão na figura 5.1. A amostra S_{10} com menor concentração de Mg tem o pico IV_{GU} mais alto de todos e em torno da temperatura de (244±9)°C. As outras duas amostras apresentaram esse pico baixo e próximos entre si. Já a S_{30} , com 0,4 mol% de Mg, apresenta o pico I_{GU} mais alto, que é cerca da metade das outras duas amostras. As alturas do pico II_{GU} nas amostras S_{20} e S_{30} praticamente coincidem se levarmos em consideração o erro de medida. Para a amostra S_{10} no lugar do pico II_{GU} aparece um platô.

Figura 5.1. Curvas de emissão das amostras de LiF dopadas com 0,1; 0,2 e 0,4 mol% de Mg, recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e expostas à radiação gama com 0,26 mC/kg e a seguir a 0,4 J/cm² de UV

As duas amostras com 0,03 mol% de Cu e 0,1 e 0,2 mol% de Mg (S_{11} e S_{21}) estão com suas curvas de emissão na figura 5.2. Elas apresentam três picos TL que estão nas mesmas faixas de temperatura, sendo que a amostra com menor concentração de Mg (0,1 mol%) tem as alturas de picos um pouco mais baixas que as da amostra com mais Mg (0,2 mol%). Comportamento similar é encontrado entre as amostras S_{12} e S_{22} (figura 5.3), que são dopadas respectivamente com 0,1 e 0,2 mol% de Mg e 0,06 mol% de Cu. Suas curvas de emissão também apresentam três picos TL nas mesmas temperaturas e a amostra com menor concentração de Mg tem as alturas de picos mais baixas que as da amostra com mais Mg (S_{22}).

Na figura 5.4 registramos as curvas de emissão das duas amostras com 0,12 mol% de Cu e 0,2 ou 0,4 mol% de Mg. Nelas aparecem os três picos TL nas mesmas faixas de temperatura de outras amostras. Os dois primeiros picos TL são mais altos na amostra S_{33} com mais Mg (0,4 mol%) do que na amostra S_{23} , enquanto que para o 3º pico a situação se inverte e a amostra S_{23} com menor concentração de Mg (0,2 mol%) é a que apresenta esse pico maior.

As amostras só dopadas com Cu estão com suas curvas de emissão na figura 5.5. As amostras com 0,06 e 0,12 mol% de Cu apresentam aparentemente três picos largos e superpostos, coincidentes entre si quanto às faixas de temperatura. A diferença entre as alturas dos picos é pequena e está dentro do erro de medida ($\pm 0,5$ u.a.). A amostra S_{01} (com 0,03 mol% de Cu) apresenta os picos I_{GU} e III_{GU} na mesma faixa de temperatura das outras duas amostras, sendo os picos I_{GU} e III_{GU} da S_{01} mais altos que os das outras duas amostras citadas. O pico II_{GU} não aparece explicitamente mas a existência de uma rampa alta em torno de 140 e 160°C pode indicar a presença desse pico.

Figura 5.2. Curvas de emissão das amostras de LiF dopadas com 0,03 mol% de Cu e 0,1 e 0,2 mol% de Mg, recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e expostas à radiação gama com 0,26 mC/kg e a seguir a 0,4 J/cm² de UV.

Figura 5.3. Curvas de emissão das amostras de LiF dopadas com 0,06 mol% de Cu e 0,1 e 0,2 mol% de Mg, recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e expostas à radiação gama com 0,26 mC/kg e a seguir a 0,4 J/cm² de UV.

Figura 5.4. Curvas de emissão das amostras de LiF dopadas com 0,12 mol% de Cu e 0,2 e 0,4 mol% de Mg, recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e expostas à radiação gama com 0,26 mC/kg e a seguir a 0,4 J/cm² de UV.

Figura 5.5. Curvas de emissão das amostras de LiF dopadas com 0,03; 0,06 e 0,12 mol% de Cu e da amostra sem Cu e sem Mg, recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e expostas à radiação gama com 0,26 mC/kg e a seguir a 0,4 J/cm² de UV.

A amostra sem Mg e sem Cu (S_{00}) (fig. 5.5) tem o pico I_{GU} largo, alto, com o máximo localizado na temperatura média de $(117 \pm 10)^\circ\text{C}$ (tabela 5.1; quadro I). O pico III_{GU} aparece em $(202 \pm 10)^\circ\text{C}$ (tabela 5.1; quadro III), coincidindo com a faixa de temperatura do pico III_{GU} das outras amostras da figura, sendo ligeiramente mais alto. A largura do pico I_{GU} é uma indicação da provável existência de mais picos.

5.1.a. Análise das temperaturas dos picos

As amostras de LiF(s) (Mg,Cu) de forma geral quando expostas à radiação gama e a seguir iluminadas com UV apresentaram três picos TL largos. Na tabela 5.1 estão registradas as temperaturas desses picos. Ela foi dividida em quatro quadros com o objetivo de facilitar a nossa análise.

As seis amostras dopadas com Mg e Cu apresentam os seus três picos nas mesmas temperaturas: o pico I_{GU} em $(99 \pm 4)^\circ\text{C}$ (tab. 5.1; quadro I); o pico II_{GU} em $(163 \pm 4)^\circ\text{C}$ (tab. 5.1; quadro II) e o pico IV_{GU} em $(244 \pm 4)^\circ\text{C}$ (tab. 5.1; quadro IV). As outras três amostras dopadas só com Mg (0,1; 0,2 e 0,4 mol%) também apresentam os seus picos nessas temperaturas, porém é necessário ressaltar que a amostra S_{10} (0,1 mol% de Mg) apresenta um platô de sinal TL (fig. 5.1), entre os picos I_{GU} e o IV_{GU} não sendo dessa forma definido nenhum pico. Na amostra S_{40} (0,4 mol% de Mg) (fig. 5.1) aparece um ombro na região do pico IV_{GU} , o que traz uma dificuldade no momento de definirmos sua temperatura.

Tabela 5.1. Temperatura dos máximos dos picos TL das amostras de LiF, recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e expostas à radiação gama com 0,26 mC/kg e a seguir a 0,4 J/cm² de UV.

I	Cu(mol %) Mg (mol %)	0,0	0,03	0,06	0,12	T _m ≅ (102±6)°C (sem S ₀₀)
	0,0	(117±10)°C	(105±14)°C	(101±10)°C	(102±9)°C	
	0,1	(99±10)°C	(97±9)°C	(103±10)°C	-	T _m
	0,2	(92±10)°C	(96±10)°C	(106±14)°C	(100±9)°C	≅ (99±4)°C
	0,4	(86±12)°C	-	- - -	(99±10)°C	(sem S ₀₀)
II	Cu(mol %) Mg (mol %)	0,0	0,03	0,06	0,12	T _m
	0,0		**	(149±10)°C	(149±9)°C	≅ (149±7)°C
	0,1	**	(162±9)°C	(150±10)°C	-	T _m
	0,2	(175±10)°C	(164±10)°C	(173±14)°C	(161±9)°C	≅ (163±4)°C
	0,4	(162±12)°C	-	- - -	(163±10)°C	
III	Cu(mol %) Mg (mol %)	0,0	0,03	0,06	0,12	T _m
	0,0	(202±10)°C	(203±14)°C	(201±10)°C	(202±9)°C	≅ (202±5)°C
IV	Cu(mol %) Mg (mol %)	0,0	0,03	0,06	0,12	T _m
	0,0					
	0,1	(244±9)°C	(241±9)°C	(238±10)°C	-	T _m
	0,2	(248±10)°C	(243±10)°C	(242±14)°C	(245±9)°C	≅ (244±4)°C
	0,4	(253±12)*°C	-	- - -	(244±10)°C	

* Ombro

** Platô

A temperatura média do pico I_{GU} para as amostras só dopadas com Cu (S_{01} ; S_{02} e S_{03}) é $(102 \pm 6)^\circ\text{C}$ (tab. 5.1; quadro I), a princípio, um pouco mais alta que a temperatura média encontrada para o pico I_{GU} das amostras dopadas com Mg $(99 \pm 4)^\circ\text{C}$, porém os dois intervalos de temperaturas se superpõem dentro dos limites dos erros. Já a temperatura do pico II_{GU} para essas amostras está deslocada mais para a esquerda, ou seja, para a região de temperaturas mais baixas, com relação a do pico equivalente das amostras dopadas com Mg. Na tabela 5.1 no quadro II podemos ver que a temperatura média do pico II_{GU} dessas amostras está em $(149 \pm 7)^\circ\text{C}$ e no quadro III a do pico III_{GU} em $(202 \pm 5)^\circ\text{C}$. A amostra S_{01} (0,03 mol% de Cu) não apresenta um pico II_{GU} definido e sim uma rampa TL (fig. 5.5). A amostra sem Cu e Mg (S_{00}) tem o pico I_{GU} largo (fig. 5.5), na temperatura de $(117 \pm 10)^\circ\text{C}$ (tab. 5.1; quadro I) e o pico III_{GU} na temperatura de $(202 \pm 10)^\circ\text{C}$ (tab. 5.1; quadro III). Pelo formato da curva de emissão pode-se afirmar que, provavelmente, existe mais picos TL entre os picos I_{GU} e III_{GU} .

5.2. Discussão e conclusões

Como o objetivo neste capítulo é estudar o efeito da radiação UV em amostras previamente expostas à radiação gama e não lidas, temos de confrontar os resultados apresentados neste capítulo, com os do anterior que mostram o comportamento das mesmas amostras quando expostas isoladamente a cada tipo de radiação (gama ou UV). Iniciaremos analisando as temperaturas dos picos TL de todas as amostras, procurando identificar quais são os mesmos picos e qual o seu comportamento de acordo com o tipo de radiação. Depois disso discutiremos o que ocorre com a sensibilidade dos picos TL e se existe alguma relação entre os picos TL, sua altura e o tipo de radiação a qual a amostra é exposta.

5.2.a. Comparação das temperaturas dos picos TL

De uma forma geral, os picos TL que apareceram nas amostras quando irradiadas só com radiação gama ou só com UV são os mesmos que aparecem quando as amostras são expostas às duas radiações sucessivamente.

As amostras dopadas só com Mg e com Mg + Cu apresentam um único pico TL localizado em torno da temperatura $(242 \pm 4)^\circ\text{C}$, quando irradiadas só com radiação gama (tab. 4.1; quadro IV). Nessa mesma temperatura aparece o pico IV_{GU} das mesmas amostras quando irradiadas com radiação gama e a seguir com UV (tab. 5.1; quadro IV). Quando essas amostras são expostas somente à radiação UV, algumas delas apresentam o pico IV_u na temperatura de $(242 \pm 10)^\circ\text{C}$ (tab. 4.2; quadro III). Podemos então concluir que o pico IV que aparece nos três casos para as amostras dopadas só com Mg e com Mg + Cu é o mesmo pico e que está localizado na temperatura de $(242 \pm 4)^\circ\text{C}$. Essas mesmas amostras quando expostas só à radiação UV apresentam o pico I_u em $(102 \pm 3)^\circ\text{C}$ e o pico II_u em $(168 \pm 4)^\circ\text{C}$ (tab. 4.2; quadro I e II). Quando expostas à radiação gama e a seguir a UV encontramos o pico I_{GU} em torno de $(99 \pm 4)^\circ\text{C}$ e o pico II_{GU} em torno de $(163 \pm 4)^\circ\text{C}$ (tab. 5.1; quadro I e II). Como essas faixas de temperatura se superpõem, consideramos que se tratam dos mesmos picos e que apresentam seus máximos localizados nas temperaturas médias de $(100 \pm 3)^\circ\text{C}$ para o pico I e $(165 \pm 3)^\circ\text{C}$ para o pico II.

As três amostras dopadas só com Cu quando irradiadas com radiação gama apresentam três picos, porém o primeiro deles (tab. 4.1; quadro I), como já foi mencionado anteriormente, não foi estudado por ser muito baixo. Assim, para nosso estudo são considerados apenas os picos II_G e III_G . O pico III_G dessas amostras quando irradiadas com radiação gama (tab. 4.1; quadro III) tem o seu máximo localizado na temperatura média de $(203 \pm 6)^\circ\text{C}$ (sem S_{00}); e quando irradiadas com radiação gama e a seguir com UV o pico III_{GU} aparece em $(202 \pm 6)^\circ\text{C}$ (sem S_{00}). Como esses intervalos de temperatura se superpõem, novamente consideramos que é o mesmo pico TL cujo máximo está localizado na temperatura média de $(203 \pm 5)^\circ\text{C}$. Essas mesmas amostras quando expostas somente à radiação UV apresentaram dois picos TL. O primeiro tem o seu máximo localizado na temperatura $(102 \pm 3)^\circ\text{C}$ (tab. 4.2; quadro I) e quando as mesmas amostras são expostas à radiação gama e a seguir à UV encontramos um primeiro pico cujo máximo também está em torno de $(102 \pm 6)^\circ\text{C}$ (tab. 5.1; quadro I). Estas temperaturas são iguais; logo se trata do mesmo pico TL com o seu máximo localizado na temperatura média de

(102±4)°C. O segundo pico TL que aparece quando S_{01} , S_{02} e S_{03} são expostas à UV tem seu máximo em torno da temperatura média de (153±5)°C (tab. 4.2; quadro II) e quando expostas à radiação gama e a seguir a UV apresentam um segundo pico TL localizado em (149±7)°C (tab. 5.1; quadro II). Novamente como os intervalos se superpõem consideramos que são os mesmos picos cujo máximo se encontra em (152±4)°C.

A amostra S_{00} (sem Mg e sem Cu) quando exposta à radiação UV apresenta um só pico TL (pico I_U) cujo máximo está localizado em (118±9)°C (tab. 4.2; quadro I). Quando essa mesma amostra é exposta à radiação gama e a seguir a UV aparece o pico I_{GU} em (117±10)°C (tab. 5.1; quadro I), ou seja é o mesmo pico TL na temperatura média de (118±7)°C. Quando S_{00} foi irradiada só com raios gama, o pico III_G está em (199±10)°C (tab. 4.1; quadro III) e quando irradiada com raios gama e a seguir com UV aparece o pico III_{GU} cujo máximo está na temperatura de (202±10)°C (tab. 5.1; quadro III). Novamente os intervalos de temperatura se superpõem e podemos considerar que são o mesmo pico TL cujo máximo se localiza em (200±7)°C.

O pico II_G estudado nas amostras dopadas só com Cu e na S_{00} (sem Mg e Cu) quando irradiadas só com raios gama estão com seu máximo localizado na temperatura de (182±6)°C (tab. 4.1; quadro II). Não conseguimos identificá-los explicitamente quando irradiamos as mesmas amostras com as duas radiações, mas conseguimos entender a causa disso observando com mais cuidado as curvas de emissão dessas amostras. A amostra S_{00} ilustra bem a nossa observação:

a. quando a amostra é irradiada só com raios gama notamos dois picos TL mais altos cujos máximos estão localizados nas temperaturas (182±10)°C e (199±10)°C (tab. 4.1; quadros II e III; fig. 4.5).

b. quando a amostra é exposta só à radiação UV, identificamos um pico largo cujo máximo está em torno da temperatura de (118±9)°C (fig. 4.13) e cuja altura é igual a (7±1) u.a. que ultrapassa a do pico mais alto da mesma amostra quando irradiada só com raios gama que é igual a (6±1) u.a.

c. Ao expor a amostra a raios gama e a seguir a UV (fig. 5.5) o pico largo TL posicionado na temperatura de (118±9)°C é facilmente identificável,

porém está ainda mais largo que na fig. 4.13. E o pico III_{GU} da fig. 5.5, cujo máximo está localizado na temperatura de $(199 \pm 10)^\circ\text{C}$, também é reconhecido como sendo o pico III_{G} que aparece na fig. 4.5, porém também mais largo.

d. O pico II cujo máximo está posicionado na temperatura de $(182 \pm 10)^\circ\text{C}$ (fig. 4.5) não é claramente observado na fig. 5.5 pois está "embutido" nos picos largos da curva de emissão da amostra.

As três amostras dopadas só com Cu apresentaram o pico II_{G} em $(182 \pm 6)^\circ\text{C}$ (tab. 4.1; quadro II e fig 4.5) quando irradiadas só com raios gama. Entretanto, esse pico não foi identificado nem na fig. 5.5 e nem na tabela 5.1, ou seja, quando as amostras foram expostas às duas radiações. Podemos considerar este fato semelhante ao ocorrido com a amostra S_{00} : esse pico se encontra "embutido" nos picos largos das curvas de emissão.

Após essas discussões em torno das temperaturas dos picos TL podemos concluir que:

- para as nossas amostras o intervalo de temperatura de emissão do sinal TL quando irradiadas com os raios gama é diferente do intervalo de temperatura de emissão TL quando a amostra é exposta à UV.

- o pico TL que aparece nas nossas amostras dopadas com Mg na temperatura de $(242 \pm 4)^\circ\text{C}$ e na temperatura de $(203 \pm 6)^\circ\text{C}$ para as amostras dopadas só com Cu não tem as suas temperaturas alteradas quando são expostas à ultravioleta (UV).

5.2.b. Comparação das alturas dos picos TL

Prosseguindo nossas análises comparativas, teremos o cuidado de só confrontar as alturas dos mesmos picos, e para maior clareza iremos trabalhar com os valores das alturas dos picos TL em função da concentração dos dopantes.

5.2.b.I. Amostras dopadas com Mg ou Mg + Cu

As alturas do pico IV_{GU} em função da concentração de Mg para as amostras irradiadas com raios gama e a seguir com UV estão apresentadas na figura 5.6. Observamos que as alturas desse pico, com exceção para a amostra S_{23} , coinci-

dem com as alturas do pico IV_G dessas mesmas amostras quando irradiadas só com raios gama, considerando a barra de erro da cada ponto (fig. 4.6). Esses resultados indicam que o pico IV das nossas amostras não só mantêm o máximo do pico na mesma temperatura como também não sofre alteração significativa na sua altura quando essas amostras são expostas à radiação UV depois da exposição a raios gama.

Esse resultado é peculiar, uma vez que para outros fósforos, a radiação UV, em geral, transfere portadores de carga de armadilhas profundas para outras rasas. Como consequência, as alturas dos picos de temperatura alta, cujas armadilhas foram preenchidas com radiação ionizante, diminuem quando a amostra for posteriormente exposta à radiação UV e aparecem, por sua vez, picos de temperatura baixa.

Os picos I_U ; II_U ; I_{GU} e II_{GU} das amostras dopadas com Mg e Cu + Mg são aqueles que surgem quando elas são irradiadas com UV ou com raios gama e a seguir com UV. As alturas deles estão respectivamente nas figuras 4.17, 4.18 e 5.7 , 5.8. Comparando as curvas de emissão, novamente constatamos que: as alturas dos picos coincidem, levando em consideração o erro de cada medida. Estes resultados são muito interessantes pois nos indicam que a resposta TL dessas amostras para a radiação gama e a radiação UV são distintas.

Figura 5.6. Altura do pico IV_{GU} TL em função da concentração Mg (mol%) das amostras recozidas à 400°C - 1h + 100°C - 2h e expostas à radiação gama com 0,26 mC/kg e a seguir a 0,4 J/cm² de UV, tendo como parâmetro a concentração de Cu (mol%).

Figura 5.7. Altura do pico I_{GU} TL em função da concentração Mg (mol%) das amostras recozidas à 400°C - 1h + 100°C - 2h e expostas à radiação gama com 0,26 mC/kg e a seguir a 0,4 J/cm² de UV, tendo como parâmetro a concentração de Cu (mol%).

Figura 5.8. Altura do pico TL II_{GU} em função da concentração Mg (mol%) das amostras recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e expostas à radiação gama com 0,26 mC/kg e a seguir a 0,4 J/cm² de UV, tendo como parâmetro a concentração de Cu (mol%).

5.2.b.II. Amostra S_{00} e as dopadas só com Cu

As nossas três amostras só dopadas com Cu (S_{10} , S_{20} e S_{30}), quando expostas a raios gama e a seguir com UV estão com as suas alturas de picos registradas na figura 5.9. As alturas dos picos quando as amostras são expostas só à radiação UV estão registradas na figura 4.19. Considerando a barra de erro de cada medida e comparando as figuras encontramos que: não houve alteração nas alturas dos picos I e II dessas amostras.

Agora só nos resta comparar o pico III dessas amostras. Esse pico aparece quando elas são irradiadas com raios gama (fig. 4.7) ou com raios gama e a seguir com UV (fig. 5.9). Observando com cuidado as barras de erro podemos afirmar que as alturas do pico III para essas amostras também coincidem.

É bom chamar a atenção para o pico denominado II_G da fig. 4.7 com seu máximo na temperatura de $(182 \pm 6)^\circ\text{C}$ (tab. 4.2; quadro II) que é diferente e, portanto, não comparável com o pico II_U que aparece na fig. 5.9, cujo máximo está localizado na temperatura de $(149 \pm 7)^\circ\text{C}$ (tab. 5.1; quadro II). Os resultados encontrados para as amostras só dopadas com Cu continuam nos indicando que a resposta TL das nossas amostras é distinta para a radiação gama e a radiação UV.

Figura 5.9. Altura do pico TL em função da concentração Cu (mol%) das amostras recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e expostas à radiação gama com 0,26 mC/kg e a seguir a 0,4 J/cm² de UV.

Iremos nos fixar agora na amostra S_{00} (sem Mg e Cu). Como já analisado, o pico I_{GU} encontrado quando a amostra é exposta aos raios gama e a seguir com UV apresenta o seu máximo localizado em $(117 \pm 10)^\circ\text{C}$ (tab. 5.1; quadro I), é o mesmo pico I_U que aparece na amostra quando ela é exposta só a UV (tab. 4.2; quadro I). A altura desse pico I quando a amostra é exposta só a UV e a raios gama seguido de UV é respectivamente (7 ± 2) u.a. e $(5,8 \pm 0,8)$ u.a.. Considerando o erro das medidas podemos dizer que as alturas são iguais.

O pico III_G da amostra S_{00} quando irradiada só com raios gama (tab. 4.1; quadro III) é o mesmo pico III_{GU} dessa amostra quando exposta a raios gama e a seguir a UV (tab. 5.1; quadro III). As alturas do pico III são respectivamente iguais a $(5,9 \pm 0,7)$ u.a. e $(2,8 \pm 0,5)$ u.a. Mesmo considerando o erro nas medidas das alturas do pico fica claro que houve diminuição na altura quando a amostra também foi exposta à UV.

De uma forma geral podemos dizer que as alturas dos picos TL das amostras de LiF crescidas com os dopantes (Cu; Mg ou Cu + Mg) e irradiadas com raios gama não se alteram quando são expostas também à radiação UV.

CAPÍTULO 6

ANÁLISE EMPÍRICA DO EFEITO DAS IMPUREZAS DE Mg E Cu NA SENSIBILIDADE DAS AMOSTRAS IRRADIADAS COM OS RAIOS GAMA.

Tendo constatado uma variação na sensibilidade TL entre as nossas amostras (tabela 6.1) submetidas a igual tratamento térmico, exposição a raios gama e leitura, procuramos averiguar a existência de alguma relação entre esses resultados e o tipo e a concentração dos dopantes.

Começamos por ajustar a altura do pico IV_G em função da concentração nominal de Mg das amostras sem Cu S_{00} , S_{10} , S_{20} e S_{30} através de uma equação empírica. Para isso levamos em consideração três critérios básicos:

- a. a curva que representa a equação deve fornecer o melhor ajuste possível;
- b. a curva deve ser suave;
- c. a equação deve ser simples.

A equação obtida foi a seguinte:

$$I_{TL} = \frac{100}{\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{1}{2}(100,4 K_{Li q}^3 - 116,4 K_{Li q}^2 + 45,1 K_{Li q} - 2,9)^2} \quad (6.1)$$

onde:

I_{TL} - é a altura do pico IV_{GU} em (u.a.)

$K_{Li q}$ - a concentração nominal de Mg em mol%

Essa equação está representada pela curva da figura 6.1 e verifica-se que o ajuste obtido foi muito bom. Essa curva sugere a existência de uma região na qual o sinal TL é grande (95% do máximo da curva), para a concentração nominal de Mg entre 0,07 e 0,09 mol%. Fora dessa região a curva tende rapidamente a zero, isto é, a sensibilidade TL dos LiF(s) fora desse intervalo cai rapidamente. Isto

evidencia, portanto, que nem todo Mg adicionado ao cristal contribui efetivamente para o sinal TL e sim uma parcela desse total.

Tabela 6.1 - Altura do pico IV_G das amostras de LiF(Mg,Cu) recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e expostas a 0,26 mC/kg de raios gama.

<div> <div>Cu</div> <div>Mg</div> <div>(mol %)</div> <div>(mol %)</div> </div>	0,0	0,03	0,06	0,12
0,0	S_{00} $(0,6 \pm 0,3)_{ua}$	S_{01}	S_{02}	S_{03}
0,1	S_{10} $(34 \pm 3)_{ua}$	S_{11} $(20 \pm 2)_{ua}$	S_{12} $(7 \pm 1)_{ua}$	-
0,2	S_{20} $(3 \pm 1)_{ua}$	S_{21} $(23 \pm 2)_{ua}$	S_{22} $(9 \pm 3)_{ua}$	S_{23} $(4 \pm 1)_{ua}$
0,4	S_{30} $(0,5 \pm 0,3)_{ua}$	-	S_{32} $(1,0 \pm 0,5)_{ua}$	S_{33} $(12 \pm 2)_{ua}$

Figura 6.1. Ajuste da altura do pico IV_G das amostras dopadas apenas com Mg através de uma curva empírica.

Deve-se notar também que estamos trabalhando com valores nominais do dopante Mg, ou seja, estamos considerando que sua incorporação ao cristal, durante o crescimento, seja total e homogênea.

Nas amostras duplamente dopadas (Mg,Cu) observamos que todas as alturas TL poderiam ser sistematizadas coerentemente na fig. 6.1, se considerarmos que as concentrações de Cu e Mg sofrem algum tipo de interação dentro do cristal. Dessa forma, da concentração total de Mg seria "subtraído" uma parcela que corresponderia à interação Mg-Cu, resultando "uma concentração líquida de Mg (K_{Liq})" que responderia pelo comportamento TL do cristal como se ele só tivesse sido dopado com Mg com a respectiva concentração líquida (K_{Liq}).

Para a determinação da expressão matemática que descreveria tal processo voltamos à equação 6.1. Ela também poderá ajustar as alturas do pico IV_G das amostras dopadas com Mg e Cu, uma vez descoberto o significado de K_{Liq} de Mg para tais amostras.

Lembramos que K_{Liq} de Mg para amostras dopadas:

- só com Mg é a concentração nominal de Mg por hipótese;
- com Mg e Cu não será a concentração nominal de Mg, visto que ela é modificada devido à interação com Cu.

A única relação matemática para K_{Liq} (função das concentrações nominais de Mg (K_{Mg}) e de Cu (K_{Cu})) que ajustou perfeitamente a altura do pico IV_G das 10 amostras de LiF(Mg,Cu) (figura 6.2) na curva já definida pelas quatro amostras sem Cu (equação 6.1) foi:

$$K_{Liq} = \frac{K_{Mg}}{\frac{K_{Cu}}{1,2 \times 10^{-2} \Gamma(15,8 K_{Mg}^{3/2})} + 1} \quad (6.2)$$

Esta expressão mostra que ocorre um deslocamento da concentração nominal de Mg (K_{Mg}) de cada amostra para um valor menor (K_{Liq}), sendo esse deslocamento maior ou menos, dependendo da concentração de Cu (K_{Cu}).

A figura 6.3 mostra a variação de K_{Liq} de Mg em função da concentração nominal de Mg (K_{Mg}), tendo como parâmetro K_{Cu} nominal.

Figura 6.2. Intensidade TL (I_{TL}) (pico IV_Q) em função da concentração "líquida" de Mg para as amostras de LiF(Mg,Cu) recozidas a 400°C-1h + 100°C-2h e expostas a 0,26 mC/kg de raios gama. A curva é a mesma da fig. 6.1.

Figura 6.3. Relação entre o K_{Liq} (mol%) e a concentração nominal de Mg (mol%), tendo como parâmetro a concentração de K_{Cu} , para as amostras de LiF(Mg,Cu) recozidas a 400°C-1h + 100°C-2h e expostas a 0,26 mC/kg de raios gama que ajustou a curva empírica aos resultados experimentais.

Deve-se ressaltar que esse modelo explica o aparente comportamento anômalo observado nas amostras S_{32} e S_{33} (tabela 6.1) que apresentam um aumento de sensibilidade TL proporcionalmente ao aumento da concentração de Cu, assim como o comportamento das amostras com 0,2 mol% de Mg (S_{21} , S_{22} e S_{23}), que a partir da adição de Cu apresenta um sinal TL maior que o da amostra dopada apenas com Mg com a mesma concentração (S_{20}).

Na figura 6.3, as duas retas tracejadas foram traçadas para delimitar a região de concentração de K_{Liq} de Mg (entre 0,07 e 0,09 mol%) que fornece amostras nas quais a altura do pico IV_G é maior que 95% do pico máximo, (ordenada à direita).

Analizando as curvas da figura 6.3, observa-se que elas podem fornecer informações técnicas importantes para o crescimento no laboratório de LiF(s) muito sensíveis à radiação gama e reprodutíveis. As curvas com K_{Cu} entre 0,06 a 0,12 mol% e 0,0 mol% mostram que pequenas variações na dopagem com K_{Mg} podem causar grande redução na sensibilidade do pico IV_G , uma vez que as curvas dessas amostras entre as retas tracejadas apresentam uma inclinação grande. As concentrações ideais de K_{Cu} estariam entre 0,01 e 0,03 mol%, visto serem as curvas na figura 6.3 menos inclinadas no intervalo das retas tracejadas, significando que a faixa de variação da concentração nominal de Mg pode ser razoavelmente ampla. Isso significa que com $K_{Cu} = 0,01$ mol% e K_{Mg} entre 0,10 e 0,17 mol%, o LiF pode ser crescido em laboratório de uma forma bastante reprodutível com uma boa sensibilidade à radiação gama.

É importante ressaltar que as equações e as curvas correspondentes são válidas para o tratamento térmico utilizado (400°C-1h + 100°C-2h) e para a concentração de impurezas das nossas amostras, ou seja, de 0,0 a 0,4 mol% para o Mg e 0,0 a 0,12 mol% para o Cu. Para concentrações nominais de Mg maiores que 0,4 mol% (curvas pontilhadas na figura 6.3), certamente seria necessário introduzir outras correções.

Para confirmar se a relação empírica encontrada entre o K_{Mg} e o K_{Cu} é satisfatória, seria necessário crescer novas amostras de LiF(Mg,Cu) com dopantes

distintos dos que nós usamos, além de efetuar análise para a determinação quantitativa das impurezas efetivamente incorporadas nos LiF(s). Caso isso se confirme valerá a pena explorar mais o significado físico da interação Mg-Cu na termoluminescência do LiF.

CAPÍTULO 7

CONCLUSÕES GERAIS

7.1. Conclusões

Apresentamos aqui nossas conclusões mais gerais, uma vez que no final de cada capítulo já foram apresentadas as discussões e as conclusões específicas

Iniciamos a pesquisa com o intuito de estabelecer um tratamento térmico adequado para as nossas amostras que permitisse sua reutilização por diversas vezes. Isso significa que, após cada ciclo (tratamento térmico + irradiação + leitura TL), a forma da curva de emissão assim como a sensibilidade TL da amostra deve ser mantida constante. Além disso, é mais conveniente um tratamento térmico que propicie o aparecimento de um único pico cujo máximo esteja localizado entre 170°C e 270°C. Picos em temperaturas baixas apresentam inconveniência, por decaírem à temperatura ambiente, enquanto que picos em temperaturas muito altas podem ser camuflados pela radiação infravermelha emitida pela panela.

Os efeitos dos três tratamentos térmicos distintos foram pesquisados em amostras expostas à radiação gama do ^{137}Cs . O primeiro deles a 230°C - 10' fez com que a curva de emissão das amostras apresentasse três ou mais picos além de não esvaziar totalmente as armadilhas mais profundas, de modo a acumular TL residual. O tratamento térmico seguinte de 400°C - 1h provocou o aparecimento de um único pico, porém sua altura apresentou uma tendência de diminuição a cada ciclo. O terceiro tratamento térmico estudado foi o de 400°C - 1h + 100°C - 2h, que parece ser o mais adequado dentre os três estudados, apesar de causar uma diminuição drástica de fator dois na altura do pico após o 3º ciclo. No entanto, a altura do pico se mantém constante do 3º ao 5º ciclo para as quatro amostras pesquisadas, e ainda com sensibilidade razoável. O único pico que aparece também está com seu máximo na região de temperatura adequada para fins dosimétricos.

A etapa seguinte foi a pesquisa da concentração ideal de Mg e Cu no LiF dentre as 14 amostras fornecidas pelo Prof. T. Nakajima, para fins dosimétricos. Para a dosimetria da radiação ionizante é desejável que o detector apresente alta sensibilidade a essa radiação, porém baixa à radiação ultravioleta. Isso porque, na maior parte dos cristais iônicos, a radiação ultravioleta tem energia suficiente somente para transferir portadores de carga de armadilhas profundas para as mais rasas, uma vez que o intervalo de energia entre as bandas de valência e de condução desses cristais é da ordem de 10 eV. Dessa forma, armadilhas preenchidas expondo os cristais à radiação ionizante, podem ter seus portadores de carga liberados quando iluminadas com radiação ultravioleta (proveniente da luz ambiente, principalmente durante as manipulações) e como consequência final a dose pode ser subestimada, o que é altamente indesejável. Nessa etapa usamos sempre cristais virgens (como recebidos) tratados a 400°C - 1h + 100°C - 2h.

Começamos definindo as curvas de emissão das 14 amostras de LiF:

- a. irradiadas com a radiação gama de ^{137}Cs com uma exposição de 0,26 mC/kg;
- b. irradiadas com a radiação UV de uma lâmpada a vapor de mercúrio de alta pressão com uma exposição radiante de 0,4 J/cm²;
- c. irradiadas com a radiação gama de ^{137}Cs com uma exposição de 0,26 mC/kg e a seguir irradiadas com a radiação UV de uma lâmpada a vapor de mercúrio de alta pressão com uma exposição radiante de 0,4 J/cm².

Como queríamos comparar todas as curvas de emissão, fomos muito cuidadosos em todos os procedimentos: recozimento, exposição e leitura TL, procurando sempre manter as mesmas condições e os mesmos parâmetros. A determinação do erro envolvido em uma medida e em um conjunto delas foi fundamental para definir as flutuações dos valores médios calculados e dar sentido às nossas análises.

As temperaturas de máximo dos picos TL das 14 amostras expostas, seguindo os itens a, b, e c estão relacionadas nas tabelas 7.1, 7.2 e 7.3. Vamos comentar resumidamente o conteúdo da tabela 7.1 que contém os dados mais impor-

tantes das 10 amostras. As curvas de emissão das amostras de LiF(Mg) e LiF(Mg,Cu) quando expostas à:

a. radiação gama apresentam um único pico em $(242 \pm 4)^\circ\text{C}$;

b. radiação UV apresentam três picos, sendo os dois primeiros em $(102 \pm 3)^\circ\text{C}$ e $(168 \pm 4)^\circ\text{C}$ e o terceiro, em geral, como ombro do segundo, na temperatura coincidente com o pico da amostra exposta a raios gama. Essa foi uma primeira surpresa, pois não esperávamos que amostras de LiF previamente recozidas apresentassem picos devidos à radiação UV. Esse resultado é uma indicação de que os dopantes Mg e Cu são os responsáveis pela provável diminuição do intervalo de energia entre as bandas de valência e de condução, a ponto da radiação UV ter energia suficiente para preencher diretamente as armadilhas. Outra peculiaridade é que a radiação UV preenche preferencialmente armadilhas mais rasas que as profundas que são preenchidas pela radiação gama;

c. radiação gama e a seguir à radiação UV apresentam três picos, sendo os dois primeiros devidos à radiação UV e o terceiro à radiação gama.

Tabela 7.1. Temperaturas médias dos máximos dos picos TL das amostras de LiF(Mg,Cu) recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e expostas à radiação gama, UV e gama + UV.

Amostras	Radiação	Pico I	Pico II	Pico IV
LiF(Mg) e LiF(Mg,Cu)	γ			(242±4)°C
	UV	(102±3)°C	(168±4)°C	(242±10)°C
	γ +UV	(99±4)°C	(163±4)°C	(244±4)°C
Temperatura Média		(100±3)°C	(165±3)°C	(242±4)°C

Tabela 7.2. Temperaturas médias dos máximos dos picos TL das amostras de LiF(Cu) recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e expostas à radiação gama, UV e gama + UV.

Amostras	Radiação	Pico I	Pico II	Pico III
LiF(Cu)	γ		(182±6) °C*	(203±6) °C*
	UV	(102±3) °C	(153±5) °C*	
	γ +UV	(102±6) °C	(149±7) °C	(202±6) °C
Temperatura Média		(102±4) °C	(152±4) °C	(203±5) °C

* Alguns ombros

Tabela 7.3. Temperaturas médias dos máximos dos picos TL da amostra de LiF recozidas a 400°C - 1h + 100°C - 2h e exposta à radiação gama, UV e gama + UV.

Amostras	Radiação	Pico I	Pico II	Pico III
S ₀₀ (Mgφ; Cuφ)	γ		(182±10)°C	(199±10)*°C
	UV	(118±9)°C		
	γ+UV	(117±10)°C		(202±10)°C
Temperatura Média		(118±7)°C		(200±7)°C

* Ombro

Analizando agora, do ponto de vista da dosimetria TL da radiação ionizante, os resultados do nosso trabalho indicam que a dopagem do LiF com Mg é essencial para se obter um único pico TL e em uma faixa de temperatura interessante. Já a dopagem do LiF somente com Cu propicia o aparecimento de picos TL baixos em temperaturas baixas e pouco diferenciados à medida que a sua concentração é aumentada, quando comparados com amostras dopadas com Mg + Cu. Observa-se também uma tendência de diminuição da sensibilidade à radiação gama para LiF(Mg,Cu) com o aumento da concentração de Cu, para uma mesma concentração de Mg, com uma exceção para a amostra com 0,4 mol% de Mg (S_{33} e S_{32}). Quanto à concentração de Mg de 0,1 a 0,4 mol%, os melhores resultados são obtidos com 0,2 mol%. Entre as amostras estudadas, a mais sensível à radiação ionizante foi a S_{10} , com 0,1 mol% de Mg e sem Cu, seguida pelas S_{11} e S_{21} com 0,1 e 0,2 mol% de Mg respectivamente e mais 0,03 mol% de Cu (fig. 4.6). Fazendo uma comparação grosseira, devido à diferença na massa e na forma, entre a sensibilidade do LiF-TLD-100 (paralelepípedo) (fig. 2.7), e a das amostras S_{10} , S_{11} e S_{21} , recozidos, irradiados e lidos em idênticas condições, podemos afirmar que as últimas são de 4 a 6 vezes mais sensíveis que o TLD-100.

A sensibilidade à radiação ultravioleta encontrada em todas as amostras, a princípio, é uma propriedade incômoda, pois acarreta cuidados extras para o seu uso em dosimetria pessoal. Descobrimos, entretanto, que essa propriedade pode ser usada a nosso favor pelo que segue. Os picos TL que aparecem em nossas amostras quando expostas à radiação UV estão com os seus máximos localizados em temperaturas distintas da de máximo do pico TL devido aos raios gama. As exceções a isso ocorrem claramente para as amostras S_{21} e S_{33} , que apresentam, além dos picos I_U e II_U , o pico III_U quando expostas à radiação UV na mesma faixa de temperatura do pico IV_G , que surge nas amostras quando expostas só a radiação gama. Nas amostras S_{11} , S_{12} , S_{22} , S_{23} , S_{01} e S_{02} também encontramos algum sinal TL nessa mesma região de temperatura, indicando a existência desse terceiro pico. É importante ressaltar que não só as alturas do pico III_U , mas também a dos picos I_U e II_U são muito pequenas quando comparadas com a altura do pico IV_G dessas amostras quando expostas à 1 R. Nas amostras estudadas, a

sensibilidade dos picos TL à radiação UV, de uma forma geral, tende a ser menor para as amostras com maior concentração de Cu na faixa de 0,0 a 0,12 mol% e com menor concentração de Mg na faixa de 0,1 a 0,4 mol%. O resultado mais surpreendente se refere ao fato da altura do pico IV_{GU} devido aos raios gama para quase todas as amostras não sofrer nenhuma alteração em uma posterior exposição à radiação UV, dentro dos erros experimentais. A exceção a isso ocorreu para a amostra S_{23} (0,2 mol% de Mg e 0,12 mol% de Cu) cuja altura do pico IV_{GU} (fig. 5.6) é maior que a altura desse mesmo pico quando a amostra é exposta só aos raios gama (fig. 4.6). Já a amostra S_{00} (sem Cu e Mg) apresentou um comportamento diferente das outras, pois a altura do pico III, que aparece quando é exposto à radiação gama, diminui quando a amostra é exposta depois à radiação UV (fig. 4.5 e 5.5). Levando em conta essas considerações podemos concluir que as amostras de LiF dopadas com Mg e Cu, em especial, as S_{11} e S_{21} , podem ser usadas como detectores das radiações ionizante e ultravioleta simultaneamente, embora para esta última a sensibilidade seja bastante baixa.

Finalmente, foi feita uma análise empírica do efeito das impurezas de Mg e Cu na sensibilidade da amostra aos raios gama. Todas as alturas do pico IV_G em função da concentração K_{Liq} de Mg puderam ser ajustadas por uma curva empírica. Foi observado que a dopagem do LiF com Cu juntamente com Mg diminui à proporção de Mg responsável pela TL. Uma conclusão importante que pode ser tirada dessa análise é a possibilidade de crescer no laboratório LiF(Mg,Cu) bastante sensível à radiação ionizante e reprodutível com as concentrações nominais de Cu de 0,01 a 0,03 mol% e respectivamente de 0,10 a 0,17 e 0,25 a 0,28 mol% de Mg.

7.2. Sugestões para futuros trabalhos.

Apesar de termos cumprido os objetivos aos quais nos propusemos neste trabalho, que teve caráter essencialmente experimental, o estudo das amostras de LiF dopadas com Mg e Cu oferece ainda um vasto campo de estudo, tanto na direção de conhecimento das suas propriedades para aplicação em dosimetria, quanto

na compreensão dos fenômenos físicos envolvidos. Nesse sentido pensamos em várias sugestões:

- a. estudo do decaimento TL dos picos para diversas temperaturas e umidades relativas;
- b. estudo comparativo da sensibilidade TL dos LiF(Mg,Cu) com o LiF TLD-100 em pó da Harshaw Co. e outros;
- c. estudo das dependências da resposta TL com a exposição e com a energia da radiação;
- d. estudo do espectro de emissão TL em função da exposição à radiação gama e à radiação ultravioleta;
- e. continuação dos estudos dos tratamentos térmicos, examinando sistematicamente os efeitos das temperaturas e dos tempos de recozimento, para encontrar um tratamento inicial que estabilize de vez a resposta TL para os ciclos sucessivos;
- f. empastilhamento do LiF(Mg,Cu) em forma de pó com um aglutinante conveniente para obtenção de dosímetro sólido;
- g. estudo do desempenho do dosímetro sólido elaborado com o LiF(Mg,Cu), como dosímetro para radiações UV e gama na rotina;
- h. estudo utilizando outras técnicas experimentais para associar as impurezas e os defeitos aos picos das curvas de emissão;
- i. aperfeiçoamento do modelo empírico que explique o papel das impurezas (quantidade e tipo) e a interação Mg-Cu, após uma análise laboratorial da concentração efetiva de impurezas incorporadas.

REFERÊNCIAS

- (BHA-89) BHATT, B. C., SHINDE, S. S. and BHATT, R. C., "Comparative dosimetric studies of three LiF TL phosphors", Radiat. Protect. Dosim., 27, 1 (1989).
- (BHAT-89) BHATT, R. C., BHATT, B. C., SHINDE, S. S. and NAMBI, K. S. V., "Relative efficiencies of TL peaks in LiF:Mg,Ti, LiF:Mg,Cu, and LiF:Mg,Cu,P for alpha and beta radiations", Proceed. of the 9th International Conference on Solid State Dosimetry, Vienna (1989).
- (BLA-73) BLAK, A. R. ESTUDO DAS PROPRIEDADES DOS PICOS TL 4, 5 E 6 NO LiF:Mg. - Tese de mestrado, IFUSP, (1973).
- (BOS-88) BOS, A. J. J. and DIEHLHOF, J. B., "Does the most sensitive TL material come from China? Some characteristics of LiF:Mg,Cu,P (GR-200) TL chip", Symp. on TL Dosimetry, Natl. Inst. Public Health and Environmental Protect., Bilthoven, (1988).
- (CAL-73) CALDAS, L. V. E. TERMOLUMINESCÊNCIA RÁDIO E FOTOES-TIMULADA DO LiF:Mg. - Tese de mestrado, IFUSP, (1973).
- (CAM-68) CAMEROM, J. R. and SUNTHARALINGAM, N. K., Thermoluminescence Dosimetry, The University of Wisconsin Press (1968)
- (CRU-72) CRUZ, M. T. PROPRIEDADES TERMOLUMINESCENTES DA FLUORITA BRASILEIRA DE COLORAÇÃO VIOLETA. - Tese de doutorado, IFUSP, (1972).
- (DEW-83) DEWERD, L. A., CAMERON, J., WU, D-K, PAPINI, T. and DAS, I. J., "Characteristics of a new dosimeter material", Radiat. Protect. Dosim., 6, 350 (1983).
- (DIF-82) DIFFEY, B. L., Ultraviolet Radiation in Medicine, Great Britain (1982).
- (HOR-90) HOROWITZ, Y., "New thermoluminescent materials", Radiat. Protect. Dosim., 30, 2 (1990).
- (ICRP-26) Publication 26. Radiation Protection, Recommendations of the International Commission on Radiological Protection, Oxford, Pergamon Press, (1977).

- (JAI-82) JAIN, V. K., "Thermoluminescence of Lithium Fluoride", Radiat. Protect. Dosim., 2, (1982).
- (McK-84) McKEEVER, S. W. S., "Thermoluminescence in the alkali halides", Radiat. Protect. Dosim., 8, 1/2 (1984).
- (MOR-70) MORATO, S. P. MODELO CONTÍNUO PARA ARMADILHAS TERMOLUMINESCENTES. - Tese de mestrado, IFUSP, (1970).
- (NAK-78) NAKAJIMA, T., MURAYAMA, Y., MATSUZAWA, T. and KOYANO, A., "Development of a new, highly sensitive LiF TL dosimeter and its applications". Nucl. Inst. Meths., 157, 155 (1978).
- (NAK-79) NAKAJIMA, T., MURAYAMA, Y. and MATSUZAWA, T. "Preparation and dosimetric properties of a highly sensitive LiF TL dosimeter". Health Phys., 36, 79 (1979).
- (OKU-71) OKUNO, E. Propiedades Termoluminescentes do Fluoreto de Cálcio Natural. Tese de doutorado, IFUSP, (1971).
- (OKU-88) OKUNO, E. RADIAÇÃO: Efeitos Riscos e Benefícios. editora HARBRA Ltda, (1988).
- (OKU-90) OKUNO, E. comunicação interna.
- (PHI-85) PHILIPS. Lâmpadas e Reatores, série iluminação (1985).
- (SHA-82) CHANDRA, B., LAKSHMANAN, A. R., BHATT, R. C. and VOHRA, K. G., "Annealing and re-usability characteristics of LiF (Mg,Cu,P) TLD phosphor", Radiat. Protect. Dosim., 3, 161 (1982).
- (SHA-83) SHANDRA, B., PRADHAN, A. S., LAKSHMANAN, A. R., and BHATT, R. C., "Dosimetric characteristics of thermoluminescent LiF (Mg,Cu,P) phosphor", Radiat. Protect. Dosim., 6, 89 (1983).
- (SHO-86) SHOUSHAN, W., GUOLONG, C., FANG, W., YUANFANG, ZIYANG, Z. and JIANHUAN, Z., "New developed highly sensitive LiF(Mg,Cu,P) TL chips with high signal-to-noise ratio", Radiat. Protect. Dosim., 14, 223 (1986).

- (STO-75) STOEBE, T. G. and WATANABE, S., "Thermoluminescence and lattice defects in LiF", Phys. Stat. Sol. (a), 20, (1975).
- (SVA-65) SVARCER, V. and FOWLER, J.F. "Spurious thermoluminescence and tribothermoluminescence in lithium fluoride dosimetry power". Attix, H.F., Luminescence dosimetry, Proceedings of International Conference on Luminescence Dosimetry, Stanford, (1965), 227-235.
- (TAK-88) TAKATOHI, U. E. Propriedades Termoluminescentes da Calcita de Fóssil de Peixe da Bacia de Araripe CE-tese de mestrado, IFUSP (1988).
- (TRZ-85) TRZESMIAK, P. DOSÍMETROS TERMOLUMINESCENTES SÓLIDOS À BASE DE FLUORITA NATURAL - Tese de mestrado, IFUSP, (1985).
- (WAT-69) WATANABE, S. PROPRIEDADES DE TERMOLUMINESCÊNCIA DO LiF:Mg - Tese de livre docência, IFUSP, (1969).
- (WU-84) Wu, D-K., SUN, F-Y. and DAI, H-C., "A high sensitivity LiF thermoluminescent dosimeter LiF(Mg,Cu,P)". Health Phys., 46, 1063 (1984).
- (YOS-80) YOSHIMURA, E. M. Determinação Simultânea de Dose e Energia Efetiva de Raio X com Dosímetros Termoluminescentes de Fluorita Natural - tese de mestrado, IFUSP, (1980).
- (ZAN-72) ZANETIC, J. DEPENDÊNCIA DA RESPOSTA TERMOLUMINESCENTE COM A TAXA DE EXPOSIÇÃO. Tese de mestrado, IFUSP, (1972).