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

**Dosimetria termoluminescente de altas doses de raios gama, raios beta, feixe de
prótons e de nêutrons epitérmicos utilizando minerais naturais de silicatos e
dosímetros de LiF: Mg, Cu, P (MCP)**

Lucas Sátiro do Carmo

**Dissertação apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Mestre em Ciências na Área de
Tecnologia Nuclear – Aplicações**

**Orientador:
Prof. Dr. Shiguo Watanabe**

**São Paulo
2015**

“Adoramos a perfeição, porque não a podemos ter; repugna-la-íamos se a tivéssemos. O perfeito é o desumano porque o humano é imperfeito.”
(Fernando Pessoa)

AGRADECIMENTOS

Aos meus pais e á minha família pelo apoio que sempre me deram para que eu continuasse meus estudos.

Ao Prof. Dr. Shiguelo Watanabe, que há mais ou menos 4 anos atrás eu conhecera e me daria a oportunidade de ver tantas coisas dessa vida e de seguir uma carreira diferente.

Ao IPEN e a todo o departamento de ensino pela oportunidade de realizar este trabalho.

À Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Ensino Superior (CAPES) pela bolsa de mestrado concedida.

Às Dr^{as} Carmen C. Bueno e Bárbara Obryk (IFJ, Krakow, Poland) pela importante ajuda e contribuição que tornaram possível a realização de parte deste trabalho.

Aos engenheiros Carlos Gaia e Elisabeth Somessari pela importante ajuda com as irradiações das amostras utilizadas neste trabalho.

Ao professor Dr. Luiz Tomaz Filho que se tornou um grande amigo e foi um grande incentivador para que eu continuasse minha formação acadêmica.

Aos amigos do LACIFID pela parceria, companhia e momentos de descontração e nos conselhos que me foram ofertados.

Aos amigos de Ribeirão Pires e aos amigos da turma de intercâmbio cultural pelos ótimos momentos que carregarei pelo resto da vida.

**DOSIMETRIA TERMOLUMINESCENTE DE ALTAS DOSES DE RAIOS GAMA,
RAIOS BETA, FEIXE DE PRÓTONS E DE NÊUTRONS EPITÉRMICOS
UTILIZANDO MINERAIS NATURAIS DE SILICATO E DOSÍMETROS DE
LiF:Mg, Cu, P (MCP).**

Lucas Sátiro do Carmo

RESUMO

No mundo de hoje, onde o uso da radiação de diversas naturezas está generalizado, a quantificação da energia depositada por essas diferentes radiações se tornou uma atividade de grande importância, principalmente quando a faixa de energia é considerada elevada, estas altas energias de radiação estão presentes, geralmente, em aceleradores de partículas, reatores nucleares e em irradiadores industriais, por exemplo. Este trabalho tem como objetivo medir altas doses de radiação de raios gama, feixes de elétrons e feixes de prótons utilizando duas variedades de um silicato natural (água-marinha e goshenita) e medir altas doses de nêutrons epitérmicos de alta fluência utilizando dosímetros de Fluoreto de Lítio dopados com Mg, Cu e P (MCP). A técnica utilizada para medir a dose absorvida por esses materiais foi a termoluminescência. As irradiações com raios- γ provenientes de fontes de ^{60}Co foram de 100 kGy a 2000 kGy para a água-marinha e de 600 kGy a 2000 kGy para a goshenita, os resultados de intensidade TL vs Dose mostram que a partir de certa dose - 250 kGy e 1234,8 kGy para água-marinha e goshenita, respectivamente - o sinal TL começa a decrescer. Foi observado neste trabalho que, estes materiais quando irradiados com tais doses e posteriormente irradiados com doses baixas de alguns Gy's até cerca de 400-500 Gy, o sinal TL decresce regularmente, podendo ser utilizado na dosimetria das radiações nessa faixa de dose. Para a irradiação de feixe de prótons e de feixe de elétrons foram utilizados dosímetros em placa de goshenita e dosímetros de pastilhas de água-marinha, a carga do feixe de prótons vai de 20 a 216 μC e a dose do feixe de elétrons vai de 10 kGy a 70 kGy. As irradiações com nêutrons epitérmicos utilizando LiF: Mg, Cu, P foram realizadas no reator IEA-R1/IPEN com fluências de 10^{14} a 10^{17} n/cm² e a quantificação das doses absorvidas foram realizadas utilizando o método UHTR (Ultra High Temperature Ratio).

HIGH-DOSE THERMOLUMINESCENT DOSIMETRY OF GAMMA RAYS, BETA RAYS, PROTON BEAMS AND EPITHERMAL NEUTRONS USING NATURAL SILICATE MINERALS AND LiF: Mg, Cu, P (MCP) DETECTORS

Lucas Sátiro do Carmo

ABSTRACT

In the present days the usage of ionizing radiation from several different sources is spread all over the world. The measurement of the absorbed energy from these radiations became a very important task, mainly when the dose range is considered being in a very high level. These high energies of radiation are associated with particles accelerators, nuclear reactors and industrial irradiators, for example. This work is concerned for measuring high-doses of gamma radiation, electron beams and proton beams using two varieties of a natural silicate (aquamarine and goshenite) and measuring effects of high-fluence neutrons using LiF: Mg, Cu, P (MCP) detectors. Thermoluminescence was employed to measure the absorbed dose for irradiations with gamma rays ranging from 100 kGy up to 2000 kGy for aquamarine and from 600 kGy and 2000 kGy for goshenite. The TL intensity reaches maximum at 250 kGy in aquamarine and at 1234 kGy for goshenite; this means that for doses larger than 250 kGy in aquamarine and 1234 kGy in goshenite the TL intensity drops. However, the descending part can be used in very high dose dosimetry. Furthermore, has been observed in this study that starting with aquamarine irradiated with 250 kGy and goshenite with 1234 kGy, the subsequent irradiation with doses from low to 400-500 Gy produces a regularly decreasing TL intensity, so that it can be used in radiation dosimetry from low to 400-500 Gy doses. For proton beams, goshenite were used. The beam charge ranges from 20 a 216 μC . For electron beams small pressed pellets of aquamarine were used. The dose ranges from 10 kGy to 70 kGy. The epithermal neutron irradiation was performed at IEA-R1 research reactor at IPEN and MCP-LiF detectors were used to measure the absorbed dose. A method called UHTR (Ultra High Temperature Ratio) was employed for calculating the amount of energy absorbed by the dosimeter. The fluence of epithermal neutrons ranges from 10^{14} a 10^{17} n/cm².

Sumário

1.Introdução	7
2.Deteccção da Radiação	13
2.1. Radiação eletromagnética (fótons).....	14
2.1.1. Efeito fotoelétrico	15
2.1.2. Espalhamento Compton	16
2.1.3. Produção de pares.....	17
2.2. Partículas Carregadas.....	18
2.2.1. Elétrons	18
2.2.2. Partículas pesadas carregadas (10 keV à 10 MeV)	19
2.3. Nêutrons	20
3. Detectores de radiação.....	22
3.1. Detectores à gás.....	22
3.2. Calorímetro	23
3.3. Detectores semicondutores	23
3.4. Detectores luminescentes	24
3.4.1. Bandas de Energia.....	24
3.4.2 Cristais Reais e Defeitos.....	26
3.4.3. Termoluminescência (TL) e Luminescência Opticamente Estimulada (LOE)	27
4. Objetivos	29
5. Histórico da Dosimetria Termoluminescente (TDL).	30
6. Materiais	33
6.1 - Cristais naturais de silicatos	33
6.1.1 - Berilo	34
6.2 - Fluoreto de Lítio (LiF) dopado.	36
7. Procedimentos Experimentais.....	37
7.1. Equipamentos utilizados.....	37
7.2. Preparação das amostras.....	41
7.2.1 Berilo: irradiações com raios-γ.....	41
7.2.2 Berilo: irradiação com feixe de prótons.....	42
7.2.3 Berilo: irradiação com feixe de elétrons.....	42
7.2.4 Dosímetros de LiF (Fluoreto de Lítio): irradiação com nêutrons epitérmicos.....	43
8. Resultados	47
8.1 Irradiação com raios-γ.....	47
8.2. Irradiação com feixe de prótons	49
8.3. Irradiação com feixe de elétrons.....	50
8.4. Intensidade TL x Dose.....	53
8.4.1. Água-marinha: Raios-gama	53

8.4.2. Goshenita: raios- γ	57
8.4.3 Água-marinha: feixe de elétrons.	59
8.4.4. Goshenita: feixe de prótons.	61
8.5. Dosimetria utilizando intensidade TL decrescente.	62
8.5.1. Fading – Decaimento espontâneo	63
8.6. Pastilhas de LiF dopadas.	64
8.7. Detecção de nêutrons epitérmicos e rápidos	67
8.7.1. Estimativa de dose de raios gama no reator IEA-R1 durante a irradiação de MCP's com nêutrons epitérmicos.	72
8.8. Comentários adicionais sobre os detectores de LiF.	79
9. Conclusões	82
9.1 Minerais naturais de silicato (berilo) para dosimetria da radiação	82
9.2 Dosimetria de nêutrons epitérmicos utilizando detectores de LiF	83
10. Bibliografia	84

1. Introdução

Os raios-X foram descobertos por Wilhelm Conrad Röntgen em dezembro de 1895. Já era professor da Universidade de Wurzburg, na Alemanha e, como muitos físicos na Europa, estava, também, estudando o que acontece no tubo de raios catódicos, mais conhecido como tubo de Crookes. No interior deste tubo se fazia um vácuo muito alto, em uma extremidade havia um filamento que, quando aquecido liberava elétrons perto da superfície pelo efeito termiônico. Então, uma tensão da ordem de milhares de volts era aplicada entre o filamento e uma placa posicionada do lado oposto que acelerava os elétrons emitidos pelo efeito termiônico, produzindo os raios catódicos. Röntgen cobriu a parede do tubo atrás do catodo com uma folha de papelão escurecido. Quando produziu os raios catódicos observou que num anteparo de material fosforescente a aproximadamente um metro distante, a placa fosforesceu misteriosamente. (Cesareo, 2010)

Röntgen sabia que os raios catódicos no ar não sobrevivem além de alguns centímetros de distância. Então, ele percebeu que os raios catódicos incidindo sobre a parede do tubo estavam produzindo uma radiação até então desconhecida que produzia a fosforescência no anteparo. No comunicado do resultado ele chamou a radiação de “X-strahlen” – radiação-X. (Cesareo, 2010)

Hoje sabemos que os raios-X descobertos por Röntgen são produzidos na matéria de duas maneiras:

- 1) Quando um feixe de elétrons acelerados passa perto de um núcleo pesado, podem sofrer um freamento, o que produz um raio-X chamado de bremsstrahlung.

- 2) Quando um fóton é absorvido por elétrons de camadas mais internas do átomo (camada K), os elétrons são expulsos deixando uma lacuna, então começa o processo de preenchimento dessa lacuna (busca de equilíbrio) por elétrons de camadas superiores. Nesse processo, o elétron substituto perde energia para ocupar o nível mais interno na forma de raio-X. Dependendo da camada de onde vem o elétron que vai ocupar a lacuna da camada K, teremos a produção de raios-X de energias diferenciadas. (Cesareo, 2010)

Por esta descoberta Röntgen recebeu em 1901, o prêmio Nobel, aliás, o primeiro que estava sendo concedido.

A partir da descoberta dos raios-X e de que alguns filmes ficavam impressionados quando irradiados, foi tirada a primeira radiografia da história, a da mão da esposa de Röntgen, em 1895.

Não tardou muito para se perceber que a radiação X produzia efeitos negativos sobre o tecido humano, o que fez com que os cientistas envolvidos no estudo dos raios-X se preocupassem com a proteção a esta radiação.

A descoberta, não muito tempo depois, da radioatividade por Henri Becquerel e trabalho subsequente de Madame Curie isolando o polônio, o rádio e o tório despertaram, de um lado, o grande interesse na radioatividade, de outra direção crescia a preocupação pela proteção contra os efeitos da radiação sobre as pessoas envolvidas. (Cesareo, 2010)

Nesse sentido, as medidas das intensidades das radiações, não só a de raios-X, mas daquelas provenientes da radioatividade passaram a ocupar um espaço muito importante.

A intensidade, na ideia do parágrafo acima, passou a ser quantificada através da energia que a radiação deposita sobre o material orgânico ou inorgânico e a grandeza que a descreve foi, depois, chamada de dose absorvida, definida pela energia depositada por unidade de massa. Dessa maneira, um Joule de energia depositado em um quilograma de material recebeu o nome de Gray ($1 \text{ Gy} = 1 \frac{\text{J}}{\text{kg}}$). (Cesareo, 2010).

Originalmente, outras unidades tinham sido introduzidas como o rad e o Roentgen que, hoje, não são mais utilizadas. (Hine & Brownell, 1956)

Como, desde o começo, foi observado o enegrecimento de uma emulsão fotográfica pelos raios-X e radiações provenientes da radioatividade, as chapas fotográficas foram usadas na detecção dessas radiações e na sua quantificação. Hoje, contudo, só se utilizam as emulsões fotográficas para realizar radiografias de pacientes em hospitais e em consultórios de odontologia, pois seu uso para medir doses de radiação entrou em desuso, embora, em alguns trabalhos, o uso desses filmes para a dosimetria ainda seja reportado. (Hine & Brownell, 1956)

Voltando as descobertas de raios-X e radioatividade em 1895 e 1896, respectivamente, é interessante retomar a história da Física nesse período.

Em 1897, J.J Thompson, também trabalhando com tubo catódico, identificou uma partícula elementar de carga elétrica negativa e de massa cerca de 1845 vezes menor do que a massa do átomo de hidrogênio e que foi chamado de elétron. A

partir daí, ele pode concluir que os raios catódicos eram, na verdade, um feixe de elétrons acelerados. (Cesareo, 2010).

Em 1898, Maria Sklodowska, que se casou com Pierre Curie, trabalhou com minérios de urânio descobertos por Becquerel e conseguiu isolar o tório. Continuando seus trabalhos, isolou um novo elemento, ao qual deu o nome de polônio em homenagem ao seu país de origem. A sequência do árduo trabalho levou o casal Curie à descoberta de outro elemento fortemente radioativo, o RADIUM (rádio). (Cesareo, 2010).

Em 1903, juntamente com H. Becquerel, Marie Curie (Maria Sklodowska) recebeu o prêmio Nobel de Física. Em 1911 foi lhe atribuído outro prêmio Nobel, desta vez de Química.

Em 1911, Ernest Rutherford descobriu o que ficou conhecido como radiação α e radiação β . A emissão α é um efeito de repulsão Coulombiana que ocorre dentro do núcleo atômico, este efeito se torna mais importante em núcleos pesados porque as forças repulsivas no núcleo aumentam. O núcleo de ${}^4\text{He}$ é escolhido como o agente do processo devido ao seu sistema fortemente ligado e, assim, a energia cinética liberada no decaimento é maximizada. (Krane, 1988) (Tauhata et al, 2014)

O processo é:

No processo de decaimento beta o excesso de prótons ou de nêutrons pode ser corrigido diretamente convertendo um próton em um nêutron ou um nêutron em um próton. Como exemplo, podemos citar as reações:

Logo depois Paul Nillard mostrou que havia uma radiação eletromagnética que emanava destes materiais e que foi chamada de raios- γ . Esta emissão acontece pelo fato da maioria dos decaimentos α e β deixarem o núcleo final em um estado excitado. Estes estados excitados decaem rapidamente para o estado fundamental através da emissão de um ou mais raios γ . (Cesareo, 2010) (Hine & Brownell, 1956)

Não tardou para descobrirem que as partículas α penetram muito pouco na matéria (cerca de 10 cm no ar e poucos μm na matéria), os raios β penetravam um pouco mais e viajam alguns centímetros no ar (o alcance no Al é da ordem de 5 mm), os raios- γ , por outro lado, tem um poder de penetração muito maior (alcance de 10 cm no Pb; 50 cm no aço; 10 m na água) e que, todas as três radiações causavam danos nos tecidos humanos, reforçando a necessidade de proteção além de saber medir a energia que elas depositavam na matéria. (Tauhata et al, 2014)

Em 1911, Rutherford realizou uma série de experiências de espalhamento de partículas α em uma folha muito fina de ouro. Mostrou que num átomo quase toda sua massa está concentrada numa região de cerca de 10^{-14} m, carregada positivamente e que recebeu o nome de núcleo. Rutherford propôs, então, um modelo de átomo constituído de um núcleo e os elétrons orbitando em torno dele. (Cesareo, 2010)

Havia, porém, uma grande incongruência no modelo de átomo de Rutherford. A massa de um átomo era quase o dobro da massa dos prótons do núcleo. O próprio Rutherford sugeriu a existência de partículas neutras no núcleo, mas, na época, não havia nenhuma evidência experimental.

No final do ano 1930, Walther Bothe irradiou elementos leves com raios- α de polônio, obtendo uma radiação muito mais penetrante do que os mais penetrantes raios- γ . Considerou que essa radiação fosse raios- γ mais penetrantes. Em 1931 o casal Irène Curie e Frederic Joliot repetiu a experiência de Bothe, usando raios- α de polônio, muito mais intensos dessa vez. (Cesareo, 2010)

Colocando um bloco de parafina observaram a emissão de prótons de alta energia. James Chadwick repetiu as experiências de Bothe-Curie-Joliot colocando ao longo desses raios de alta energia, alvos de diferentes elementos leves. Medindo as energias das partículas emergentes e através de cálculos mostraram que as supostas radiações gama, como se pensou no início, deveriam ser, na verdade, partículas neutras com massa quase igual à dos prótons. Estava descoberta a partícula neutra, que recebeu o nome de nêutron. (Cesareo, 2010)

Em 1935, Chadwick recebeu o prêmio Nobel de Física, na mesma sessão em que o casal Joliot-Curie recebeu o prêmio Nobel de Química.

O ano de 1934 foi memorável para a história da física nuclear. O casal Joliot-Curie bombardearam boro e alumínio com partículas α e obtiveram isótopos

radioativos de nitrogênio e fósforo. Tinham descoberto a radioatividade artificial. A possível reação que aconteceu com o alumínio pode ser expressa assim:

Um número grande de pesquisadores interessados na radioatividade induzida realizou diversas experiências dessa natureza. Enrico Fermi era um destes e mostrou que bombardeando núcleos pesados com nêutrons é possível obter radionuclídeos pesados; por este trabalho recebeu o prêmio Nobel de Física em 1938. (Cesareo, 2010)

Emílio Segrè, complementando o trabalho de Fermi chegou à produção de elementos transurânicos de Z maior que 92. (Cesareo, 2010)

Em 1934, Lise Meitner trabalhando com Otto Hahn apresentou a hipótese de que na reação de nêutrons com núcleos pesados, os nêutrons lentos teriam uma probabilidade maior de reagirem. Poucos dias depois, os experimentos históricos usando nêutrons térmicos foram realizados. Estes eram obtidos desacelerando nêutrons rápidos na parafina, porém, só obtinham como resultado um aumento da radioatividade. A partir desse experimento de Fermi, O. Hahn e L. Meitner iniciaram um trabalho sistemático para obter produtos da irradiação do urânio com nêutrons lentos. Em 1938, Otto Hahn e Fritz Strassman, por uma análise química cuidadosa, mostraram que um dos elementos radioativos produzidos bombardeando o urânio com nêutrons lentos era o ${}_{36}^{141}\text{Ba}$. Em 1939, Otto Frish e Lise Meitner calculando as massas e energias envolvidas concluíram que o urânio estava sofrendo a *fissão nuclear* e que, além de bário, ${}_{36}^{92}\text{Kr}$ era produzido na fissão do urânio. (Cesareo, 2010)

Todas as descobertas com relação aos raios-X, aos elementos radioativos e as reações nucleares não escaparam da criatividade humana e foram (e são até hoje) utilizadas em várias atividades.

A radioterapia, a medicina nuclear e o radiodiagnóstico desempenham importante função para salvar milhões de vidas humanas. Na indústria, a radiação é usada na esterilização de materiais hospitalares, na preservação de alimentos e produtos agrícolas, na modificação das propriedades de madeiras, mudança de cores de pedras preciosas e semipreciosas, produção de radioisótopos, etc. Na pesquisa os grandes aceleradores de partículas carregadas envolvem altas doses

de radiação. A fissão nuclear, de um lado, proporciona a geração de energia, por outro, infelizmente, deu origem a temível bomba atômica. Enfim, nestas e em outras aplicações, a radiação presente sem algum sistema de proteção pode causar danos à saúde humana envolvida.

O crescimento contínuo da dosimetria das radiações juntamente com o grande número de trabalhos produzidos neste campo de pesquisa tem produzido novos materiais capazes de medir uma grande faixa de dose absorvida que pode ir desde alguns μGy até MGy ($1 \text{ Gy} = 1 \text{ J/kg}$).

Hoje, já é possível encontrar materiais que podem ser utilizados como dosímetros de altas doses utilizando, em particular, a técnica de dosimetria termoluminescente que teve origem a partir das pesquisas de Daniel, no Departamento de Química da Universidade de Wisconsin, em 1947. (Bartlett, 2008)

Dentre estes materiais capazes de medir altas doses de radiação utilizando a termoluminescência, podemos mencionar o LiF: Mg, Cu, P (MCP) e alguns minerais naturais de silicatos. (Kortov & Ustyanstev, 2013)

Com relação aos minerais naturais de silicatos, alguns trabalhos tem relatado o uso de tais materiais para a dosimetria de altas doses. Souza, et. al. (2002) desenvolveram dosímetros de topázio ($\text{Al}_2(\text{F,OH})\text{SiO}_4$) incolor com teflon que podem medir doses da ordem de 10^{-4}Gy até 10^5Gy . Barbosa, et. al. (2014) estudaram as propriedades termoluminescentes de duas variedades de um silicato chamado de jadeíta ($\text{NaAlSi}_2\text{O}_6$) e observaram que a variedade verde estudada responde à doses acima de 5 kGy até 50 kGy .

Com relação aos dosímetros de LiF: Mg, Cu, P , Obryk, et. al. (2011) descobriram que tais dosímetros podem medir doses da ordem de MGy além de detectar efeitos causados por irradiações com feixe de nêutrons de altas fluências aplicando um método chamado de UHTR (Ultra High Temperature Ratio).

Em face do desenvolvimento que tem ocorrido na dosimetria de altas doses de diversos tipos diferentes de radiações, este trabalho se propôs a medir altas doses de raios gama, feixe de elétrons e de prótons utilizando duas variedades do silicato berilo (água-marinha e goshenita) além de estudar os efeitos de uma faixa específica de nêutrons ($0,4 \text{ eV} - 0,1 \text{ MeV}$, faixa que compreende os nêutrons epitérmicos) utilizando dosímetros de LiF: Mg, Cu, P .

2. Detecção da Radiação

A detecção da radiação e sua quantificação são necessárias e importantes para a proteção radiológica. Alguns dos problemas mais importantes são:

- 1) Um entendimento do mecanismo do dano causado pela radiação,
- 2) Estabelecimento de níveis apropriados de máximo permissível de exposição à radiação ionizante.
- 3) Desenvolver sistemas práticos de medidas da dose de radiação ionizante.

É importante lembrar que vivemos num ambiente de radiação natural, embora, felizmente, não intensa, mas que induz, segundo especialistas, efeitos a humanidade – 2% dos cânceres em seres humanos são devido à radiação natural. Morgan & Turner (1967) descrevem, extensamente, diversos outros efeitos da radiação natural sobre o homem. Nosso interesse consiste na detecção de radiações, digamos, produzidas artificialmente e, isto irá depender da interação dessas radiações com a matéria.

A radiação, ao atravessar um material, seja este gasoso, líquido ou sólido, se ela tiver bastante energia, produz uma ionização. Uma radiação com essa característica é chamada ionizante, como já vimos na sessão 1.

Em qualquer forma de interação, a radiação incidente deixa parte da sua energia no sólido. Esta energia que foi transferida para a matéria chama-se dose absorvida, cuja unidade no sistema internacional de medidas é:

$$1 \text{ Gy} = \frac{1 \text{ Joule}}{1 \text{ kg}}$$

A energia, como veremos depois, fica armazenada nos elétrons no sólido, e que, posteriormente, pode ser recuperada. Isso possibilitará revelar a quantidade de energia que foi depositada pela radiação incidente. A técnica utilizada que será discutida neste trabalho para recuperar a informação da dose absorvida é a termoluminescência (TL).

A maneira como essas radiações interagem com a matéria é a base para a detecção e dosimetria das radiações ionizantes.

A interação da radiação com a matéria está ligada ao processo de transferência de energia ao meio e pode ocorrer tanto com o núcleo atômico quanto com os elétrons atômicos. (Hine & Brownell, 1956)

Nas sessões seguintes discutiremos a interação de fótons, elétrons, nêutrons e partículas carregadas com a matéria para, posteriormente, entendermos como funciona a detecção e a dosimetria.

2.1. Radiação eletromagnética (fótons).

Quando a radiação eletromagnética atravessa a matéria, elétrons são colocados em movimento dentro do material. A maneira como esses elétrons são colocados em movimento irá depender da energia do fóton. Fótons de energias intermediárias (inferior a 500 keV e $Z < 50$) podem interagir apenas com elétrons fortemente ligados, isto é, aqueles que ocupam posições mais internas do átomo. Fótons de altas energias (acima de 500 keV) podem ejetar elétrons mais fracamente ligados e, finalmente, fótons de altíssimas energias podem interagir com o campo do núcleo atômico. A interação da radiação com a matéria é complexa e a natureza do processo depende da energia do fóton e do número atômico do material (fig. 2.1). (Hine & Brownell, 1956)

Figura 2.1 -Tipo de interação da radiação com a matéria em função do número atômico do absorvedor e da energia da radiação incidente. Adaptado de (Knoll, 2000)

A fig. 2.1 mostra a região de energia e de número atômico Z em que ocorre o efeito fotoelétrico, o efeito Compton e a produção de pares. Para $Z < 50$ o processo fotoelétrico se dá para energia do fóton < 500 keV e o efeito Compton para $Z < 50$ na faixa de energias do fóton de 500 keV a 8000 keV, acima disso tem lugar a produção de pares.

2.1.1. Efeito fotoelétrico

Fótons de baixa energia podem interagir com a matéria por colisão direta entre a radiação e um dos elétrons fortemente ligados. O elétron absorve totalmente a energia fornecida pelo fóton, o elétron se torna livre e tem energia cinética T dada pela equação (2.1), onde $h\nu$ é a energia do fóton e Φ é a energia de ligação. O elétron ejetado do átomo é chamado “fotoelétron”. Se o fotoelétron estiver nas camadas mais internas do átomo, a vacância criada na camada pode ser preenchida por um elétron de uma camada mais externa, ou seja, mais energética. Esse processo culmina na emissão dos chamados raios-x característicos, já citados, ou na emissão de elétrons Auger (fig. 2.2). (Hine & Brownell, 1956) (Reid, 1984)

$$T = h\nu - \Phi \quad (\text{eq. 2.1})$$

O efeito fotoelétrico apenas ocorre quando $h\nu > \Phi$. À medida que a energia da radiação incidente aumenta, elétrons mais internos e, assim, mais fortemente ligados como da camada K, podem participar do processo desde que $h\nu > \Phi_K$.

Figura 2.2– (a) Efeito fotoelétrico e subsequente emissão de raio-X característico. (b) Liberação de um elétron Auger.

De uma maneira geral, o processo fotoelétrico aumenta quando se eleva o número atômico do material absorvedor e a energia da radiação. (Tauhata et al, 2014)

2.1.2. Espalhamento Compton

Enquanto que o efeito fotoelétrico ocorre apenas com elétrons ligados o espalhamento Compton ocorre para elétrons livres ou fracamente ligados. Nesse processo o elétron absorve parte da energia do fóton incidente e esta é suficiente para removê-lo da estrutura atômica tornando-o ionizado. Um fóton de menor energia é produzido e espalhado em uma direção diferente do fóton incidente (fig. 2.3). Uma vez dito que o espalhamento Compton envolve elétrons livres do material, a probabilidade desse efeito ocorrer aumenta com a densidade eletrônica do material alvo. (Hine & Brownell, 1956).

Podemos medir a energia do fóton espalhado calculando a diferença de energia entre o fóton incidente e a soma das energias de ligação do elétron e da energia cinética do elétron ejetado, como é visto na equação (2.2).

$$h\nu' = h\nu_0 - (E_B + E_C) \quad (\text{eq. 2.2})$$

Onde $h\nu'$ é a energia do fóton espalhado, $h\nu_0$ é a energia do fóton incidente, E_B é a energia de ligação do elétron e E_C é a energia cinética do elétron ejetado.

Figura 2.3 - Representação esquemática de um espalhamento Compton.

2.1.3. Produção de pares

A energia associada a um elétron em repouso é $m_0c^2 = 0,511 \text{ MeV}$, onde m_0 é a massa em repouso do elétron e c^2 é o quadrado da velocidade da luz. Fótons com energias maiores que $2m_0c^2 = 1,02 \text{ MeV}$ podem interagir com um núcleo atômico, essa interação causa o desaparecimento do fóton e, dois elétrons, um com carga positiva e outro com carga negativa, aparecem com energia cinética T_+ e T_- (fig. 2.4). Da conservação de energia obtemos:

$$h\nu - 2m_0c^2 = T_+ + T_- \quad (\text{eq.2.3})$$

Assim, quando um fóton de 10 MeV interage em um processo de produção de pares a energia cinética total do pósitron e do elétron ($T_+ + T_-$) é de 9,0 MeV. (Hine & Brownell, 1956)

Figura 2.4– Produção de pares: Fóton interage com o núcleo atômico gerando um par pósitron-elétron.

2.2. Partículas Carregadas.

Neste tópico será abordada a interação de partículas carregadas com a matéria como os elétrons, partículas α e íons pesados acelerados.

2.2.1. Elétrons

Na interação com um meio material, os elétrons perdem sua energia por uma variedade de processos, mas neste trabalho citaremos apenas duas delas:

- a) Colisão com núcleos e elétrons,
- b) Produção de radiação,

A cada colisão o elétron perde grande quantidade de energia cinética e descreve uma trajetória tortuosa (fig. 2.5). (Tauhata et al, 2014)

Um elétron atinge facilmente uma velocidade relativística, de modo que o cálculo da perda de energia nessas colisões precisa considerar a situação relativística. Aqui, iremos apenas mencionar que Bethe & Ashkin (1953) demonstram a perda de energia de elétrons em interação com a matéria.

Nesses trabalhos calcula-se o que se chama de “stopping power”, que é a perda de energia dos elétrons (ou outras partículas carregadas) por unidade de distância ao longo de sua trajetória. (Hine & Brownell, 1956)

Figura 2.5 – Interação de um feixe eletrônico com a matéria. (Tauhata et al, 2014)

Através dessas colisões, alguns elétrons atômicos posicionados nas camadas mais interiores (camadas K, por exemplo) são ionizados deixando uma lacuna naquele orbital que será preenchida por um elétron de uma camada mais exterior, produzindo raios-X característico ou elétrons Auger, como já citado.

Agora, quando a interação desses elétrons acelerados se dá com o campo elétrico de núcleos de número atômico elevado ou com a eletrosfera, eles reduzem a energia cinética, mudam de direção e emitem a diferença de energia sob a forma de ondas eletromagnéticas, denominadas de raios - X de freamento ou bremsstrahlung. Esse tipo de processo tem uma eficiência muito pequena para elétrons de baixa energia (abaixo de 1 MeV). (Hine & Brownell, 1956) (Tauhata et al, 2014).

2.2.2. Partículas pesadas carregadas (10 keV à 10 MeV)

Partículas α e íons pesados acelerados, à medida que penetram na matéria, sofrem colisões e interações com os elétrons do meio perdendo energia até que, a uma dada espessura do material, toda energia é dissipada e a partícula, portanto, para de se deslocar. Ao contrário do que acontece com os elétrons, as partículas pesadas carregadas desenharam uma trajetória praticamente linear no meio absorvedor.

Denomina-se alcance a distância média percorrida por uma partícula carregada em uma dada direção. Distância essa que depende de vários fatores. Quatro dos mais importantes são descritos a seguir:

Energia: O alcance de uma dada partícula é ampliado com o aumento da energia inicial.

Massa: Partículas mais leves têm alcance maior que partículas mais pesadas de mesma energia e carga. A dependência do alcance em relação à massa é, algumas vezes, expressa como função da velocidade da partícula.

Carga: Uma partícula com menos carga possui alcance maior que uma partícula com mais carga de mesma massa e mesma energia.

Densidade do Meio: Quanto mais alta a densidade do meio, menor é o alcance da partícula.

A fig.2.6 mostra a trajetória e o alcance de algumas partículas.

Figura 2.6 – Alcance e trajetória de íons pesados acelerados na matéria.

2.3. Nêutrons

Os nêutrons são partículas sem carga elétrica, mas com o spin e a massa quase igual ao do próton. São classificados de acordo com sua energia e a principal fonte de nêutrons utilizada neste trabalho será o reator nuclear IEA – R1 situado no IPEN. Os nêutrons são classificados de acordo com a sua energia.

Attix & Tochilin (1969) fazem a seguinte classificação de nêutrons com relação a sua energia:

Térmicos (Lentos)	0 eV – 0,4eV
Intermediários (Epitérmicos)	0,4 eV – 0,1MeV
Rápidos	0,1 MeV – 10 MeV
Alta energia	Acima de 10 MeV

Pelo fato dos nêutrons não possuírem cargas elétricas eles não interagem com campos eletromagnéticos, ou seja, a interação dessas partículas com a matéria ocorre somente com os núcleos dos átomos através de reações nucleares. Esse processo pode ser dividido em duas partes: absorção e espalhamento. (Leite, 1979)

Nas reações de espalhamento, o resultado final envolve uma troca de energia entre as partículas em colisão, e o nêutron permanece livre após a interação. Há dois tipos de reações de espalhamento: espalhamento elástico e inelástico.

O *espalhamento elástico* ocorre quando o nêutron colide com um núcleo alvo de massa igual ou próxima à dele. Neste tipo de interação, há a conservação da energia cinética, o nêutron muda de direção e transfere parte de sua energia para o núcleo alvo. (Tauhata et al, 2014)

No *espalhamento inelástico*, o núcleo alvo tem massa maior que a dele, sendo o nêutron por ele capturado, formando um núcleo composto num estado excitado, que decai num outro nêutron de menor energia e com a emissão do restante de energia sob a forma de radiação gama. Portanto, neste processo não há a conservação da energia cinética, pois parte da energia de movimento do nêutron inicial se converteu em energia gama. (Tauhata et al, 2014)

Nos processos de absorção o nêutron é retido pelo núcleo e novas partículas são formadas. Há dois tipos de absorção: Absorção por captura radiativa e fissão nuclear. Normalmente, estes tipos de processo ocorrem para nêutrons no intervalo de energia térmica (energia menor que 0,4 eV) e intermediária. (0,4 eV – 10 KeV) (Tauhata et al, 2014) (Leite, 1979). Alguns exemplos conhecidos são:

3. Detectores de radiação

Como vimos no capítulo anterior, as radiações interagem de diversas formas com a matéria, os detectores de radiação trabalham baseados nessa interação. Existem vários tipos de detectores, e cada um se baseia em um processo físico ou químico específico. Aqui mencionaremos apenas os mais importantes.

3.1. Detectores à gás.

Os detectores à gás constituem os tipos mais tradicionais e difundidos. Foram utilizados desde as experiências iniciais com a radiação ionizante. A interação das radiações com os gases provoca principalmente excitação e ionização dos seus átomos. Na ionização formam-se pares elétron-íon que dependem de características dos gases utilizados e da radiação ionizante. A coleta dos elétrons e dos íons positivos formados no volume sensível do detector é feita por meio de eletrodos que estabelecem campos elétricos e dispositivos apropriados que fornecem uma medida da radiação incidente no detector. Este tipo de sistema deu origem a diversos tipos de detectores, tais como as câmaras de ionização, os contadores Geiger-Müller, contadores proporcionais, etc. (fig. 3.1). (Tauhata et al, 2014)

Figura 3.1 – Exemplo simples de uma câmara de ionização.

3.2. Calorímetro

Baseia-se na estimativa direta da energia média depositada pela radiação que é transformada em calor. O calorímetro é considerado o padrão primário para a grandeza dose absorvida. Os componentes principais que compõe este tipo de detector são: núcleo (material detector); sensor de temperatura (termopar); meio intermediário (isolante) e camada externa. O núcleo pode ser sólido, líquido, gasoso.

Existem dois tipos principais de calorímetros: o calorímetro de grafite e o calorímetro de água. Ambos apresentam uma baixa sensibilidade, da ordem de 1 mK/Gy, podendo ser utilizados apenas para energias acima de 1 MeV. (Rodrigues, 2009)

- O calorímetro de grafite possui algumas vantagens que são:
- Defeito térmico de calor conhecido;
- Toda a energia absorvida é transformada em calor.
- Tem alta difusibilidade térmica de forma que o calor é espalhado em torno de qualquer componente.
- É similar à água.
- É facilmente usinável.

3.3. Detectores semicondutores

Em muitas aplicações de detecção da radiação, o uso de detectores de estado sólido é uma grande vantagem para medir elétrons ou raios gama de alta energia.

Os detectores deste tipo são muito menores do que aqueles detectores preenchidos por gás, uma vez que a densidade de um material sólido pode ser 1000 vezes maior que o material gasoso. (Knoll, 1999)

Este tipo de detector baseia-se na coleta de cargas elétricas produzidas pela interação com a radiação. Estas cargas são coletadas aplicando um campo elétrico, analogamente como é feito com as câmaras de ionização. (Knoll, 1999)

São encontrados detectores semicondutores dos mais diversos materiais, embora aqueles produzidos com cristais de silício ou cristais hiperpuros de germânio sejam os mais conhecidos e os mais empregados. Algo muito comum é a dopagem destes detectores com materiais que possuem excesso (tipo-N), de um lado, e falta

de elétrons (tipo-P), do outro lado, para melhorar a coleta de cargas através da criação de uma junção do tipo N-P formando, assim, uma espécie de diodo.

Esses diodos são muito empregados na dosimetria clínica, embora haja estudos em que tais materiais são utilizados para medir altas doses de radiação (veja Camargo; et. al., 2008).

Infelizmente não nos aprofundaremos neste assunto, o objetivo aqui é apenas mencionar que tais detectores são importantes e que Knoll (1999) traz uma ampla discussão sobre tais materiais.

3.4. Detectores luminescentes

Muitos sólidos e líquidos apresentam luminescência (emissão de luz visível), quando expostos a radiação ionizante.

Neste trabalho o foco de interesse está nos cristais iônicos que absorvem a energia depositada pela radiação ionizante e que a liberam, proporcionalmente, em forma de luz. No caso dos materiais que serão utilizados aqui, a luminescência é estimulada, basicamente, por duas maneiras:

- 1) Termicamente (termoluminescência)
- 2) Opticamente (luminescência opticamente estimulada)

Esses processos estão baseados nos conceitos de Bandas de Energia e Defeitos Pontuais.

Nas sessões seguintes faremos uma breve revisão de conceitos para entendermos como estes detectores armazenam a energia absorvida pela radiação e os fenômenos físicos relacionados com a luminescência na recuperação da energia absorvida na irradiação.

3.4.1. Bandas de Energia

Sem entrar em detalhes, vamos falar sobre bandas de energia. Processo, este, que governa o fenômeno da luminescência e são características dos sólidos, em geral, e dos sólidos cristalinos, em especial.

Um cristal iônico é formado de íons positivos e íons negativos, distribuídos regularmente no espaço. O exemplo mais simples é o cristal de NaCl em que o cátion Na^+ e o ânion Cl^- se distribuem periodicamente no espaço. Contudo, a grande

maioria de cristais iônicos não possuem a estrutura tão simples como a do NaCl, ainda assim, os ânions e os cátions se distribuem regularmente no espaço.

De qualquer modo, o fato dos íons se distribuírem periodicamente, traz como consequência uma distribuição dos elétrons do cristal quanto a sua energia na forma de *bandas de energia*. (McKeever, 1985)

Em cada um dos íons componentes do cristal existem elétrons em várias camadas. Aqueles situados na última camada eletrônica são chamados de elétrons de valência. Estes formam a última banda de energia ocupada que, por isso, recebeu o nome de *Banda de Valência (BV)*. No caso de materiais isolantes, a BV, em condições normais, está totalmente ocupada por elétrons. A próxima banda possível é, então, vazia, mas que, se de alguma forma chegar elétrons até ela, estes podem, por algum tempo, permanecer nesta banda, que recebeu o nome de *Banda de Condução (BC)*. (McKeever, 1985)

Entre BV e BC existe a chamada *Banda Proibida (BP)* que, em princípio não pode receber elétrons (fig. 3.2), isto é, não há níveis de energia que podem receber elétrons.

Figura 3.2– Representação esquemática das bandas de energia em sólidos cristalinos ideais. Adaptado de (McKeever, 1985)

Como foi dito acima, não é escopo deste trabalho discutir como se originaram as bandas de energia, apenas mencionar que a solução da equação de Schrödinger para elétrons num potencial periódico mostra a formação das bandas. Uma segunda maneira consiste em usar o princípio de Pauli, o que não faremos aqui.

3.4.2. Cristais Reais e Defeitos

Um cristal encontrado na natureza ou mesmo um cristal produzido artificialmente no laboratório é um cristal real diferente de um cristal perfeito ou ideal. A diferença está no fato de que um cristal real, mesmo aquele produzido no laboratório a partir de compostos quimicamente puros, possui imperfeições ou defeitos. Já que por questão termodinâmica é possível mostrar que um número não pequeno de íons está fora de sua posição normal no cristal, mesmo na temperatura ambiente.

Esses defeitos se classificam em *defeitos intrínsecos* quando acontece na própria rede cristalina e, *defeitos extrínsecos* quando é devido a elementos químicos estranhos ao cristal. Estes últimos são, também, chamados de *impurezas*. (Ikeya, 1993)

Uma notável capacidade desses defeitos é criar níveis localizados de energia na BP (Banda Proibida) que, antes não podia receber elétrons, mas agora pode devido a esses níveis. (McKeever, 1985)

Outro fato notável é que quando uma radiação ionizante como raios-X ou gama incide sobre o cristal, os fótons da radiação transferem total ou parcialmente sua energia, o suficiente para fazer com que os elétrons saiam da BV para a BC. Cada elétron desses deixa um *buraco* no mar de BV e cada buraco desses, agora, se comporta como uma partícula de mesma massa e mesmo spin do elétron, porém, com carga oposta, isto é, positiva. O elétron que atingiu à BC se move livremente até ser capturado por um nível de energia criado pelo defeito, do mesmo modo o buraco na BV se move livremente até ser capturado por um nível de energia na BP criado por um defeito pontual. (McKeever, 1985)

Convém notar que os defeitos criam níveis de energia que podem capturar, também os buracos que se formam com a saída de elétrons da banda de valência. Esses níveis de energia recebem o nome de *armadilhas*. Há armadilha de elétrons e de buracos, veja fig. 3.3. (McKeever, 1985)

A BP é dividida ao meio pela chamada energia de Fermi (E_F). As armadilhas de elétrons ficam entre E_F e BC e a de buracos entre E_F e BV (fig. 2.3)

Figura 3.3 – Armadilhas na banda proibida: **(a)** ionização, **(b)** armadilhamento do elétron, **(c)** armadilhamento do buraco. Linhas vermelhas simbolizam as armadilhas de buracos, as linhas pretas simbolizam as armadilhas de elétrons. Adaptado de (McKeever, 1985)

3.4.3. Termoluminescência (TL) e Luminescência Opticamente Estimulada (LOE)

A termoluminescência é um fenômeno observado em cristais iônico e consiste na emissão de luz quando este é aquecido após ter sido previamente irradiado por uma radiação. Como vimos anteriormente, os elétrons e os buracos, podem ficar armadilhados, o aquecimento causa a liberação dessas partículas que, ao se recombinarem, emitem luz $h\nu_{TL}$ que pode ser captada e relacionada com a dose absorvida (fig. 3.4.; transição (g))

No caso da LOE, ao invés de usar o calor para desarmadilhar os elétrons e promover a recombinação elétron-buraco, é utilizada uma luz (laser) de comprimentos de onda específicos (em geral na faixa do visível; azul ou verde).

Este laser, em síntese, substitui o calor na excitação da luminescência.

Figura 3.4 - Transições eletrônicas em sólido cristalino isolante ou semicondutor: (a) ionização, (b) armadilhamento do elétron, (c) liberação do elétron, (d) recombinação indireta, (e) armadilhamento do buraco, (f) liberação do buraco, (g) recombinação indireta, (h) recombinação direta. Os círculos em branco representam buracos, os preenchidos representam elétrons. Adaptado de (McKeever, 1985)

Este trabalho tem foco no fenômeno da termoluminescência para medir a dose absorvida.

Como vimos, a luminescência, seja ela estimulada pela energia térmica ou pela energia luminosa de um laser, é governada pelo processo da recombinação elétron-buraco. A quantidade desses pares de partículas que se recombinam é proporcional à dose de radiação, ou seja, uma maior dose de radiação produz uma quantidade equivalente de pares elétron-buraco que irão se recombinar e, por conseguinte, quando este material é aquecido ou iluminado, a luz emitida também deve ser proporcional.

Esta característica possibilita o uso de cristais iônicos como dosímetros de radiação utilizando o fenômeno da termoluminescência ou LOE.

4. Objetivos

Nas aplicações médicas, como na radioterapia ou na dosimetria ambiental, as doses de radiação envolvida são baixas (da ordem de μGy). Por outro lado, na esterilização de materiais hospitalares, na conservação de produtos agrícolas, na mudança de cor de pedras e etc. doses altas (de algumas dezenas até algumas centenas kGy) ou muito altas (acima de 1000 kGy) são usadas. A dosimetria de baixas doses já é bem estabelecida, mas, a de altas ou muito altas doses ainda não. Neste trabalho, pretende-se mostrar que usando alguns minerais naturais de silicato, é possível medir doses de 1000 kGy , 1500 kGy , 2000 kGy ou mais altas.

Especificamente, serão utilizadas duas variedades do berilo; a goshenita (incolor) e a água-marinha (azul-esverdeado).

Um segundo objetivo é avaliar a dosimetria de nêutrons epitérmicos do reator de pesquisas IEA-R1 situado no IPEN utilizando dosímetros termoluminescentes baseados em LiF . Dois tipos de fluoreto de lítio serão utilizados; LiF: Mg, Cu, P (MCP) e o LiF: Mg, Ti (MTS) produzidos no Instituto de Física Nuclear da Cracóvia, Polônia.

A dosimetria de nêutrons, por si só, é dificultada pela presença de um campo gama intenso. A detecção de nêutrons epitérmicos é mais difícil ainda, porque, além de ter companhia de raios gama, existem nêutrons térmicos. Os nêutrons rápidos constituem uma componente pequena. Neste projeto, uma folha de Cd de $0,1\text{mm}$ de espessura é usada para embrulhar os dosímetros para eliminar os nêutrons térmicos por captura para a detecção de nêutrons epitérmicos e rápidos no reator IEA-R1.

5. Histórico da Dosimetria Termoluminescente (TDL).

Muitas são as vantagens do uso das radiações ionizantes no nosso mundo. As importantes aplicações das radiações ionizantes na medicina podem salvar vidas através de radiodiagnósticos e radioterapia. Gemas como o topázio, goshenita, etc. adquirem cores vibrantes quando submetidas a altíssimas doses de radiação gama. Os reatores nucleares produzem energia elétrica através da fissão de átomos de urânio-235.

Entretanto, como essas radiações também produzem danos biológicos, seu uso deve ser feito de maneira criteriosa, fazendo levantamento de riscos e benefícios (Okuno, 2013).

O tema “dosimetria da radiação” teve sua origem nos últimos anos do século XIX quando os raios-X, então recém-descobertos por Röntgen, foram empregados quase que imediatamente para uso médico. O sucesso do uso de raios-X na medicina levou a uma necessidade de medir quantitativamente as radiações que emanavam dos tubos de raios-X. A maioria dos trabalhadores usavam métodos fotográficos e fluorescentes para medir a intensidade desses raios. Por razões de falta de sensibilidade, incertezas nas medidas, etc. estas técnicas pioneiras foram abandonadas e substituídas por métodos de deposição de energia nos sólidos. Três décadas se passaram antes que um método internacionalmente aceito de definição e medição de doses de raios-X fosse atingido. A introdução da unidade Roentgen em 1928 desviou as atenções das técnicas que utilizavam indicadores biológicos, as quais por natureza são menos precisas que as medidas físicas. O problema hoje não é mais somente a padronização da dose de raios-X ou raios gama em uso médico, o avanço da ciência nuclear e da abundante produção de materiais radioativos representam problemas de dosimetria em novas e complicadas formas. Mais do que nunca, se tornou necessário determinar a dose absorvida em uma variedade de materiais e meios quando irradiados por uma ampla faixa de energias de radiação ou por algum tipo de partícula ionizante (Hine & Brownell, 1956)

As medidas dosimétricas, nos primeiros estágios da dosimetria das radiações ionizantes, eram dominadas pelas câmaras de ionização e filmes fotográficos até o surgimento de técnicas baseadas em luminescência e outras técnicas de estado sólido que começaram com as pesquisas de Daniel no Departamento de Química da Universidade de Wisconsin em 1947. (Bartlett, 2008)

Curie (1960, 1963) trazia uma detalhada discussão da física básica que estava se desenvolvendo com relação ao fenômeno da luminescência em sólidos. Esta pesquisa formou a base para as posteriores aplicações das técnicas de TL (Termoluminescência), RPL (Radiofotoluminescência) e LOE (Luminescência Opticamente Estimulada). (Bartlett, 2008)

A pesquisa em Wisconsin foi desenvolvida utilizando cristais de Fluoreto de Lítio (Daniel; et al., 1953). Tentativas foram feitas para desenvolver um dosímetro e também para aplicar o fenômeno na datação de rochas. (Bartlett, 2008)

Em 1960, Cameron (veja Cameron; et al, 1968) se juntou a Universidade de Wisconsin e, trabalhando junto com a Harshaw Chemical Co., desenvolveu dosímetros de LiF dopados com Mg e Ti com propriedades mais consistentes. (Bartlett, 2008)

Nakajima et al. (1978) propuseram pela primeira vez dopar cristais de LiF com Mg, Cu, e P. A sensibilidade das primeiras versões deste material chegavam a ser 20 vezes superior àquela do LiF:Mg,Ti (TLD-100). Em 1984, Wu et al demonstraram que era possível preparar LiF:Mg, Cu, P que mantinham sua alta sensibilidade durante repetidos ciclos de uso. Isso possibilitou o uso deste material em dosimetria de rotina.

Hoje, cristais de Fluoreto de Lítio dopado com magnésio e titânio (TLD-100) são vendidos, principalmente, em forma de pastilhas prensadas de aproximadamente $3 \times 3 \times 0,9 \text{ mm}^3$ ou $1 \times 1 \times 1 \text{ mm}^3$, ambos disponibilizados pela Thermo Electron (antiga Harshaw Chemical Company). Aqueles propostos por Nakajima (LiF:Mg, Cu, P) são distribuídos em várias formas: GR-200 (Beijing Radiation Detector Works, People's Republic of China), MCP-N (Henry Niewiadomski Institute of Nuclear Physics, Poland) e em forma de TLD-100H, TLD-600H e TLD-700H pela Thermo Electron, USA (antiga Harshaw). (Moscovitch & Horowitz, 2007)

Outro material muito usado em dosimetria é o $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$. Sua versão não dopada foi inicialmente sugerida como um dosímetro termoluminescente (TLD) na década de 1950, e desde então foram sugeridas dopagens com Ti, Ti + Si, Mg + Y, Cr e Cr + Ni. Entretanto, nenhuma dessas formas produziu algum tipo de impacto significativo no campo da dosimetria de radiação. De fato, o Al_2O_3 estava destinado a permanecer desinteressante, porém com uma menor visibilidade até a chegada do Al_2O_3 com deficiência aniônica e crescido na presença de carbono. Desenvolvido

para aplicações em TLD pelo grupo da Urals Polytechnical Institute (Rússia). Hoje, tornou-se um dosímetro muito usado na prática. (McKeever; et al, 1999)

A fluorita (CaF_2 natural), embora em desuso nos dias atuais em dosimetria de rotina, é um cristal de boa sensibilidade TL. O problema é sua alta dependência energética, isto é, para radiações com fótons de energia da ordem de 100 keV ou inferior, a resposta TL é mais de 10 vezes à do LiF, por exemplo.

A fluorita, por outro lado, teve um papel importante, pois, sendo um mineral de grande quantidade no País, foi possível obtê-lo sem custo e, por este motivo, nos primeiros anos da termoluminescência no Brasil, foi utilizada em larga escala, tendo produzido mais de 50 publicações no IPEN/IFUSP.

6. Materiais

Nesta seção serão apresentados os materiais utilizados neste trabalho bem como informações acerca de estrutura, propriedades, obtenção, etc. de tais materiais.

6.1. Cristais naturais de silicatos

Os minerais de silicatos são materiais compostos principalmente por silício e oxigênio que são os dois elementos mais abundantes na crosta terrestre. A maior parte dos solos, rochas, argilas e areia se enquadram na classificação dos silicatos.

Se “Y” for um metal com valência menor do que o íon de Si, as ligações Y – O são mais fracas do que as ligações Si – O. Isto significa que o íon de Si atrai mais fortemente os íons de O^{2-} , do que os íons metálicos formando tetraedros do tipo SiO_4 (fig. 6.1 a), com distância média entre o Si – O = 1,62 Å. Entretanto, se “Y” for um semimetal, com alta carga, a ligação Y – O pode ser comparável com a ligação Si – O, podendo competir com os átomos de Si na atração dos oxigênios, essa competição produz uma distância Si – O maior, favorecendo a formação de Si em coordenação octaédrica como mostra a fig. 6.1 (b). Porém, é muito raro um mineral de silicato cuja estrutura seja formada de SiO_6 . (Ccallata, 2010)

Figura 6.1 – a) Tetraedro (SiO_4) e b) octaedro (SiO_6). (Ccallata, 2010)

Figura 6.3 - Estrutura cristalina do berilo perpendicular ao eixo C_6 . (Mittani, 2002)

Na natureza o berilo pode ser encontrado com diferentes cores (azul, verde, amarelo, rosa e incolor). As análises químicas e físicas tem mostrado que para cada um deles existem impurezas predominantes e, estas impurezas são, assim, responsáveis pela variação de cor. Os vários tipos de berilo são: água-marinha, esmeralda, heliodoro, morganita e goshenita (fig. 6.4). (Mittani, 2002)

O estado de Minas Gerais é o grande produtor de minerais de berilo. A água-marinha e goshenita usadas neste trabalho foram adquiridas de Teófilo Otoni, MG.

Figura 6.4 - Diferentes tipos de berilo: **a)** esmeralda; **b)** água-marinha; **c)** heliodoro; **d)** morganita; **e)** goshenita (incolor).

6.2. Fluoreto de Lítio (LiF) dopado.

Este material vem sendo estudado e utilizado há muito tempo devido a suas excelentes propriedades termoluminescentes quando dopado com alguns elementos. No nosso laboratório é muito utilizado na dosimetria de radiações.

Como foi dito anteriormente, o LiF: Mg, Ti é vendido, principalmente, em forma de pastilhas prensadas de aproximadamente $3 \times 3 \times 0,9 \text{ mm}^3$ ou $1 \times 1 \times 1 \text{ mm}^3$, ambos disponibilizados pela Thermo Electron (antiga Harshaw Chemical Company) em três versões; TLD-100, TLD-600 e TLD-700. O TLD-100 consiste de LiF:Mg,Ti produzido com o isótopo natural de Li (7,5% ^6Li e 92,5% ^7Li). O TLD-600 é enriquecido com ^6Li (95,6% ^6Li e 4,4% ^7Li) e o TLD-700 é enriquecido com ^7Li (99,93% ^7Li e 0,07% ^6Li).

Comparado com o LiF:Mg,Ti o LiF:Mg,Cu, P é relativamente novo. Atualmente é distribuído em várias formas: GR-200 (Beijing Radiation Detector Works, People's Republic of China), MCP-N (Henry Niewodniczanski Institute of Nuclear Physics, Poland) e em forma de TLD-100H, TLD-600H e TLD-700H pela Thermo Electron, USA (antiga Harshaw).

Tal material tem chamado a atenção de cientistas que estudam os mecanismos físicos envolvidos no processo de emissão TL e praticantes de dosimetria que usam este material em varias aplicações de monitoramento de radiações, incluindo dosimetria clinica.

A Dr. Barbara Obryk e seu grupo do Institute of Nuclear Physics, Polish Academy of Sciences (IFJ), Krakow, Poland, tem conduzido uma série grande de experimentos com os dosímetros de LiF (MTS – TLD 100 e MCP - LiF:Mg, Cu, P) utilizando-o em vários tipos de radiação.(veja Obryk et al, 2014 e Bilski; et al, 2010)

7. Procedimentos Experimentais

7.1. Equipamentos utilizados.

Neste trabalho uma série de irradiações foi realizada a fim de se medir a dose absorvida (Gy) pelo material irradiado utilizando diferentes tipos de radiação ionizante. Para tal, a técnica de termoluminescência (TL) foi empregada.

As irradiações com raios gama foram conduzidas nos irradiadores do Centro de Tecnologia das Radiações localizado no IPEN (CTR-IPEN) (fig.7.1 a) (fig. 7.1 b) (fig. 7.1 c) e no irradiador industrial do CBE-Embrarad (fig. 7.1 d). A fonte utilizada em todos os casos foi a de ^{60}Co .

As irradiações com prótons foram realizadas no acelerador pertencente ao Laboratório de Análise de Materiais por Feixes Iônicos situado no Instituto de Física da USP (LAMFI-IF) utilizando um feixe acelerado de prótons (fig. 7.1 e).

Já as irradiações com elétrons foram conduzidas utilizando um acelerador de elétrons “Radiation Dynamics” instalado no CTR-IPEN (fig. 7.1 f).

Figura 7.1 - (a) Irradiador Gammacell 220, **(b)** irradiador multipropósito IPEN, **(c)** irradiador gama do tipo panorâmica, **(d)** irradiador industrial do CBE-Embrarad **(e)** acelerador de prótons do LAMFI e **(f)** acelerador de elétrons.

As irradiações com nêutrons foram feitas no reator nuclear de pesquisa IEA-R1 do IPEN. Este é um reator do tipo piscina de 5 MW de potência, refrigerado e moderado à água leve. Está localizado no Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN/CNEN-SP) e é utilizado para pesquisa científica bem como para produzir radioisótopos (fig. 7.2) (Taddei; et al, 2013)

Figura 7.2 - Piscina do reator IEA-R1

Para o caso específico das irradiações utilizando nêutrons, preparou-se um plano o qual é descrito a seguir.

Desejava-se irradiar com nêutrons epitérmicos (energia = 0,5 eV a 1keV). Em um reator nuclear estas partículas possuem variadas energias o que torna difícil selecionar uma faixa específica. Na fig. 7.3 vemos a distribuição do fluxo de nêutrons de um reator nuclear de pesquisa com relação à energia.

Uma maneira é eliminar os nêutrons térmicos utilizando uma folha de Cádmio (Cd) que possui uma elevada secção de choque de captura de nêutrons térmicos, ou seja, tal material possui uma elevada probabilidade de reagir com nêutrons térmicos que tem um valor médio de $\sigma_a = 2100$ barns (fig. 7.4).

Esta operação foi realizada neste trabalho e mais detalhes serão descritos na seção 7.2.4.

Figura 7.3 - Fluxo de nêutrons em um reator nuclear.

Figura 7.4 – Curva de secção de choque média para captura de nêutrons do *Cd*.
(INDC, 1997)

Para realizar as leituras TL foi utilizado um Harshaw TL Reader model 4500 (fig 7.5) equipado com dois tubos fotomultiplicadores, os quais podem medir os sinais luminescentes de maneira independente. O leitor é controlado pelo software WinREMS que foi adquirido junto com o próprio equipamento. A taxa de aquecimento utilizada para todas as leituras foi de 4 °C/s.

Figura 7.5 – Leitor TL Harshaw 4500 pertencente ao LACIFID/USP utilizado neste trabalho.

7.2. Preparação das amostras.

7.2.1. Berilo: irradiações com raios- γ .

Todas as amostras de todas as variedades de berilo aqui irradiadas (água-marinha e goshenita) foram obtidas através de algumas pedras brutas do cristal natural. A preparação destas amostras para as medidas TL segue o roteiro abaixo:

- pulverização das pedras em grãos pequenos;
- passagem em peneira para selecionar grãos de tamanho entre 180 μm e 75 μm ;
- o pó selecionado foi então colocado em pequenos papelotes para ser irradiado.
- leitura TL de material irradiado.

Em todas as irradiações com raios- γ foram utilizadas fontes de Cobalto-60 e as leituras foram feitas utilizando um Harshaw TL reader 4500 do LACIFID.

As doses empregadas foram divididas em termos de baixas doses e altas doses. A tabela 7.1 mostra essa classificação.

Tabela 7.1 – Classificação adotada para as doses.

Amostras	Baixas doses de raios-γ (Gy)	Altas doses de raios-γ (kGy)
Água-marinha	2 - 10	100 - 1500
Goshenita	-----	600 - 2000

7.2.2. Berilo: irradiação com feixe de prótons.

A amostra submetida ao feixe de prótons do acelerador situado no LAMFI/IFUSP foi a goshenita, ou berilo incolor.

A amostra foi pulverizada e peneirada para reter grãos entre 180 μm e 75 μm . O pó resultante foi separado em porções de 7 mg utilizando uma balança de precisão para ser colocado em pequenas chapas de alumínio de aproximadamente 7x7 mm².

Estes pequenos dosímetros foram, por fim, expostos a diferentes cargas de um feixe de prótons. Os valores das cargas são: 24, 48, 144, 168, 192 e 216 μC .

A leitura TL foi realizada utilizando um Harshaw TL reader 4500 do LACIFID

7.2.3. Berilo: irradiação com feixe de elétrons.

Os materiais utilizados para a irradiação com feixe de elétrons foram pastilhas de água-marinha. As etapas de fabricação dos dosímetros são descritas a seguir:

- pulverização de cristais de água-marinha para reter grãos entre 180 μm e 75 μm ;
- uma porção de aproximadamente 4.000 mg foi separada e colocada, juntamente com esferas de cerâmica, em um pote plástico que foi, posteriormente, completamente vedado. Este conjunto foi posicionado dentro de um moinho a uma velocidade constante por 48hrs com o objetivo de se obter um pó com grãos extremamente pequenos,
- o pó de água-marinha obtido foi transformado em pastilhas utilizando uma prensa hidráulica e um pastilhador. A pressão utilizada foi de 1ton/cm² e a massa utilizada para produzir cada pastilha foi de 35 mg, embora uma perda de massa tenha sido observada após a produção, os valores finais de massa estão na tabela 7.2.
- as pastilhas de aproximadamente 5 mm de diâmetro foram sinterizadas à 850 °C por 5 horas.
- as 6 pastilhas produzidas foram numeradas e irradiadas no acelerador de elétrons do CTR-IPEN utilizando diferentes doses. As doses são: 10, 30, 50 e 70 kGy.

As leituras TL foram feitas utilizando um Harshaw TL reader 4500 do LACIFID.

Tabela 7.2 – Relação pastilha e massa após a produção

Pastilha	Massa (mg) $\pm$ 2,88
1	29,0
2	32,5
4	27,2
5	31,1
6	23,1
7	29,5

7.2.4. Dosímetros de LiF (Fluoreto de Lítio): irradiação com nêutrons epitérmicos.

As pastilhas de fluoreto de lítio dopadas com magnésio e titânio (LiF: Mg, Ti) e àquelas dopadas com magnésio, cobre e fósforo (LiF: Mg, Cu, P) foram cedidas pela Dr. Barbara Obryk do Institute of Nuclear Physics, Polish Academy of Sciences (IFJ), Krakow, Poland. Seu grupo atualmente tem desenvolvido muitos trabalhos com estes dosímetros.

A irradiação com nêutrons epitérmicos foi conduzida no reator IEA-R1 do IPEN e tiveram ajuda fundamental da Dr^a. Camen C. Bueno do Centro de Tecnologia das Radiações/IPEN

Antes de irradiar estes dosímetros é necessário realizar um tratamento térmico padrão. (para mais informações sobre tratamentos térmicos em dosímetros de LiF consulte Obryk et al, 2013)

Para os detectores do tipo MTS (LiF: Mg, Ti):

- Pré-irradiação: 400°C/1h >resfriamento rápido> + 100°C/2h> resfriamento rápido.

- Após a irradiação: 100°C/10 min> resfriamento rápido.

Para os detectores do tipo MCP (LiF: Mg, Cu, P):

- Pré-irradiação: 240°C/10 min> resfriamento rápido.
- Após a irradiação: 100°C/10 min> resfriamento rápido.

Após os tratamentos térmicos os dosímetros foram colocados em pequenos tubos de sílica e entregues para a irradiação com nêutrons epitérmicos.

Como é sabido, os nêutrons dentro de um reator nuclear possuem diversas energias:

Térmicos (Lentos)	0 eV – 0,4 eV
Intermediários (Epitérmicos)	0,4 eV – 0,1 MeV
Rápidos	0,1 MeV – 10 MeV
Alta energia	Acima de 10 MeV

A faixa de energia de interesse deste trabalho é a faixa que compreende os nêutrons epitérmicos, como já foi mencionado. A fig. 7.3 mostra que a maiorias dos nêutrons dentro de um reator nuclear de pesquisa são de energia térmica. Para solucionar este problema e eliminar os nêutrons lentos foi utilizada uma folha de Cádmiu que, como já foi dito, possui uma larga secção de choque de captura para nêutrons térmicos. A espessura utilizada foi de 0,1 mm e é justificada no cálculo apresentado a seguir:

A reação de captura de nêutron térmico pode ser escrita de forma geral:

Para calcular o número de N nêutrons capturados por um núcleo X com secção de choque σ_c , vamos considerar uma lâmina de Cd de espessura t e área A de secção transversal em relação à direção de incidência do nêutron. Supondo n o número de núcleos X alvos por unidade de volume, temos um número total de núcleos alvos $= n\sigma_c At$. Onde σ_c é a secção de choque de captura para cada núcleo.

A probabilidade de ocorrer a reação nuclear é:

$$P = \frac{\text{Área total exposta}}{\text{Área total}} = \frac{n\sigma_c A t}{A} = n\sigma_c t \quad (\text{eq. 7.2})$$

Esta probabilidade é, também, igual à razão.

$$P = \frac{\text{número N de partículas incidentes por segundo que sofrem a reação}}{\text{número total } N_0 \text{ de partículas incidentes}} \quad (\text{eq. 7.3})$$

Então,

$$P = \frac{N}{N_0} = n\sigma t \quad (\text{eq. 7.4})$$

Que é igual à fração de partículas que interagem com os núcleos X.

Aqui, consideramos a reação de captura radiativa envolvendo o Cd:

A densidade do Cd é 8,64 g/cm³ em 20° C isto é $\rho = 8,64 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$

$$\sigma_c(\text{médio}) \cong 2100 \text{ barns} = 2100 \times 10^{-28} \frac{\text{m}^2}{\text{núcleo}}$$

$$t = 0,1 \text{ mm} = 10^{-4} \text{ m}$$

$$n = \frac{\rho \cdot N_A}{M} = \frac{\left(8,64 \times 10^3 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}\right) \left(6,02 \times 10^{26} \frac{\text{núcleos}}{\text{kg} - \text{mol}}\right)}{114 \frac{\text{kg}}{\text{kg} - \text{mol}}}$$

$$n = 4,6 \times 10^{28} \frac{\text{núcleos}}{\text{m}^3}$$

O número N de nêutrons/ $\text{m}^2 \cdot \text{s}$ que sofre interação é dada por:

$$N = N_0 n \sigma t = 10^{18} \frac{\text{nêutrons}}{\text{m}^2 \cdot \text{s}} \times 4,6 \times 10^{28} \frac{\text{núcleos}}{\text{m}^3} \times 2100 \times 10^{-28} \frac{\text{m}^2}{\text{núcleos}} \times 10^{-4} \text{m}$$

$$N = 9600 \times 10^{14} \frac{\text{nêutrons}}{\text{m}^2 \cdot \text{s}} = 9,6 \times 10^{17} \frac{\text{nêutrons}}{\text{m}^2 \cdot \text{s}} \quad (\text{eq. 7.6})$$

Este é o número de nêutrons térmicos capturados por m^2 de uma placa de 0,1 mm de espessura de cádmio.

O resultado da (eq. 7.6) diz que todos os nêutrons térmicos sofrem interação, i.e, nenhum nêutron térmico atravessa 0,1mm de espessura de uma folha de cádmio. Isto devido ao gigantesco valor da secção de choque de captura do cádmio pelos nêutrons térmicos.

8. Resultados

8.1. Irradiação com raios- γ .

A seguir, veremos alguns resultados de curvas de emissão termoluminescente obtidas para os berilos aqui estudados.

Na fig.8.1(a) temos as curvas de emissão TL do berilo azul-esverdeado (água-marinha). As irradiações foram conduzidas no irradiador industrial do CBE-Embrarad. As doses vão de 100 kGy até 1500 kGy.

Na fig. 8.1 (b) temos as curvas de emissão TL da água – marinha irradiada com doses menores, elas vão de 2 a 10 Gy e foram realizadas no CTR-IPEN.

Na fig. 8.1 (c) temos as curvas de emissão para o berilo incolor (goshenita), as amostras foram irradiadas no CBE-Embrarad com raios gama. As doses vão de 600 kGy até 2000 kGy.

Figura 8.1 - a) e b) curva de emissão TL: água-marinha irradiada com raios gama, doses de 100 até 1500 kGy e de 2 a 10 Gy; **c)** Curva de emissão TL produzida pela goshenita: Doses de 600 até 2000 kGy.

Quando irradiada com altíssimas doses de raios- γ a água-marinha tem, praticamente, dois grandes picos; um em 175°C e outro em aproximadamente 350°C que decresce com o aumento da dose para além de 250 kGy.

Irradiada com doses menores, aparecem três picos em 130°C, 250°C e 350°C que são observados facilmente e crescem conforme a dose aumenta. De fato, quando a dose torna-se alta, acima de alguns kGy, os picos 1 e 3 crescem mais rapidamente do que o pico 2, de modo que temos a impressão de que, como é visto na fig. 8.1 (a), só há dois picos

A goshenita exibe um largo pico em torno dos 200°C e um de menor intensidade em 350°C quando irradiada nessa faixa de dose de raios- γ (até 2000 kGy). Percebemos que mesmo possuindo a mesma composição química, goshenita e água-marinha possuem diferentes curvas TL para uma mesma faixa de dose. O estudo da curva de emissão TL do berilo tem sido relatado na literatura por diversos autores, veja Mittani (2002) e Blak & McKeever (1993) para maiores dados e informações.

8.2. Irradiação com feixe de prótons

Nas irradiações com prótons, o pó de goshenita com grãos entre 180 μm e 75 μm foi colado sobre pequenas chapas de alumínio de aproximadamente 5x6x0,7 mm³ utilizando silicone. As chapas com o material depositado em sua superfície foram bombardeadas com um feixe de prótons no LAMFI. A massa de berilo depositada foi de 7 mg. Esse dosímetro foi primeiro testado com raios gama e mostrou-se firme e confiável.

Na fig. 8.2 temos as curvas de emissão com irradiação de prótons.

Figura 8.2 - Emissão TL: Goshenita irradiada com prótons. Neste caso não se tem os dados de dose absorvida em Gy, apenas a carga do próton em μC (24 a 216 μC).

Nas curvas de emissão da fig. 8.2 vemos que a goshenita quando bombardeada com feixe de prótons exibe um largo pico TL em 200 °C que cresce à medida que se eleva a carga do feixe.

O mesmo pico é também observado quando o material é irradiado com radiação gama, como foi mostrado na fig. 8.1 (c)

8.3. Irradiação com feixe de elétrons.

Para as irradiações com feixe de elétrons foram utilizados dosímetros de água-marinha em formato de pastilhas com diâmetro de 5 mm e massa média de $31,07 \pm 2,88$ mg. A tabela 7.2 mostra todos os valores de massa para todas as 6 pastilhas produzidas.

Cada pastilha foi submetida à doses de 10, 30, 50 e 70 kGy de um feixe de elétrons com 1,5 MeV de energia máxima, no CTR-IPEN.

Como sabemos, a penetração do elétron na matéria depende de basicamente duas variáveis: sua energia e do meio absorvedor, que neste caso são as pastilhas de berilo.

Segundo os engenheiros Carlos Gaia e Elisabeth Somessari, responsáveis pelas irradiações com feixe de elétrons no Centro de Tecnologia das Radiações,

pelo fato do berilo possuir uma densidade de aproximadamente $2,9 \frac{g}{cm^3}$ e de que a máxima energia do feixe é de 1,5 MeV, tal feixe não conseguiria depositar toda a energia por todo o comprimento da pastilha, de maneira que a leitura TL, neste caso, deve ser feita com a face irradiada da pastilha voltada diretamente para a célula fotomultiplicadora do leitor TL.

Atendendo, então, a todas as recomendações, os dosímetros irradiados tiveram suas curvas de emissão analisadas. A fig. 8.3 mostra todas as curvas de emissão dos dosímetros de água-marinha.

Figura 8.3 – Curvas de emissão dos 6 dosímetros produzidos.

Analisando as curvas de emissão observamos que em todos os dosímetros há praticamente dois picos principais. Um em 235 °C e outro que se forma a partir de 30 kGy em 310 °C e que se desloca até 340 °C em 70 kGy.

O pico de 235 °C cresceu até 50 kGy e decresceu cerca de 2 vezes quando a dose aplicada foi de 70 kGy.

O pico de 310 °C aparece quando o dosímetro é irradiado com 30 kGy e aumenta de intensidade até 70 kGy parecendo se deslocar 30 °C para a direita (310 °C – 340 °C).

De uma maneira geral, as curvas de emissão das pastilhas de água-marinha apresentam um comportamento muito similar entre si, embora algumas amostras tenham exibido uma maior luminescência que outras para uma mesma dose.

A pastilha 2 é a única pastilha que apresentou um comportamento onde a pico de 235 °C irradiado com 30 tem maior intensidade do que quando irradiado com 50 kGy.

8.4. Intensidade TL x Dose.

As curvas de TL x Dose podem ser chamadas também de “curvas de calibração”. Elas mostram como varia a intensidade TL de uma amostra em função da dose absorvida.

A seguir vamos apresentar as curvas de calibração para os cristais de berilo irradiados como foram vistos acima.

8.4.1. Água-marinha: Raios-gama

A água marinha irradiada com doses de 2 à 10 Gy e de 100 a 2000 kGy, utilizando raios gama de fontes de ^{60}Co teve sua curva de calibração estudada.

A curva de calibração, para a menor faixa de dose foi feita com base nos três picos mais proeminentes que são àqueles de 130, 250 e 350 °C (fig. 8.4 a, b e c). Observa-se que, nessa faixa, a intensidade cresce linearmente com o aumento da dose. Essa dependência linear da dose é característica quando a dose de radiação é inferior a 100 Gy.

Utilizando o programa OriginPro 8 foi possível obter a função (eq. 8.1) que descreve o crescimento da intensidade em função da dose absorvida:

$$y = A + B * x \quad \text{eq. (8.1)}$$

Onde A e B são parâmetros calculados automaticamente pelo programa.

A partir desta equação pode-se estimar uma dose desconhecida recebida pelo material dentro dessa faixa de dose.

Figura 8.4 – Curva Intensidade TL vs Dose para a água-marinha; picos de **(a)** 130 °C, **(b)** 250 °C e **(c)** 350°C

O mesmo foi feito para a água-marinha irradiada com altas doses (100 - 2000 kGy) (fig. 8.5). O pico selecionado para produzir a curva de calibração foi aquele que se forma em 350 °C. Entretanto aqui se observa, a um primeiro momento, que o comportamento da intensidade em função da dose é completamente diferente comparado com os dados da fig. 8.4. Para este caso, a intensidade cresce até cerca de 250 kGy e diminui com o aumento da dose. É claro que tanto a curva que mostra o aumento da intensidade TL em função da dose quanto a curva que mostra a queda da intensidade podem ser utilizadas na dosimetria da radiação.

Figura 8.5– Curva de Intensidade TL versus dose absorvida onde y_m é a intensidade máxima, x_m é a dose correspondente a y_m e x e x' são as doses absorvidas correspondentes ao valor de intensidade y' – Pico de 350 °C, doses de 100 a 2000 kGy

Foi também utilizado o programa OriginPro 8 para produzir a curva de calibração e gerar a equação que descreve o comportamento da curva após a dose de 250 kGy:

$$y = y_0 + A * \exp(-R_0 * x) \quad \text{eq. (8.2)}$$

Onde A , R_0 e y_0 são parâmetros calculados automaticamente pelo programa.

A partir da fig. 8.5 podemos concluir que há uma dose onde a intensidade é máxima e que, a partir desta dose, a intensidade TL começa a cair. Desta observação podemos escrever:

$$y_m = y_0 + A * \exp(-R_0 * x_m) \quad \text{eq. (8.3)}$$

Onde y_m é a intensidade máxima e x_m é a dose correspondente a y_m .

Para $x > x_m$, com foi dito, a dosimetria é feita com a intensidade TL decrescente. Nota-se que há uma região de dose entre $x = 0$ e $x = 2x_m$, por exemplo, onde uma leitura TL pode resultar em uma intensidade y' correspondente a dois valores de dose x . Com decidir a que dose correta essa leitura y' corresponde?

Para responder esta pergunta foi desenvolvida uma metodologia que consiste em irradiar, no mínimo, dois dosímetros a uma mesma dose x . Após a leitura TL de um dos dosímetros, obteríamos o valor de intensidade y' . O dosímetro reserva é irradiado com uma dose adicional Δx e se, após a leitura TL do dosímetro reserva, a intensidade for $y' + \Delta y'$, o valor de dose está no ramo ascendente da curva de calibração, mas, se a intensidade for $y' - \Delta y'$, o valor de dose está no ramo descendente da curva de calibração.

8.4.2. Goshenita: raios- γ .

A goshenita foi irradiada com elevadas doses de raios gama proveniente de fontes de cobalto-60 das instalações do CBE-Embrarad. As doses vão de 600 kGy até 2000 kGy.

A fig. 8.6 mostra a curva de calibração para esta faixa de dose. Curiosamente o ajuste foi efetuado utilizando uma parábola com a concavidade voltada para baixo.

Figura 8.6 - Curva de Intensidade TL versus dose absorvida da goshenita onde y_m é a intensidade máxima, x_m é a dose correspondente a y_m e x e x' são as doses absorvidas correspondentes ao valor de intensidade y' – Pico de 200 °C, doses de 600 a 2000 kGy.

A equação que descreve este comportamento é:

$$y = Ax^2 + Bx + C \quad \text{eq. (8.4)}$$

Os parâmetros A , B e C são calculados automaticamente pelo programa OriginPro 8. A partir de tal equação pode-se estimar a dose absorvida pelo material dentro dessa faixa de dose. Aqui ocorre o mesmo visto na curva da fig. 8.5 onde, a partir de uma determinada dose, intensidade TL começa a decrescer.

O cálculo do máximo da parábola pode ser feito da seguinte maneira:

$$X_{\text{máx}} = -\frac{B}{2A} \quad \text{eq. (8.5)}$$

$$Y_{\text{máx}} = -\frac{B^2 - 4CA}{4A} \quad \text{eq. (8.6)}$$

Substituindo os valores calculados pelo programa temos:

$$X_{\text{máx}} = -\frac{5,09 \times 10^6}{2(-2061,11)} \rightarrow X_{\text{máx}} = 1234,8 \text{ kGy}$$

$$Y_{\text{max}} = -\frac{((5,09 \times 10^6)^2 - 4(-2061,11 \times 5,34 \times 10^7))}{4(-2061,11)} \rightarrow Y_{\text{máx}} = 32 \times 10^8 \text{ u. a}$$

Então a coordenada do ponto máximo da parábola é:

$$X_{\text{máx}} = 1234,8 \text{ kGy}$$

$$Y_{\text{máx}} = 32 \times 10^8 \text{ u. a}$$

Observando a fig. 8.6, vemos que em um intervalo de $x = 0$ a $x = 2x_{\text{max}}$, por exemplo, onde uma leitura TL pode resultar em uma intensidade y' correspondente a dois valores de dose x , assim como ocorre para a água-marinha. A solução para decidir a qual valor de dose x corresponde a intensidade y' é a mesma que foi utilizada para o caso anterior. Onde são utilizados dois dosímetros os quais são submetidos a uma mesma dose x . A leitura TL de um deles resulta em y' efetivamente. O outro é submetido a doses adicionais Δx e se, após a leitura TL, a intensidade for $y' + \Delta y'$, o valor de dose será $< x_{\text{máx}}$, mas, se a intensidade for $y' - \Delta y'$, o valor de dose será $> x_{\text{máx}}$.

8.4.3. Água-marinha: feixe de elétrons.

As pastilhas de água-marinha tiveram suas curvas de calibração estudadas como mostra a fig. 8.7.

Vemos que todas as pastilhas apresentam um comportamento linear com a dose (10 kGy -70 kGy) para o pico de 310 °C. Já o pico de 210 °C apresenta um crescimento praticamente linear até a dose de 50 kGy (exceto para a pastilha 2) e, para doses maiores, percebemos que o sinal TL começa a decrescer.

O fato de o material estar compactado em forma de pastilhas facilita muito o trabalho de dosimetria de feixes iônicos. Foi experimentado anteriormente a dosimetria de elétrons utilizando o pó de água-marinha, entretanto foi observada uma diferença muito grande entre as medidas de uma mesma dose, o que revelou que se os grãos não estivessem perfeitamente dispersos no momento da irradiação, alguns destes não absorveriam a energia depositada pelos elétrons de maneira homogênea o que compromete a operação. As pastilhas, por outro lado, possuem uma área de exposição fixa o que elimina o problema enfrentado com o pó.

Entretanto, algumas diferenças nas intensidades entre as pastilhas podem ser notadas, isso pode ser explicado devido à falta de uniformidade das superfícies das pastilhas. A solução deste problema é a construção de uma linha de montagem que não danifique as superfícies das pastilhas para uma melhor homogeneidade nas respostas TL.

É interessante notar que o material usado, água-marinha, mostrou um comportamento meio parecido com LiF (MTS e MCP), pois acima de 50 kGy o pico de 230 °C decresce e aparece pico de 310 °C que se desloca, como o pico “B” nos dosímetros de LiF.

Figura 8.7 – Curva de Intensidade TL versus dose absorvida de pastilhas de água-marinha irradiadas de 10 kGy a 70 kGy.

8.4.4. Goshenita: feixe de prótons.

A goshenita irradiada com feixe de prótons também teve sua curva de calibração estudada (fig. 8.8). Não foi fornecido o valor das irradiações em termos de dose absorvida (Gy), apenas em valores de carga (μC). É possível achar o valor de dose absorvida em Gy correspondente ao valor da carga em μC , mas esta correlação não foi feita aqui.

A equação que descreve o comportamento é:

$$y = y_0 + A * \exp^{(R_0 * x)} \quad \text{eq. (8.7)}$$

Onde A , R_0 e y_0 são parâmetros calculados automaticamente pelo programa. A partir de tal equação pode-se estimar a dose recebida pelo material dentro dessa faixa de dose, basta substituir o valor de y pela intensidade do pico para encontrar a dose x .

É possível notar que há um valor de carga limite situado por volta de $125 \mu\text{C}$. Para valores de carga acima desse limiar a intensidade TL cresce rapidamente.

Figura 8.8 – Curvas de Intensidade TL versus a carga do feixe, no detalhe vemos o valor limiar de $125 \mu\text{C}$ – Pico de 200°C , carga do feixe de prótons de 20 a $216 \mu\text{C}$

8.5. Dosimetria utilizando intensidade TL decrescente.

Observamos neste trabalho que a partir de certa dose de radiação a intensidade TL de um dado pico começa a decrescer. Essa é a dose x_m para qual a intensidade é y_m máxima. Como vimos, essa dose é de 1234,8 kGy para a goshenita e de 250 kGy para água-marinha.

Percebemos, então, na água-marinha irradiada com uma dose de 250 kGy e, a goshenita irradiada com uma dose de 1234,8 kGy, a irradiação subsequente com doses de desde algumas dezenas de Gy até cerca de 400 Gy e 500 Gy, fariam as intensidades TL decrescem regularmente, como pode ser visto na fig. 8.9 (b) para a goshenita e, fig. 8.10 (b) para a água-marinha. Esse decréscimo regular das intensidades TL em função da dose é uma curva de calibração que pode ser utilizada para medir uma dose desconhecida.

A fig. 8.9 (a) mostra a curva de calibração da goshenita e a fig. 8.9 (b) mostra a curva de decaimento do sinal TL do pico de 200°C irradiado com 250 kGy e depois irradiado com doses extras de 20 Gy a 350 Gy.

A fig. 8.10 (a) mostra a curva de calibração da água-marinha e a fig. 8.10 (b) mostra a curva de decaimento do sinal TL do pico de 200 °C irradiado com 250 kGy e depois com irradiações extras que vão de 20 Gy a 350 Gy.

Figura 8.9 - (a) dose de saturação indicada no máximo da parábola **(b)** material irradiado até a dose de saturação e, posteriormente irradiado com doses adicionais (20 Gy – 350 Gy).

Figura 8.10 - (a) dose de saturação (b) material irradiado até a dose de saturação e, posteriormente irradiado com doses adicionais (20 Gy – 350 Gy).

8.5.1. Fading – Decaimento espontâneo

Quanto à estabilidade desses berilos irradiados com altas doses, fizemos um teste medindo o decaimento espontâneo após a irradiação. Para tal experimento a água-marinha e a goshenita foram irradiadas com as suas doses limites de 250 kGy e 1234 kGy, respectivamente. Após esta etapa, sucessivas leituras foram realizadas ao longo do tempo para observar a possível queda do sinal TL. A fig. 8.11 mostra que mesmo depois de algum tempo (8 dias) de irradiado com alta dose, os berilos não apresentaram um grande decaimento espontâneo do sinal TL.

Figura 8.11 – Água-marinha e goshenita irradiadas com 250 kGy e 1234 kGy, respectivamente, e medidas após diversos períodos.

8.6. Pastilhas de LiF dopadas.

Na fig. 8.12 temos as curvas de emissão dos MCP's irradiados de 1 kGy até 10 kGy. Na fig. 8.13 vemos as curvas TL dos MTS's irradiados na mesma faixa de dose. Ambas as irradiações foram conduzidas utilizando uma fonte de ^{60}Co do CTR-IPEN e as medidas foram feitas no IFUSP.

Figura 8.12–(a) MCP-N e (b) MCP-7 irradiados de 1 kGy até 10 kGy.

Figura 8.13– (a) MTS-N e (b) MTS-7 irradiados de 1 kGy até 10 kGy.

Se observarmos os gráficos da fig. 8.12 vemos que quando se aumenta a dose o pico principal localizado em aproximadamente 250 $^{\circ}\text{C}$ diminui e parece se deslocar para a direita, rumo a temperaturas mais elevadas.

Algo similar acontece com o material da fig. 8.13. Quando elevamos a dose vemos o pico principal entre 250 $^{\circ}\text{C}$ – 300 $^{\circ}\text{C}$ se dividir em dois e, elevando ainda

mais a dose, o pico de menor temperatura diminui enquanto o de maior temperatura fica mais proeminente.

Percebendo isso, o grupo polonês decidiu elevar ainda mais as doses. Com tal estudo (veja Obryk; et. al, 2014) foi possível observar mudanças extraordinárias no formato da curva tanto do MCP quanto do MTS em função da dose aplicada e a partir daí definir uma dosimetria de altas doses utilizando detectores baseados nesses dosímetros.

Um fato que se observa nestes dosímetros é que quando a dose de radiação é da ordem de 50 kGy ou superior, os picos de temperatura abaixo de 350 °C diminuem e aparece um pico perto de 400 °C que se desloca até 470 °C quando a dose absorvida atinge cerca de 500 kGy. Os picos que aparecem acima de 380 °C foram chamados de pico “B”. As figs. 8.14 e 8.15 mostram tal efeito.

Figura 8.14– Aparecimento do chamado “peak ‘B’” em dosímetro do tipo MCP (LiF:Mg,Cu,P). (Obryk; et. al, 2014)

Figura 8.15– Mudança do formato da curva de emissão TL no dosímetro MTS (LiF:Mg,Ti). (Obryk; et. al, 2014)

8.7. Detecção de nêutrons epitérmicos e rápidos

Veremos mais adiante o detalhe do resultado, mas, mencionaremos que Obryk, et. al. (2011) estudaram o efeito da irradiação com todos os tipos nêutrons de um reator (térmicos, epitérmicos e rápidos; estes últimos em pequena proporção)

Aqui, as irradiações com nêutrons epitérmicos foram realizadas utilizando como foi dito, os dosímetros baseados em LiF, que foram colocados em pequenos tubos de vidro comum (Pirex) que posteriormente foram selados. Tais tubos foram embrulhados com uma folha de cádmio de 0,1 mm de espessura para barrar os nêutrons térmicos (reveja o cálculo a partir da eq. 7.2.4). O conjunto foi colocado num tubo de alumínio para a irradiação e colocado na posição 13 B do reator IEA-R1 (fig. 8.16). As irradiações foram feitas em duas etapas por questões técnicas:

(I) - A fig. 8.17 mostra MCP's irradiados com 10^{10} n/cm² (8.17 a e b), 10^{14} n/cm² (8.17 c e d) e 10^{16} n/cm² (8.17 c e d).

(II) - Alguns meses depois uma segunda irradiação foi realizada com fluência de nêutrons da ordem de $1,1 \times 10^{14}$, $1,1 \times 10^{15}$, $1,1 \times 10^{16}$ e $1,1 \times 10^{17}$ n/cm². As fig's. 8.18, 8.19, 8.20 e 8.21 apresentam as curvas de emissão observadas nos dosímetros MCP-7, MCP-N, MTS-N e MTS-7 respectivamente.

Figura 8.16—Configuração da placa matriz do núcleo do reator IEA-R1 do IPEN.

Figura 8.17 – Diferentes dosímetros de LiF irradiados com nêutrons epitérmicos acompanhado de campo gama no reator de pesquisas IEA-R1 do IPEN.

Figura 8.18 - Curvas de emissão observadas no detector MCP-7 irradiado com várias fluências de nêutrons.

Figura 8.19 - Curvas de emissão observadas no detector MCP-N irradiado com várias fluências de nêutrons.

Figura 8.20– Curvas de emissão observadas no detector MTS-N irradiado com várias fluências de nêutrons.

Figura 8.21– Curvas de emissão observadas no detector MTS-N irradiado com várias fluências de nêutrons.

Como foi mencionado, Obryk et. al. (2011 b) efetuaram as irradiações conduzidas com todos os nêutrons, ou seja, sem a folha de cádmio. As fluências foram de 10^{11} até 10^{15} . Para o MCP-6 a intensidade TL do pico de alta temperatura varia de 15000 (a.u) para algumas centenas (a.u). Para o MCP-N a intensidade TL varia de 25000 para 5000 (a.u). Já para o MCP-7 a intensidade fica constante por volta de 10000 (a.u), exceto para 10^{15} n/cm² onde a altura do pico aumenta. A Fig.8.22 apresenta as curvas de emissão.

Figura 8.22 - Curvas de emissão do (a) MCP-6, (b) 7 e (c) N: Pico “B” (peak “B”) detalhado (Obryk et. al., 2011 b)

8.7.1. Estimativa de dose de raios gama no reator IEA-R1 durante a irradiação de MCP's com nêutrons epitérmicos.

Os nêutrons produzidos por fissão no reator em operação vêm sempre acompanhados de intensos raios gama. É, então, natural que a dosimetria de nêutrons seja fortemente afetada pelo campo gama. Se for possível estimar a dose gama com o reator em operação, espera-se poder dizer algo sobre o efeito só de nêutrons.

Quando a operação do reator é interrompida no final do dia, ou em qualquer momento, as fissões cessam, mas, devido o efeito residual de alguns elementos, nêutrons são produzidos por algum tempo, estes são chamados de “nêutrons atrasados”. É estimado em cerca de 10 min o término da produção de nêutrons, como nos foi informado pelo Sr. Adolfo Marra Neto, coordenador do Centro do Reator de Pesquisas do IPEN.

Em outras palavras, após dez minutos do encerramento da operação do reator, é muito pequena (ou até mesmo nula) a presença de nêutrons; o importante, porém, é o fato de permanência por mais tempo de raios gama.

Segundo informações cedidas entre conversas com a Dr. Barbara Obryk (comunicação particular), a taxa de dose gama, após 10 min de encerrada as reações de fissão de um reator nuclear, é cerca de 1/3 menor do que a taxa de dose gama com o reator em operação.

Então, para medir a contribuição da dose gama nas irradiações com nêutrons epitérmicos, foi posicionado no mesmo ponto onde os detectores foram posicionados na experiência de detecção de nêutrons epitérmicos, ou seja, na posição 13 B, dosímetros MCP-7 e MCP-N por *dez minutos* após *dez minutos* do fim de operação do reator.

A fig. 8.23 (a) mostra as curvas de emissão TL *normalizadas* destes dosímetros após a leitura TL. Para estimar a dose absorvida pelos dosímetros nesta irradiação comparamos as curvas de emissão com outras curvas de dosímetros irradiados com 1 kGy e 5 kGy de raios gama de uma fonte de ^{60}Co (fig. 8.23 (b)).

Figura 8.23 – (a) Curvas de emissão TL normalizadas do MCP-7 e MCP-N irradiados por 10 min no reator IEA-R1 fora de operação. **(b)** Dosímetro MCP-N irradiado apenas com raios gama do reator IEA-R1 (em vermelho) e com uma fonte gama de ^{60}Co com doses de 1 kGy e 5 kGy (azul e preto, respectivamente)

Para estimar a dose absorvida pelo dosímetro irradiado por 10 min no núcleo do reator após 10 min do término das reações nucleares, foi utilizada a técnica chamada de UHTR (Ultra High Temperature Ratio) desenvolvida para calcular doses absorvidas pelos dosímetros do tipo MCP quando submetidos a elevadas doses de radiação (veja anexo 1 para maiores detalhes). (Obryk et. al., 2011 a)

Este método se baseia no fato de que, as respostas TL dos dosímetros MCP's expostos à altas doses de radiação gama (de 5 kGy até 1 MGy) apresentam uma mudança drástica no formato da curva de emissão.

Para desenvolver o método, a curva de emissão destes dosímetros foi dividida em três regiões como é visto na fig. 8.24. Resumidamente, estas divisões são, na verdade, limites de integração para o cálculo do fator UHTR que, será mais tarde, associado com um valor de dose absorvida.

A eq. 8.8 é utilizada para calcular o fator UHTR:

$$UHTR = \frac{\sum_{T_x}^{T_{máx}} I_T}{\sum_{T_{min}}^{T_{máx}} I_T} \quad \text{eq. (8.8)}$$

Onde o numerador é a integral do sinal TL de $T_x = 250^\circ\text{C}$ até $T_{máx} = 500^\circ\text{C}$ e o denominador é a integral do sinal TL de $T_x = 0^\circ\text{C}$ até $T_{máx} = 500^\circ\text{C}$. O valor do parâmetro UHTR calculado para dosímetro irradiado por 10 min no núcleo do reator após seu desligamento foi $UHTR = 0,35 \pm 0,015$

Para associar o valor do fator UHTR com a dose absorvida utilizaremos uma das curvas da fig. 8.25, mais precisamente a curva UHTR (250) pelo fato de se estar na região de $T_x = 250^\circ\text{C}$.

A dose absorvida foi estimada em $3,2 \pm 0,015$ kGy, o que indica que, em 10 minutos de irradiação com o reator fora de operação a taxa de dose de raios gama na posição 13 B é da ordem de $3,2 \frac{\text{kGy}}{10 \text{ minutos}}$.

Levando em consideração que o valor de dose gama quando o reator está em operação é 1/3 maior em relação aos valores obtidos quando este se encontra desligado, podemos concluir que a dose gama na posição 13B do reator IEA-R1 em operação é de 9,6 kGy e a sua taxa de dose é de $9,6 \frac{\text{kGy}}{10 \text{ minutos}}$.

Figura 8.24 – Curva de fator UHTR em função da dose. A dose absorvida estimada para o dosímetro MCP-N irradiado por 10 min no núcleo do IEA-R1 após seu desligamento foi de 3,2 kGy.

Figura 8.25 – Curva de fator UHTR em função da dose. A dose absorvida estimada para o dosímetro MCP-N irradiado por 10 min no núcleo do IEA-R1 após seu desligamento foi de 3,2 kGy.

O cálculo das doses absorvidas com o reator em operação deveria satisfazer:

$$D_a = D_{NE} + D_g \quad \text{eq. (8.9)}$$

Onde D_a é a dose absorvida medida no reator pelo dosímetro, D_{NE} é a dose absorvida devida apenas a nêutrons epitérmicos, D_g é a dose absorvida induzida só pelo campo gama do reator em operação.

Para calcular D_g usaremos a informação de dose extraída da fig. 8.23(b).

O tempo de permanência dos dosímetros durante a irradiação com nêutrons dentro do núcleo é um parâmetro importante e os valores são fornecidos pela tabela 8.1:

Tabela 8.1: Correlação tempo e fluência de nêutrons colocados na posição 13B.

Fluência (n/cm ²)	10 ¹⁴	10 ¹⁵	10 ¹⁶	10 ¹⁷
Tempo (min)	10 min	100 min	180 min	1800 min

Como a dose induzida pelo campo gama do reator fora de operação é de aproximadamente 3,2 kGy/10 min, sendo esse campo 3 vezes maior quando o IEA-R1 está em operação, o valor passa a ser 9,6 kGy/10 min. A partir daí é possível considerar:

$$D_g = D_{GR} * t_{núcleo} \quad (a)$$

Onde D_g seria a dose absorvida induzida só pelo campo gama do reator em operação; D_{GR} é a dose gama absorvida pelo dosímetro no período de 10 min com o reator em operação (9,6 kGy/10 min); $t_{núcleo}$ é o tempo de permanência no núcleo.

Então:

$$D_{g14} = 9,6 \left[\frac{kGy}{10 \text{ min}} \right] * 10 [\text{min}] = 9,6 \text{ kGy} \quad (\text{c})$$

$$D_{g15} = 9,6 \left[\frac{kGy}{10 \text{ min}} \right] * 100 [\text{min}] = 96 \text{ kGy} \quad (\text{d})$$

$$D_{g16} = 9,6 \left[\frac{kGy}{10 \text{ min}} \right] * 180 [\text{min}] = 172,8 \text{ kGy} \quad (\text{e})$$

$$D_{g17} = 9,6 \left[\frac{kGy}{10 \text{ min}} \right] * 1800 [\text{min}] = 1728 \text{ kGy} \quad (\text{f})$$

Sendo D_{g14} , D_{g15} , D_{g16} , D_{g17} as doses induzidas pelo campo gama com o reator em operação nos dosímetros submetidos às fluências de 10^{14} , 10^{15} , 10^{16} e 10^{17} n/cm² respectivamente.

Para estimar a dose induzida pelos nêutrons epitérmicos partiremos da informação contida nas figs. 8.17, 8.18, 8.19, 8.20 e 8.21. Nestas figuras temos a informação da dose absorvida total pelos dosímetros D_a (gama + nêutron), subtraindo desse valor os dados da dose gama obtidos em (c), (d), (e) e (f) teremos apenas a contribuição dos nêutrons.

Mas há um problema com as medidas da fig. 8.16, pois a taxa de aquecimento utilizada para as medidas foi de 10 °C/s, isso torna impossível utilizar a curva de calibração calculada pelo método UHTR e, por conseguinte, estimar uma dose absorvida, isto se dá por devido uma restrição do método (o anexo 1 explica este conceito mais detalhadamente).

As medidas da fig. 8.18, 8.19, 8.20 e 8.21 foram tomadas utilizando uma taxa de aquecimento de 2 °C/s, tornando possível o uso da curva de calibração. Os valores *aproximados* obtidos para D_{NE} (veja equação (a)) estão na tabela 8.2 e foram obtidos da curva de calibração da fig. 8.26

Figura 8.26 – Valores obtidos com base no método UHTR (eixo vertical) e o correspondente valor em dose absorvida (eixo horizontal) para os dosímetros MCP – N irradiados nesse trabalho.

Tabela 8.2: Valores de D_{NE} e D_a para as fluências aplicadas.

Fluência (n/cm ²)	10 ¹⁴	10 ¹⁵	10 ¹⁶	10 ¹⁷
D_a (kGy)	40	332	500	Não obtido
D_g (kGy)	9,6	96	172,8	1728
D_{NE} (kGy)	30,4	236	327,2	Não obtido

Onde D_a é a dose absorvida medida no reator pelo dosímetro, D_g é a dose absorvida induzida só pelo campo gama do reator em operação e D_{NE} é a dose absorvida devida apenas a nêutrons epitérmicos,

8.8. Comentários adicionais sobre os detectores de LiF.

Os cristais de LiF, tanto o MTS (LiF: Mg, Ti) quanto o MCP (LiF: Mg, Cu, P) apresentam um comportamento que não se vê em outros cristais. Como foi descrito nos capítulos anteriores, para doses de radiação abaixo de poucos kGy, o pico TL principal é o de 200 °C. Mas, à medida que a irradiação é feita com doses crescentes acima de cerca de 5 kGy, o pico em 200 °C decresce e desaparece quando a dose atinge os 50 kGy. Nesse intervalo, aparecem picos TL, a partir de 250 °C. Aliás, esses picos se deslocam com a dose, chegando perto de 350 °C.

Acima de 50 kGy, observa-se um pico que, agora, avança para temperaturas mais elevadas até perto de 450 °C. Esse pico foi chamado de pico “B” pelo grupo do Instituto de Física da Cracóvia, Polônia.

Toda a dinâmica dos picos TL mencionados nos parágrafos acima podem ser vistos nas figs. 8.14 e 8.15. A fig. 8.25 mostra, com mais detalhes, as divisões onde estão localizados os picos.

Como pode ser visto na fig. 8.27, quando o dosímetro do tipo MCP é irradiado com doses de raios- γ , o pico “B” cresce até cerca de 400 kGy depois decresce.

Figura 8.27 – Decaimento da intensidade TL do pico “B” em dosímetros do tipo MCP irradiados com altas doses de raios- γ observados em Obryk et. al. (2011 b).

Na experiência de irradiação dos dosímetros do tipo MCP-N com nêutrons (térmicos + epitérmicos + rápidos, estes últimos nêutrons constituem uma fração pequena) de um reator de pesquisa realizada pelo grupo da Polônia, que foi mostrada anteriormente, exibiu um resultado para o pico “B” que é apresentado na fig. 8.28.

Figura 8.28 - Dinâmica do pico “B” no dosímetro MCP-N quando irradiado com nêutrons de um reator nuclear observadas em Obryk et. al. (2011 b).

Na figura acima o dosímetro é irradiado com os raios- γ e os nêutrons epitérmicos, embora no eixo das abscissas apareça só a fluência neutrônica.

Na fig. 8.28, as temperaturas associadas aos pontos experimentais, são as do pico TL. Todos eles estão na faixa de 350-500 °C. A altura do pico “B” cresce com a fluência de $3 \times 10^{13} \frac{n}{cm^2}$ a cerca de $3 \times 10^{14} \frac{n}{cm^2}$, depois decresce muito rapidamente, de cerca de 26.500 (a.u) para 5.000 (a.u) em $3 \times 10^{15} \frac{n}{cm^2}$.

Já com raios gama de dose acima de 400 kGy a resposta TL cai, entretanto, quando a irradiação é feita com raios gama + nêutrons a resposta TL cai muito mais rapidamente.

Tanto raios- γ como os nêutrons de dose ou fluência elevada parecem contribuir na queda acentuada da resposta TL. Mas essa observação levanta uma questão: Seria algum efeito de danos causados pela radiação? Não se sabe o certo até este momento.

A figura 8.29 mostra o efeito de raios gama + nêutrons epitérmicos sobre o MCP-N e MCP-7 irradiados neste trabalho. O decréscimo da intensidade TL é mais acentuado no MCP-7 que tem um decaimento de 12×10^{14} (arb. un.) em $10^{14} \frac{n}{cm^2}$ até 30 (arb. un.) em $10^{17} \frac{n}{cm^2}$.

Podemos afirmar, então, que o efeito de todos os nêutrons ou de nêutrons epitérmicos mais os rápidos promovem a queda do sinal TL nos detectores do tipo MCP mais intensamente que o efeito só de raios- γ .

Contudo, tanto o resultado apresentado na fig.8.27 e 8.28, mostram que esses dados podem ser utilizados na dosimetria de campo misto (nêutrons e raios gama).

Figura 8.29 – Intensidades dos picos TL destacados em função da fluência de nêutrons epitérmicos obtidas neste trabalho.

9. Conclusões

9.1. Minerais naturais de silicato (berilo) para dosimetria da radiação

Observamos que para raios- γ de altas doses, goshenita e água-marinha apresentam curvas de emissão TL com picos bem definidos, os picos dosimétricos escolhidos foram os de 350 °C e 200 °C para água-marinha e goshenita, respectivamente. A evolução desses picos em função da dose não segue um comportamento linear, o que seria o ideal para a dosimetria, todavia, neste caso, encontrou-se um comportamento bem definido e que pode ser descrito por uma função matemática.

No caso da água-marinha foi observado um crescimento da intensidade TL até cerca de 250 kGy seguido de queda exponencial e, para a goshenita, o crescimento é até cerca de 1234,8 kGy, mas, o comportamento global descreve um arco de parábola.

Nos dois casos, para doses acima desse valor limite, é nítido o decaimento do sinal TL. O fato de o sinal ter um decréscimo com certa regularidade torna possível o uso de ambos os materiais na dosimetria de altas doses dentro da faixa de dose estudada aqui.

No decorrer do trabalho, notamos que tanto na goshenita quanto na água-marinha irradiadas com a doses limites (1234, 8 kGy e 100 kGy, respectivamente), sendo elas irradiadas em sequência com doses de alguns poucos Gy's até cerca de 400 Gy, a intensidade TL decresce de um modo regular, que pode ser usado na dosimetria. É uma dosimetria de sinal TL decrescente e, em inglês, poderia ser chamada de “backward dosimetry”, uma vez que a dosimetria normal baseada na TL crescente é chamada de “forward dosimetry”.

Com relação às baixas doses, vemos que a água-marinha possui uma resposta TL em função da dose linear para os três picos apresentados; 130°C, 250°C e 350°C, embora para uma operação de rotina, o pico adotado seria o de maior temperatura, pois apresenta uma estabilidade maior.

Com relação à dosimetria de feixes iônicos, as pastilhas de água-marinha se mostraram muito eficientes para a dosimetria de altas doses de feixe de elétrons, o pico de 310 °C tem um crescimento linear com a dose, o que é de extrema utilidade para a dosimetria.

Vemos que a goshenita possui uma resposta em função da carga do feixe bem definida. Embora o ajuste da curva de calibração não seja linear, foi definido um ajuste exponencial no intervalo estudado para descrever o comportamento da intensidade do pico dosimétrico de 200 °C em função carga aplicada. Não foi feita a medida que pode estabelecer a equivalência da carga aplicada e a dose gama, o que será feito eventualmente.

9.2. Dosimetria de nêutrons epitérmicos utilizando detectores de LiF

Em relação à dosimetria de nêutrons epitérmicos, notamos que as respostas TL de MCP-N e MCP-7 são distintas daqueles que foram irradiados com todos os nêutrons. Portanto, do ponto de vista de dosimetria é possível distinguir os dois casos, embora para fluências de nêutrons superiores a $10^{13} \frac{n}{cm^2}$, as respostas TL são decrescentes com a fluência.

Apesar de termos encontrado a estimativa da dose gama com o reator IEA-R1 em operação, o que é um fato novo, pois nenhum pesquisador o fez até hoje, pouco se esclareceu o que, possivelmente, está acontecendo, pois, apesar das doses gama na região de fluências de nêutrons superiores a $10^{13} \frac{n}{cm^2}$ serem elevadas, com o acréscimo de irradiação de nêutrons, as respostas TL dos detectores MCP deveriam ser bem maiores em Obryk et. al. (2011 b) e naquelas que foram obtidas neste trabalho.

É claro que é possível que os efeitos de nêutrons atuem negativamente, isto é, com a presença de nêutrons as respostas TL, descendentes nesta faixa, caem mais pronunciadamente, de maneira que, aparentemente, os nêutrons possam estar acentuando um possível dano por irradiação que está ocorrendo no material.

Vale lembrar que o principal objetivo desse trabalho, com relação aos dosímetros de LiF, era o de poder detectar nêutrons epitérmicos utilizando dosímetros do tipo MCP e, se possível, estimar alguma dose absorvida.

Utilizando o método UHTR foi possível estimar alguns valores de doses absorvidas o que nos dá uma ideia da ordem de grandeza da dose gama dentro do reator dez minutos fora de operação e dentro de operação.

10. Bibliografia

ATTIX, F. H.; TOCHILIN, E. **Radiation Dosimetry**. 2nd ed. Vol 3, New York, USA: Academic Press Inc., 1969

BARBOSA, R.F; CANO, N.F; WATANABE, S; GUTTLER, R.A.S; REICHMANN, F. **Thermoluminescence in two varieties of jadeite: Irradiation effects and application to high dose dosimetry**, Radiation Measurements 71, pg. 36-38, 2014

BARTLETT, D.T. **100 years of solid state dosimetry and radiation protection dosimetry**, Radiation Measurements 43, pg. 133-138: 2008

BILSKI, P; B. OBRYK; Z. STUGLIK. **Behaviour of LiF:Mg,Cu,P and LiF:Mg,Ti thermoluminescent detectors for electron doses up to 1 MGy**, Radiation Measurements, V. 45, Issues 3–6, P. 576–578, 2010.

BETHE, H. A., ASHKIN, J. **Experimental Nuclear Physics**. (E. Segrè, ed.), Vol 1., New York, Wiley, 1953

BLAK, A.R; McKEEVER, S.W.S., **Optical Absorption and Thermoluminescence in Natural Beryl**, Radiation Protection Dosimetry, Vol. 47, No ¼, pp 94-98, 1993

CAMARGO, F., GONÇALVES, J.A.C., KHOURY, H.J., NAPOLITANO, C.M., HÄRKÖNEN, J., BUENO, C.C. **MCz diode response as a high-dose gamma radiation dosimeter**. Radiation Measurements 43, pg. 1160 – 1162, 2008

CAMERON, J.R., SUNTHARALINGAM, N., KENNEY, G.N., **Thermoluminescence Dosimetry**, University of Wisconsin Press, Madison: 1968.

CCALLATA, H. S. J. Tese de doutorado: **Propriedades de ressonância paramagnética eletrônica, de absorção óptica e termoluminescência do cristal de zoisita natural**. Instituto de Física – Universidade de São Paulo, Departamento de Física Nuclear, São Paulo: 2010

CESAREO, R. **Dos raios X à bomba atômica (1895-1945): Os 50 anos que mudaram o mundo.** Embrapa Informação Tecnológica: Brasília, DF, 2010

DANIEL, F.; BOYD, C.A.; SAUNDERS, D.F. **Thermoluminescence as a research tool.** Science 117, 343: 1953

HINE, G. J.; BROWNELL, G.L. **Radiation Dosimetry**, New York, USA: Academic Press Inc: 1956.

IKEYA, M. – **New applications of spin resonance: Dating, Dosimetry and Microscopy**, World Scientific Publishing, USA: 1993.

INDC – **International Nuclear Data Committee: Atlas of Neutron Capture Cross Sections**, 1997

ISOTANI, S.; BLAK, A.R.; WATANABE, S. **UV optical absorption spectra analysis of beryl crystals from Brazil**, Physica B-condensed Matter, v. 405, issue: 6, Holand: 2010

KNOLL, G. F. **Radiation Detection and Measurement**, 3° ed., New York, USA: John Wiley & Sons. Inc, 2000

KORTOV, V.; USTYANTSEV, Y. **Advantages and challenges of high-dose thermoluminescent detectors**, Radiation Measurements 56, pg. 299-302, 2013

KRANE, K.S; **Introductory Nuclear Physics**, Oregon, USA: John Wiley & Sons, 1988

LEITE, A.M.P. Dissertação de Mestrado: **Dosimetria Termoluminescente de Nêutrons Térmicos com $\text{CaF}_2 + \text{KBr}$ E $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$** , Instituto de Energia Atômica (antigo IPEN), 1979

McKEEVER, S. W. S.; AKSELROD, M. S.; L. E., COLYOTT, A.L; POLF; J.C; WHITLEY, V. **Characterization of Al_2O_3 for use In Thermally And Optically**

Stimulated Luminescence Dosimetry, Radiation Protection Dosimetry, Nuclear Technology Publishing, v. 84, 1999

McKEEVER, S.W.S. **Thermoluminescence of Solids**. Cambridge, England: Cambridge University Press, 1985

MITTANI, J.C.R. **Tese de Doutorado – Estudos de Difusão e Trocas Iônicas de Vanádio, Cromo, Manganês e Ferro no Berilo Incolor**, Universidade de São Paulo, São Paulo, 2002.

MORGAN, K., Z.; TURNER, J., E. **Principles of radiation protection. A textbook of health physics**. New York, USA: John Wiley & Sons, 1967

MOSCOVITCH, M; HOROWITZ, Y.S. **Thermoluminescent materials for medical applications: LiF:Mg,Ti and LiF:Mg,Cu,P**, Radiation Measurements 41, S71–S77, 2007

NAKAJIMA, T., MARUYAMA, Y., MATSUZAWA, T., KOYANO, A., **Development of a new highly sensitive LiF thermoluminescence dosimeter and its applications**, Nucl. Instrum. Methods 157, 155–162: 1978.

OBRYK, B.; SKOWRONSKA, K.; SAS-BIENIARZ, A.; STOLARCZYK, L.; BILSKI, P. **High-dose high-temperature emission of LiF:Mg,Cu,P: Thermally and radiation induced loss & recovery of its sensitivity**. Radiation Measurements, V. 56, pg 171-178, 2013

OBRYK, B.; BILSKI, P.; OLKO, P. **Method of thermoluminescent measurement of radiation doses from micrograys up to a megagray with a single LiF: Mg, Cu, P detector**, Radiation Protection Dosimetry, vol. 144, No 1 – 4, pp. 543 – 547, 2011 a

OBRYK, B.; GLASER, M.; MANDI, I.; BILSKI, P.; OLKO, P.; SAS-BIENIARZ, A. **Response of various types of lithium fluoride MCP detectors to high and ultra-high thermal neutron doses**, Radiation Measurements 46, 1882 e 1885, 2011 b

OBRYK, B.; KHOURY, H.J; BARROS, V. S.; GUZZO, P. L.; BILSKI, P. **On LiF:Mg,Cu,P and LiF:Mg,Ti phosphors high & ultra-high dose features**, Radiation Measurements xxx, 1-6, 2014

OKUNO, E., **Efeitos biológicos das radiações ionizantes. Acidente radiológico de Goiânia**, Estudo Avançados v. 27, n. 77, São Paulo: 2013

REID, J. M. **The Atomic Nucleus**. 2nd ed., Manchester, U.K: Manchester University Press, 1984.

RODRIGUES, L.N. **Metrologia das radiações ionizantes**, Revista Brasileira de Física Médica, 3(1):69-75.São Paulo, 2009

SOUZA, D. N.; LIMA, J. F.; VALERIO M. E. G.; CALDAS, L. V. E. **Performance of Pellets and Composites of Natural Colourless Topaz as Radiation Dosimeters**, Radiation Protection Dosimetry Vol. 100, Nos 1–4, pp. 413–416, Nuclear Technology Publishing, 2002

TADDEI, M.H.T.;MACACINI, J.F.; VICENTE, R.; MARUMO, J.T.; SAKATA, S.K.; TERREMOTO, L.A.A. **Determination of ^{63}Ni and ^{59}Ni in spent ion-exchange resin and activated charcoal from the IEA-R1 nuclear research reactor**, Applied Radiation and Isotopes, Volume 77, P. 50–55, 2013

TAUHATA, L.; SALATI, I.; PRINZIO, R.D; PRINZIO, A.R.D. **Radioproteção e Dosimetria: Fundamentos**. Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD/CNEN), Rio de Janeiro, 2014

WU, D.K., SUN, F.Y., DAI, H.C., **A high-sensitivity LiF thermoluminescent dosimeter – LiF (Mg,Cu,P)**. Health Phys. 46, 1063 – 1067, 1984

Anexo I

Método UHTR (Ultra High Temperature Ratio) para dosimetria da radiação.

Nos dosímetros MCP, baseados no LiF:Mg,Cu, P, a medida que a dose de radiação cresce de alguns kGy a MGy, os picos TL de baixas temperaturas (começando com o pico de 200 °C) diminuem de altura até desaparecerem e, novos picos acima 350 °C aparecem. Os picos de temperatura acima de 350 °C foram chamados de pico “B” (peak B, em inglês) pelo grupo do Instituto de Física da Cracóvia, Polônia. Mesmo com esse deslocamento dos picos com a dose, observado somente nos detectores baseados no LiF, em princípio, especificando a temperatura do pico e a dose de radiação, a altura do pico é proporcional à dose aplicada (crescente em uma região e decrescente em outra) e esse resultado caracteriza a dose com que o dosímetro foi irradiado.

Obryk et. al. (2011 a) introduziram em método que consiste em quantificar as mudanças observadas na curvas de emissão do LiF: Mg, Cu, P, como já foi mencionado acima, em altas doses e em altas temperaturas. Este método foi chamado de UHTR (Ultra High Temperature Ratio).

O método UHTR leva em conta a observação experimental da curva de emissão dos detectores do tipo MCP irradiados com doses da ordem de alguns até alguns MGy. A partir de tal observação, dividiu-se em três regiões o comportamento da curva de emissão destes detectores como mostra a fig. A1

Figura A1 – As três regiões de integração do sinal TL: 0-250 °C, 250-350 °C e 350-550 °C.

A ideia destes autores consistiu em determinar as doses acima de 5 kGy substituindo a relação da altura dos picos com a dose de radiação aplicada pela razão entre a área de uma das três regiões da fig. A1 e a área total da curva de emissão, que é a base do método UHTR.

Para se ter uma ideia de como o formato da curva de emissão varia com a dose aplicada, a fig. A2 mostra a intensidade TL em função da dose para as três regiões da fig. A1.

Fig. A2 – Intensidade TL em função da dose de dosímetros MCP irradiados com raios-γ de Co-60 dentro das três regiões destacadas.

O parâmetro UHTR, como já foi dito, é a razão entre a integral do sinal TL em uma das três regiões vistas anteriormente pela a integral de todo o sinal TL emitido. A partir daí, surge a eq. A1.

$$UHTR = \frac{\sum_{T_x}^{T_{max}} I_T}{\sum_{T_{min}}^{T_{max}} I_T} \quad \text{eq. (A.1)}$$

Onde T_x é a temperatura mínima da região entre 250-350 °C ou entre 350-550 °C, ou seja, $x = 250$ °C para a região 2 e $x = 350$ °C para a região 3, $I(T)$ é a intensidade TL na temperatura T , T_0 é a temperatura inicial da medida da curva de emissão.

Assim, esses autores obtiveram a UHTR para T_{250} e T_{350} como é visto na fig. A3

Figura A3 – UHTR (250), onde $T_x = 250\text{ }^{\circ}\text{C}$, e UHTR(350), onde $T_x = 350\text{ }^{\circ}\text{C}$, para detectores MCP.