

Universidade de São Paulo
Instituto de Física

Estudo das respostas OSL e TA-OSL de pastilhas à
base de fluorita natural visando o emprego na
dosimetria pessoal de trabalhadores em radiologia
diagnóstica

Luan Santos Lima

Orientadora: Profa. Dra. Elisabeth Mateus Yoshimura

Dissertação de mestrado apresentada ao Instituto de Física
como requisito parcial para a obtenção do título de Mestre
em Ciências.

Banca Examinadora:



Profa. Dra. Elisabeth Mateus Yoshimura (IFUSP)
Profa. Dra. Anna Luiza Metidieri Cruz Malthez (UTFPR)
Profa. Dra. Roseli Künzel (UNIFESP)

São Paulo
2022

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

Lima, Luan Santos

Estudos das respostas OSL e TA-OSL de pastilhas à base de fluorita natural visando o emprego na dosimetria pessoal de trabalhadores em radiologia diagnóstica. São Paulo, 2022.

Dissertação (Mestrado) – Universidade de São Paulo, Instituto de Física, Depto de Física Nuclear.

Orientador(a): Profa. Dra. Elisabeth Mateus Yoshimura

Área de Concentração: Física

Unitermos: 1. Dosimetria Luminescente; 2. Radiologia; 3. Física Médica.

USP/IF/SBI-052/2022

University of São Paulo
Institute of Physics

Study of OSL and TA-OSL responses of natural
fluorite-based pellets pointing to the use in personal
dosimetry of workers in diagnostic radiology

Luan Santos Lima

Supervisor: Prof. Dr. Elisabeth Mateus Yoshimura

Dissertation submitted to the Institute of Physics of the
University of São Paulo in partial fulfillment of the
requirements for the degree of Master of Science.

Examining Committee:

Prof. Dr. Elisabeth Mateus Yoshimura (IFUSP)

Prof. Dr. Anna Luiza Metidieri Cruz Malthez (UTFPR)

Prof. Dr. Roseli Künzel (UNIFESP)

São Paulo
2022

À
Minha mãe,
Luciene

AGRADECIMENTOS

Aos meus pais por todo apoio e incentivo.

A minha professora Elisabeth, pela orientação e dedicação me ajudando desde a graduação e sendo um exemplo de profissionalismo.

A Vanessa por todo o apoio e companheirismo durante todos esses anos.

A todo o grupo da Dosimetria, em especial a Nancy que não tenho palavras para descrever o quanto ela me ajudou nesse trabalho, me fornecendo material quando já não tinha tanto tempo para fabricação devido aos meses de fases mais restritivas gerada pela pandemia de COVID-19. Ao Carlos sempre ajudando no reparo dos equipamentos. Ao Chico sempre disposto a me ajudar.

Aos amigos do LUMIDOSI, Juan e Matheus pela colaboração em diversos trabalhos e momentos de descontração. Ao professor Neilo pela colaboração e ensinamentos.

Aos demais, meus sinceros agradecimentos.

Resumo

A monitoração individual é parte essencial na proteção radiológica em especial para a área de radiologia diagnóstica. Essa é a área cujo emprego das radiações ionizantes expõe mais pessoas, de modo que as medições de radiação nesse campo são fundamentais para a proteção dos trabalhadores. Uma característica importante que a maioria dos detectores utilizados para essas faixas de energia dos raios X apresentam é uma grande dependência da resposta com a energia dos fótons. O objetivo geral desse trabalho é estudar a resposta luminescente de detectores baseados na fluorita natural verde em pó combinado com um aglutinante comercial, para irradiação com fótons de raios X e gama de diversas energias (45-1250 keV). Além disso, o trabalho pretende contribuir para o conhecimento dos fenômenos luminescentes como a luminescência opticamente estimulada e a luminescência opticamente estimulada termicamente assistida, exibidos pela fluorita verde, apresentando um modelo para o decaimento do sinal na forma de uma exponencial estendida seguido por uma exponencial simples, que apresenta um bom ajuste ao conjunto de dados experimentais.

Foi explorada a relação entre as diversas variáveis de interesse como dose e temperatura de leitura com o comportamento do parâmetro β na exponencial estendida. Foi estudado a relação dos valores ajustados de β para diversos conjuntos de dados experimentais com a energia do fóton, que pode ser uma ferramenta usada para estimar indiretamente a energia do fóton que depositou energia na amostra. A deposição de energia pelas radiações X e beta nas amostras de fluorita foi estudada qualitativamente, através de uma simulação Monte Carlo e os resultados mostraram uma deposição não uniforme de energia em todo o volume da amostra, estando concentrado principalmente na face apontada para a fonte. Foram obtidas as curvas de dependência energética que podem ser usadas na avaliação do equivalente de dose pessoal.

Um modelo foi proposto para explicar o que foi observado para o sinal de TA-OSL no caso da fluorita usada nesse trabalho. Ele tem como hipótese a existência de portadores de carga aprisionados em armadilhas muito profundas, cujo acesso não é possível somente com os estímulos térmico ou óptico, e sim apenas com a combinação dos dois, com o estímulo óptico termicamente assistido. Foi avaliada a quantidade de energia fornecida na forma de energia térmica para que as

cargas aprisionadas possam ser liberadas de uma armadilha muito profunda cujo valor aqui determinado é $E_A = (0.36 \pm 0.05)$ eV, bastante próximo do valor já reportado na literatura.

Palavras chaves: Dosimetria, Luminescência opticamente estimulada (OSL), Termoluminescência (TL), Fluorita natural, OSL termicamente assistida (TA-OSL).

Abstract

Individual monitoring is an essential part of radiological protection, especially for radiology, where the use of ionizing radiation exposes most of the people, such monitoring is fundamental in protecting workers. Most detectors used for X-ray in diagnostic energy range shows an important characteristic that is a large energy dependence of the response. This work aims to study the dosimetric response of detectors obtained by cold pressing natural green fluorite powder combined with a commercial binder, for irradiation with X-ray and gamma photons of different energies (range 45-1250 keV). In addition, it intends to contribute to the knowledge of luminescence phenomena such as optically stimulated luminescence and thermally assisted optically stimulated luminescence, both emitted by green fluorite. For that a model for the light decay is presented in a form of a stretched exponential plus a simple exponential, that showed a good fit to the experimental data.

The relationship between the various parameters of interest such as dose and readout temperature, and the behavior of the β parameter in the stretched exponential was explored. The relationship of the fitted values of β for different experimental data sets with the photon energy was studied, and this relation could be a tool to indirectly estimate the energy of the photons that deposited energy in the sample. The energy deposition by X and beta radiation in the fluorite samples was studied qualitatively by a Monte Carlo simulation. The results showed a non-uniform deposition of energy in the entire volume of the sample, being concentrated mainly in the face pointing to the source. Finally, the energy dependence curves were obtained, and the results could be used in the evaluation of the personal dose equivalent.

A model was proposed to explain what was observed for the TA-OSL signal in the case of the fluorite. The hypothesis was the existence of trapped charge carriers in very deep traps, whose access was possible only with the combination of both thermal and optical stimulus. The activation energy that the trapped charges need to be released from a very deep trap was determined as $E_A = (0.36 \pm 0.05)$ eV. This value agrees with the one already reported in the literature.

Keywords: Dosimetry, Optically Stimulated Luminescence (OSL), Thermoluminescence (TL), Natural Fluorite, Thermally Assisted OSL (TA-OSL).

Lista de figuras

Figura 1: Representação para a transição de energia para fenômenos de luminescência.....	4
Figura 2: Curva de emissão luminescente típica da fluorita utilizada nesse trabalho	5
Figura 3: Diagrama de níveis de energia mostrando uma armadilha de elétrons acima do nível de Fermi (linha preta tracejada) e um centro de recombinação abaixo.....	6
Figura 4: Resultado da simulação das equações diferenciais 1-7, para os seguintes parâmetros: $s = 10^{12} \text{ s}^{-1}$, $E = 1.5 \text{ eV}$, $A_n = 4.6 \times 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$, $A_m = 4.6 \times 10^{-7} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$, $B = 4 \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$, $X = 5 \times 10^7 \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$, $N = 10^{10} \text{ cm}^{-3}$, $M = N = 10^{10} \text{ cm}^{-3}$	7
Figura 5: Resultado da simulação das equações diferenciais 10 a 13, para os seguintes parâmetros: $s = 10^{12} \text{ s}^{-1}$, $E = 1.5 \text{ eV}$, $A_n = 4.6 \times 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$, $A_m = 4.6 \times 10^{-7} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$, $B = 4 \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$, $X = 5 \times 10^7 \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$, $N = 10^{10}$, $M = N = 10^{10} \text{ cm}^3$	9
Figura 6: Estrutura da célula unitária de CaF_2 construído a partir do software VESTA (MOMMA et al, 2011), onde a esfera grande representa o Ca e a pequena representa o F.....	11
Figura 7: Fluxograma do código PENELOPE, onde em vermelho são arquivos fornecidos pelo PENELOPE, e em preto são informações que o usuário deve fornecer ao código.....	14
Figura 8: Relação de grandezas para fins de monitoramento e proteção radiológica (ICRU, 1998).	15
Figura 9: XRD da amostra de fluorita Natural em vermelho, e em azul as fases características da fluorita de acordo com o banco de dados do ICDD.	17
Figura 10: Distribuição de massas das amostras de fluorita.....	18
Figura 11: Esquema do leitor de TL/OSL Risø.....	19
Figura 12: Simulação da geometria da situação de irradiação do equipamento Risø TL/OSL reader Model DA-2. O Material 1 é a fluorita, Material 2 é a fonte de radiação, Material 3 é a capsula de Al, Material 4 é o atenuador de Al e o Material 5 é a janela de quartzo, o material 6 representa o ar.....	22
Figura 13: Espectros de fluência de energia de elétrons emitidos por ^{90}Sr e ^{90}Y respectivamente, gerados com o PenNuc.	23
Figura 14: Espectro de raio X, simulado com o modelo TBC modificado.	23
Figura 15: Sinal TL para diversas doses na figura (a) e a área do terceiro pico em função da dose na figura (b).	25

Figura 16: Sinal OSL para diversas doses na figura (a) e a área sob a curva em função da dose na figura (b).	26
Figura 17: Ajuste da equação 13 para a fluorita irradiada com 100 mGy de radiação beta na figura (a) e os resíduos reduzidos do ajuste na figura (b).	27
Figura 18: Ajuste da equação 14 na figura (a) e os resíduos reduzidos do ajuste na figura (b).	28
Figura 19: Gráfico da variação de β com a potência do LED (eixo-x inferior) representado pelos pontos em preto, e da variação de β com a dose (eixo-x superior) na amostra representado pelos pontos em vermelho. As linhas horizontais em preto e vermelho são as médias dos valores de β 0,34 e 0,35 respectivamente.	30
Figura 20: Relação entre β e a dose na amostra na figura (a) e relação entre β e a temperatura de leitura OSL na figura (b).	31
Figura 21: Na figura (a) OSL termicamente assistida para a fluorita para várias temperaturas, na figura (b) a TA-OSL somente para duas temperaturas.	33
Figura 22: Na figura (a) temos a comparação dos três estímulos para a mesma dose de 10 mGy de radiação beta onde a ITL em vermelho e a TA-OSL em azul são medidas em 185°C e a OSL em verde a temperatura ambiente, e na figura (b) a TL residual feita imediatamente depois das leituras mostradas em (a).	34
Figura 23: Diagrama para exemplificar a TA-OSL, CR é o centro de recombinação, as armadilhas de I-IV ilustras as armadilhas da fluorita usada no trabalho e AP é um exemplo de armadilha profunda.	35
Figura 24: Na figura (a) vemos algumas das leituras das TL residuais após as medidas TA-OSL, na figura (b) TL das amostras após todos o procedimento de leituras TA-OSL e nova irradiação (passo 5 do procedimento para TA-OSL).	36
Figura 25: Gráfico de $\ln(TA - OSL)$ por $1/\kappa T_i$ para o cálculo da energia de ativação para a amostra de fluorita.	37
Figura 26: Variação das curvas de TA-OSL medidas em 185°C com a dose para a amostra de fluorita na figura (a), bem como o sinal de TL residual na figura (b).	38
Figura 27: Area da curva de TA-OSL medidas em 185°C para a amostra de fluorita na figura (a) bem como o sinal de TL residual na figura (b).	39
Figura 28: Fading para a amostra de fluorita, o sinal está normalizado e a linha preta é apenas um guia para os olhos.	40

Figura 29: Fading do pico 3 representado pelos pontos pretos bem como o pico 4 como pontos vermelhos da TL residual das TA-OSL em 185°C para uma dose de 10 mGy.....	41
Figura 30: Sinal OSL para diversas energias para a amostra de fluorita na figura (a), bem como o sinal de TAOSL para as mesmas energias e mesmas dose (2m Gy) na figura (b).....	42
Figura 31: Curvas de dose resposta. Os pontos são os dados experimentais com as barras de incerteza e as retas o ajuste linear. Na legenda estão as energias efetivas dos feixes empregados na irradiação.	43
Figura 32: Resposta OSL para diversas energias para a amostra de fluorita na figura (a), bem como resposta TA-OSL para as mesmas energias na figura (b).	43
Figura 33 Resposta OSL e TA-OSL para diversas energias para a amostra de fluorita relativas à energia do Co-60.	44
Figura 34: Variação do parâmetro β em função da energia. Em vermelho estão os pontos para a TA-OSL para uma temperatura de 185°C, e em preto os valores de β para a OSL.	45
Figura 35: Sinal OSL, para uma dose de 10mGy de radiação beta para uma amostra de fluorita, para leita e exposição nas duas faces na figura (a) e sua TL residual na figura (b).	47
Figura 36: Distribuição de dose (keV/g por história) cilíndrica para a amostra de fluorita irradiada com radiação beta (Sr/Y-90). A linha horizontal mostra a posição z que corresponde a 50% da dose máxima.	48
Figura 37: Distribuição de dose (keV/g por história) cilíndrica para a amostra de fluorita. Note que a escala de cores muda para cada simulação. Uma linha horizontal mostra a posição z que corresponde a 50% da dose máxima em cada caso.	49

Sumário

1. INTRODUÇÃO.....	1
1.1 Considerações iniciais	1
1.2 Objetivos.....	2
2. FUNDAMENTOS TEÓRICOS	3
2.1 A luminescência em sólidos	3
2.2 A termoluminescência (TL) e a luminescência opticamente estimulada (OSL)	4
2.2.1 A termoluminescência (TL)	4
2.2.2 A luminescência opticamente estimulada (OSL)	8
2.3 A Fluorita.....	10
2.4 O método Monte Carlo.....	12
2.4.1 O código PENELOPE.....	12
2.5 Grandezas dosimétricas	14
3. MATERIAIS E MÉTODOS.....	17
3.1 Amostras	17
3.2 Tratamentos térmicos	18
3.3 Procedimentos de Irradiação e Equipamentos.....	19
3.3.1 O leitor TL/OSL	19
3.3.2 Tubo de raios X.....	20
3.3.3 Fonte de ⁶⁰ Co.....	21
3.4 Descrição da simulação Monte Carlo.....	21
3.4.1 Geometria da simulação	21
3.4.2 Características dos espectros de entrada	22
3.4.3 A energia de absorção dos fótons e dos elétrons	24
3.4.4 Limitações na simulação e número de histórias simuladas	24
4. RESULTADOS EXPERIMENTAIS E ANÁLISE.....	25
4.1 A curva de decaimento OSL.....	25
4.2 OSL termicamente assistida (TA-OSL)	31
4.3 O fading do sinal de TA-OSL	39
4.4 Dependência energética para a OSL e TA-OSL.....	41
4.5 Simulação MC	46
5. CONCLUSÕES	50
Sugestões para Trabalhos futuros.....	52
Referências Bibliográficas	53

Apêndice A	58
Script para simulação das curvas TL/OSL:	58
Script para ajustar a equação $I_{OSL} = I_1 e^{(-\frac{t}{\tau_1})^\beta} + I_2 e^{-\frac{t}{\tau_2}} + C$:	62

1. INTRODUÇÃO

1.1 Considerações iniciais

A radiologia diagnóstica é uma especialidade médica dinâmica que sofre rápidas mudanças com os avanços contínuos das técnicas e da tecnologia, e pode ser entendida como a análise de imagens obtidas usando tanto as radiações não ionizante como é o caso da ressonância magnética ou ainda ondas sonoras como na ultrassonografia, bem como as radiações ionizantes tais como radiografias simples, fluoroscopia e tomografia computadorizada (TC). Essa especialidade, pode ser usada para identificar uma ampla gama de situações como ossos quebrados, problemas cardíacos, problemas gastrointestinais e também pode rastrear doenças como câncer de mama. Além de identificar problemas, os médicos podem usar a radiologia diagnóstica para monitorar como o corpo de um indivíduo está respondendo a um tratamento, como por exemplo a radioterapia.

Em média, o uso dos raios X em medicina para o diagnóstico e tratamento de doenças contribui em 98% da exposição à radiação de todas as fontes artificiais e, depois das fontes naturais, é o segundo maior contribuinte para a exposição da população em todo o mundo (UNEP, 2016). Devido ao crescimento significativo do número total de procedimentos médicos radiológicos houve, também, um aumento significativo no do número de profissionais da saúde envolvidos na área. De modo que é muito importante para esse conjunto de trabalhadores um serviço de monitoração individual externa (SMIE) que avalie o equivalente de dose pessoal ($H_p(10)$) de maneira confiável.

O IFUSP tem um laboratório certificado para tanto, com o emprego de dosimetria termoluminescente (IRD, 2018); (OKUNO et al., 2017). Recentemente nosso laboratório propôs uma nova composição para o detector à base de fluorita utilizado no monitor individual (UMISEDO *et al.*, 2020), que poderá ser empregado para dosimetria pessoal por termoluminescência (TL) ou por Luminescência Ópticamente Estimulada (OSL).

A principal característica da dosimetria pessoal para os indivíduos ocupacionalmente expostos da área de radiologia diagnóstica é que, para essas faixas de energia dos raios X, há uma grande dependência energética da resposta da maioria dos detectores – eficiência de detecção fortemente

dependente da energia dos fótons. Outra característica é que o uso de filtros para modificar a dependência energética tem uma desvantagem para baixas energias de raios X, por introduzir uma forte dependência direcional da resposta dos detectores. Além disso, há evidências de uma possível relação entre a energia dos fótons de raios X com o formato das curvas TL/OSL. Portanto seria possível discriminar a energia do fóton incidente sem necessariamente usar filtros (MALTHEZ, *et al.*, 2018).

Todavia, para melhor determinar o equivalente de dose pessoal, nosso laboratório optou por determinar a energia média dos fótons que incidem no monitor individual, como descrito em (OKUNO *et al.*, 2017), baseado em metodologia desenvolvida pelo grupo anteriormente (YOSHIMURA; DA CRUZ, 1984);(GUIMARÃES *et al.*, 2007).

As mudanças efetuadas no detector baseado em fluorita, com a perspectiva de usar a propriedade de OSL, tornam necessário realizar novamente testes com os detectores de forma a verificar a possibilidade de emprego em dosimetria pessoal nessa área de aplicação.

1.2 Objetivos

O principal objetivo neste trabalho é estudar a resposta dosimétrica de detectores obtidos pela prensagem a frio de fluorita verde natural em pó combinado com um aglutinante comercial, para irradiação com fótons de raios X e Γ de diversas energias. Ao passo que os objetivos específicos do trabalho são:

- Obter a dependência energética das respostas OSL para várias faixas de dose absorvida e de energia de fótons (raios X e Γ), incluindo variações de formato nas curvas de emissão OSL, realizando experimentos de leitura TL / OSL combinados.
- Obter curvas de emissão OSL em temperaturas acima da temperatura ambiente, e avaliar mudanças nas propriedades dosimétricas da amostra.
- Simular com o método Monte Carlo (PENELOPE) a deposição de energia em situações equivalentes às experimentais.
- Contribuir para o conhecimento dos fenômenos luminescentes OSL e TA-OSL da fluorita verde.

2. FUNDAMENTOS TEÓRICOS

2.1 A luminescência em sólidos

Um sólido pode emitir luz após a absorção de certa quantidade de energia, a partir de dois processos bem conhecidos, o primeiro refere-se a energia absorvida que é convertida em calor. O calor se difunde através do material, que emite uma radiação chamada de Radiação Térmica (conversão de energia térmica em energia eletromagnética). Em outro processo, a energia absorvida é temporariamente armazenada em um estado excitado localizado e após um tempo τ essa energia é liberada, podendo ocorrer a emissão de luz. Essa luz é chamada de Luminescência. É comum nomear dois tipos de luminescência com base nesse tempo τ , a fluorescência onde $\tau < 10^{-8}$ s e a fosforescência para $\tau > 10^{-8}$ s. Em suma, a radiação térmica é a emissão de luz que toda a matéria possui a uma temperatura maior que o zero absoluto. Enquanto a luminescência é um processo pelo qual a luz emitida é característica do material luminescente (LEVERENZ, 1968).

Em geral a luminescência é explicada em termos de decaimentos exponenciais no tempo com uma constante de tempo característica τ . Este tipo de decaimento foi adotado a partir de experimentos em física atômica, discutidos a partir de esquemas de dois níveis, correspondentes a seguinte situação representada na Figura 1:

I - Excitando os elétrons de um estado fundamental '**f**' (um centro de recombinação) para um estado excitado '**e**'.

II - Esse elétron em estado excitado agora pode ficar preso em '**m**' (nível metaestável na banda de energia "proibida" entre '**e**' e '**f**') onde permanecerá até que receba energia suficiente para retornar a '**e**'.

III- Uma vez em '**e**' o elétron pode sofrer uma transição normal de volta para '**f**', com a emissão subsequente de luz.

Da mecânica estatística o tempo médio τ gasto na armadilha na temperatura T é dado por: $\tau = s^{-1} \exp(E/kT)$. Onde s é uma constante, E é a diferença de energia entre os estados '**m**' e '**e**' (chamado de profundidade da armadilha), k é a constante de Boltzmann. Usando a hipótese de

Randall & Wilkins, uma vez que o elétron foi liberado de sua armadilha a probabilidade de retornar a 'm' é muito menor do que a probabilidade de retornar ao estado fundamental 'f', a intensidade da emissão de luz em qualquer instante $I(t)$ é proporcional à taxa de recombinação (taxa de transições **m-e**). Assim, $I(t)$ é proporcional à taxa de liberação de elétrons da armadilha: $I(t) = C \frac{dn}{dt} = \frac{Cn}{\tau}$. Onde C é uma constante de proporcionalidade e n é o número de elétrons presos em 'm'. Resolvendo essa equação diferencial obtemos $I(t) = I_0 \exp(-t/\tau)$, que é a equação de luminescência para um modelo simples (os elétrons foram usados como ilustração, mas também vale para os buracos) a uma temperatura constante T (MCKEEVER, 1988).

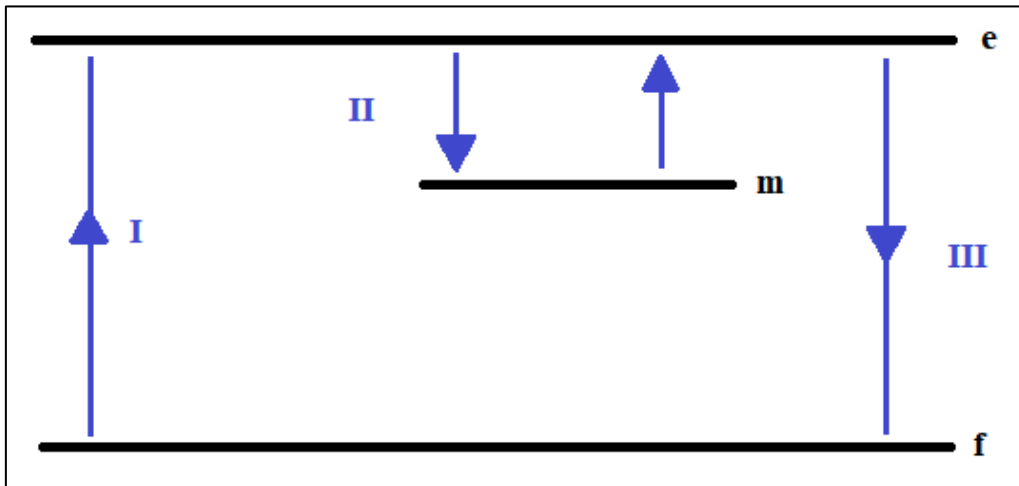


Figura 1: Representação para a transição de energia para fenômenos de luminescência

2.2 A termoluminescência (TL) e a luminescência opticamente estimulada (OSL)

2.2.1 A termoluminescência (TL)

De um ponto de vista fenomenológico, TL é a emissão de luz por um isolante ou semicondutor quando aquecido. A termoluminescência é a emissão termicamente estimulada de luz após a absorção prévia de energia da radiação (MCKEEVER, 1988).

Do ponto de vista microscópico, a TL consiste na perturbação do sistema eletrônico de um material isolante ou semicondutor, indo de um estado de equilíbrio termodinâmico, para um estado metaestável através da absorção de energia externa, cedida pela radiação ionizante. Isto é então

seguido pelo retorno ao estado de equilíbrio, após um estímulo térmico, precipitando a emissão de luz, que, sem o aquecimento, demoraria muito tempo para ocorrer.

Um gráfico da intensidade da luz emitida em função da temperatura pode ter um ou mais máximos, cada um correspondendo a uma armadilha ou nível de energia (FURETTA, 2010). Uma curva de emissão luminescente típica da fluorita pode ser vista na Figura 2.

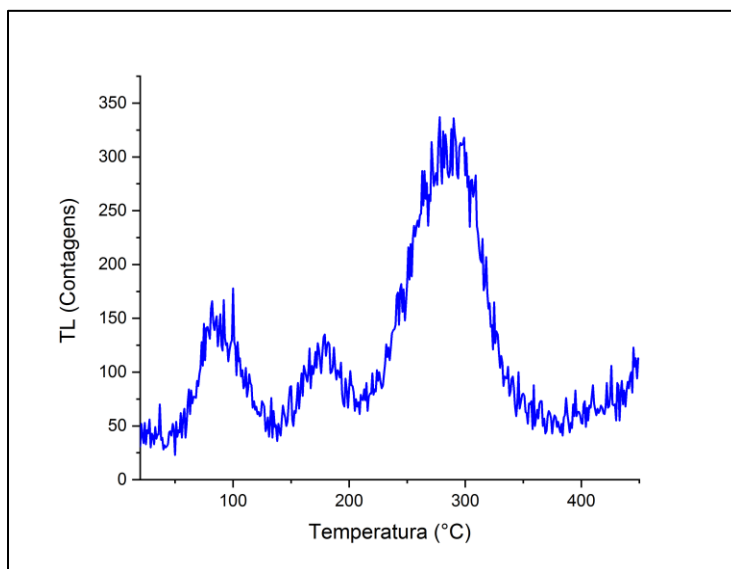


Figura 2: Curva de emissão luminescente típica da fluorita utilizada nesse trabalho

Um modelo bastante simples que podemos usar para explicar a TL é mostrado na Figura 3, com um diagrama de níveis de energia com uma armadilha de elétrons e um centro de recombinação, onde cada parâmetro nesse modelo representa: E (eV) é a energia de ativação para liberar um elétron armadilhado, s (s^{-1}) é uma fator de frequência associado a vibração da rede cristalina, A_m ($cm^3 s^{-1}$) e A_n ($cm^3 s^{-1}$) são os coeficientes de probabilidade de recombinação e re-armadilhamento, respectivamente, B ($cm^3 s^{-1}$) é o coeficiente de probabilidade de aprisionamento de buracos livres nos centros de buracos, M (cm^{-3}) é a concentração dos centros de buracos e m (cm^{-3}) a quantidade de buracos armadilhados nesse centro, N (cm^{-3}) é a concentração de armadilhas de elétrons e n (cm^{-3}) representa a ocupação dessas armadilhas, n_c e n_v são, respectivamente, as concentrações de elétrons e buracos livres. X ($cm^{-3} s^{-1}$) é a taxa de produção de pares de elétron-buraco, proporcional à taxa de dose.

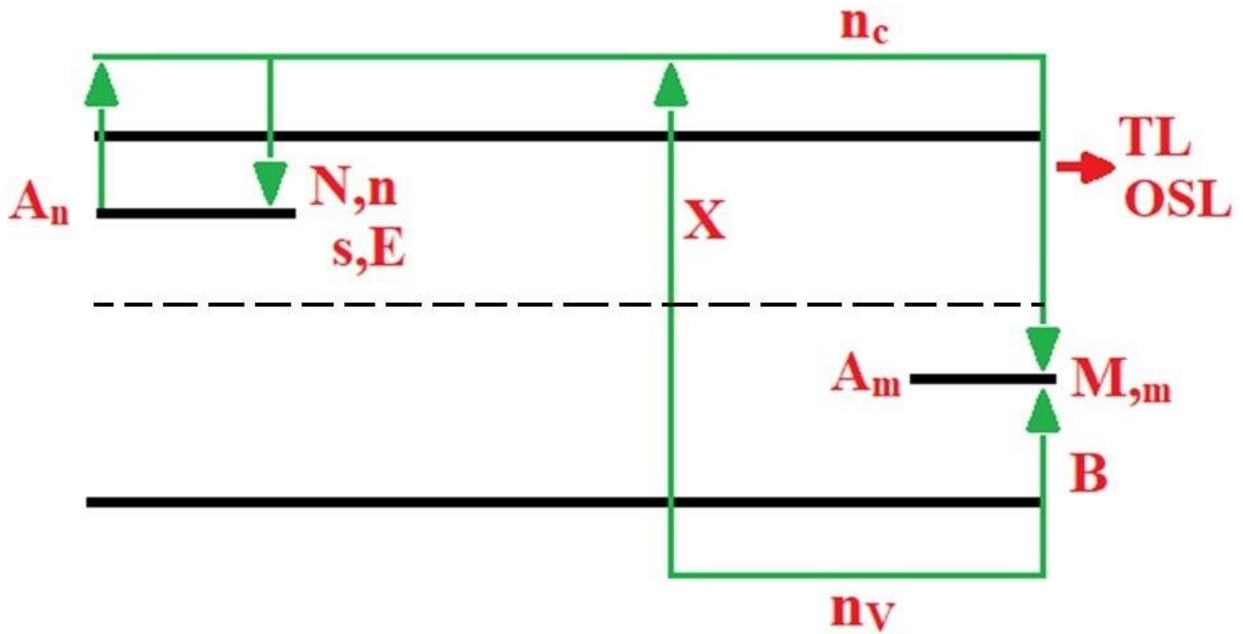


Figura 3: Diagrama de níveis de energia mostrando uma armadilha de elétrons acima do nível de Fermi (linha preta tracejada) e um centro de recombinação abaixo.

O conjunto de equações diferenciais que descreve o modelo durante a excitação feita pela irradiação com a radiação ionizante, que libera pares de íons, na temperatura T , é:

$$\frac{dn}{dt} = A_n (N-n) n_c - n s e^{\frac{-E}{kT}} \quad (1)$$

$$\frac{dm}{dt} = B(M-m) n_v - A_m m n_c \quad (2)$$

$$\frac{dn_c}{dt} = X - A_n (N-n) n_c - A_m m n_c \quad (3)$$

$$\frac{dn_v}{dt} = \frac{dn}{dt} + \frac{dn_c}{dt} - \frac{dm}{dt} \quad (4)$$

Ao resolver essas equações para o processo de excitação, termina-se com uma concentração finita de elétrons livres, n_c e buracos livres, n_v . Em seguida, pode-se resolver novamente as equações (1-4) considerando $X = 0$, e considerando como parâmetros iniciais as soluções do conjunto anterior, para simular o período de relaxamento entre a excitação e o aquecimento.

Após essa etapa, n_c e n_v são muito pequenos, e de acordo com a hipótese Randall & Wilkins, uma vez que um elétron é elevado termicamente para a banda de condução, ele executa imediatamente a recombinação com um buraco preso no centro de recombinação. Considerando um aquecimento

da forma $T = T_0 + qt$, onde T_0 (K) e T (K) são respectivamente, a temperatura inicial e a temperatura no instante t , q (K / s) é a taxa de aquecimento constante. Dessa forma o conjunto de equações para a etapa de aquecimento é:

$$\frac{dn}{dt} = A_n (N-n)n_c - nse^{\frac{-E}{kT}} \quad (5)$$

$$\frac{dm}{dt} = - A_m mn_c \quad (6)$$

$$\frac{dm}{dt} = \frac{dn}{dt} + \frac{dn_c}{dt} \quad (7)$$

Este conjunto de equações diferenciais acopladas não pode ser resolvido analiticamente, a solução mostrada na Figura 4, foi obtida numericamente usando a função ODE45 no MATLAB (SHAMPINE, *et al.*, 2005).

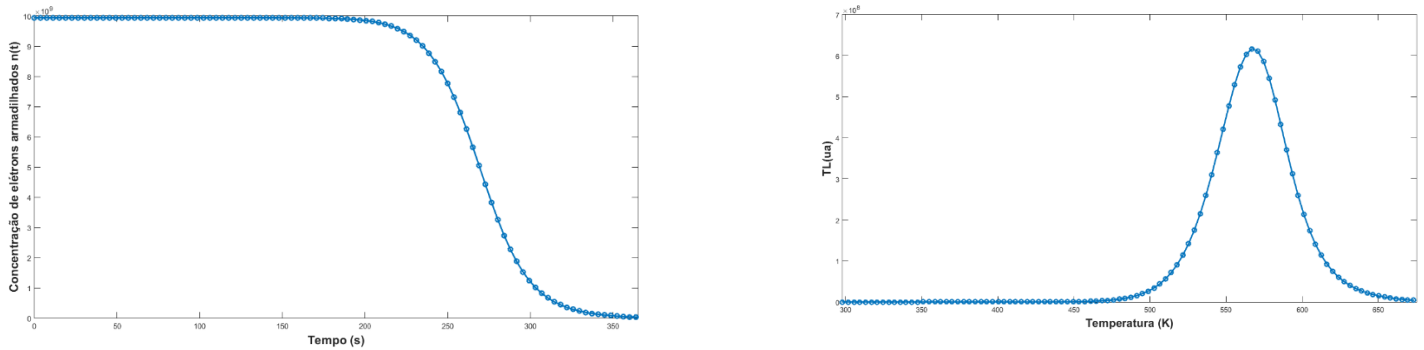


Figura 4: Resultado da simulação das equações diferenciais 1-7, para os seguintes parâmetros: $s = 10^{12} \text{ s}^{-1}$, $E = 1.5 \text{ eV}$, $A_n = 4.6 \times 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$, $A_m = 4.6 \times 10^{-7} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$, $B = 4 \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$, $X = 5 \times 10^7 \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$, $N = 10^{10} \text{ cm}^{-3}$, $M = N = 10^{10} \text{ cm}^{-3}$.

A concentração total de estados ocupados, como mostra a Figura 4 varia com a temperatura (ou tempo). Podemos representar essa concentração de estados ocupados (m ou n) por:

$\mu(t) = \int_{\gamma_1} \int_{\gamma_2} \dots \int_{\gamma_m} n(\gamma_1, \gamma_2, \dots, \gamma_m) d\gamma_1 d\gamma_2, \dots, d\gamma_m$, onde $n(\gamma_1, \gamma_2, \dots, \gamma_m)$ é uma distribuição, que expressa a concentração de estados ocupados que possuem os parâmetros $\gamma_1, \gamma_2, \dots, \gamma_m$ (relacionados ao nível de energia de cada armadilha) que, por sua vez, governam a probabilidade por unidade de tempo do sistema retornar ao equilíbrio (BØTTER-JENSEN et al, 2003). A intensidade de luminescência detectada será proporcional à taxa na qual os portadores de carga retornam ao estado de equilíbrio, de modo que: $I(t) = \frac{d\mu(t)}{dt}$.

E para avaliar melhor essa equação podemos usar uma relação do tipo: $\frac{d\mu(t)}{dt} = \mu(t) p(t)$, onde podemos assumir o princípio de superposição - ou seja, não há interação entre os estados, e escrever:

$$\frac{d\mu(t)}{dt} = \int_{\gamma_1} \int_{\gamma_2} \dots \int_{\gamma_m} n(\gamma_1, \gamma_2, \dots, \gamma_m) p(\gamma_1, \gamma_2, \dots, \gamma_m) d\gamma_1 d\gamma_2 \dots d\gamma_m \quad (8)$$

A forma de $p(\gamma)$ depende do método de estímulo, no caso, térmico ou óptico. No caso térmico, podemos escrever: $p(F) = \nu K e^{\frac{-F}{kT}}$, onde ν é a frequência de vibração da rede de fônons, K uma constante de probabilidade de transição e F a barreira de energia livre de Helmholtz que necessita ser vencida para o decaimento do estado metaestável. (BØTTER-JENSEN et al, 2003)

A equação pode ser expandida usando $F = E - \Delta S T$, onde ΔS é a variação na entropia:

$$p(F) = \nu K e^{\frac{-F}{kT}} = \nu K e^{\frac{\Delta S}{k} - \frac{E}{kT}} = s e^{\frac{-E}{kT}} \quad (9)$$

Portanto a equação 9 é o segundo termo da equação diferencial 5, de modo que E representa a "profundidade da armadilha" e p é a probabilidade de liberar um elétron armadilhado.

2.2.2 A luminescência opticamente estimulada (OSL)

Semelhante a TL, a OSL é a emissão de luz por um semiconductor ou isolante observada quando exposto a luz com determinado comprimento de onda de estímulo λ_{est} , após a absorção prévia de energia. Essa luz observada é característica de cada material, de maneira que a luz que detectamos tem comprimento de onda (λ_{OSL}) diferente da usada no estímulo ($\lambda_{OSL} < \lambda_{est}$) (YUKIHARA *et al*, 2011). Como a termoluminescência e a luminescência opticamente estimulada são fenômenos intimamente relacionados, e o modelo usado na Figura 3 para explicação da TL é muito semelhante ao da OSL, nesse modelo simples só teremos uma alteração no conjunto de equações diferenciais (5) a (7).

No caso da OSL, a função p na equação 9, será escrita como: $p = \Phi \sigma$, onde Φ (fótons por $cm^{-2} s^{-1}$) representa o fluxo de fótons e σ (cm^2) representa a seção de choque óptica. Para estímulo óptico,

usando um comprimento de onda fixo λ_{est} e uma intensidade de iluminação constante Φ a luminescência registrada é conhecida como OSL de onda contínua (CW-OSL).

O novo conjunto de equações diferenciais, que descreve o modelo durante o estímulo é:

$$\frac{dn}{dt} = A_n (N-n) n_c - n\Phi\sigma \quad (10)$$

$$\frac{dm}{dt} = -A_m m n_c \quad (11)$$

$$\frac{dm}{dt} = \frac{dn}{dt} + \frac{dn_c}{dt} \quad (12)$$

Supondo que todos os elétrons em estados excitados se recombinem imediatamente, e que intensidade da luz emitida seja proporcional à taxa de elétrons que escapam dos centros de armadilhamento, a solução desse conjunto de equação (10) a (12), pode ser vista na Figura 5, que representa uma curva de decaimento OSL obtida em modo CW (continuous wave – ou iluminação com potência constante).

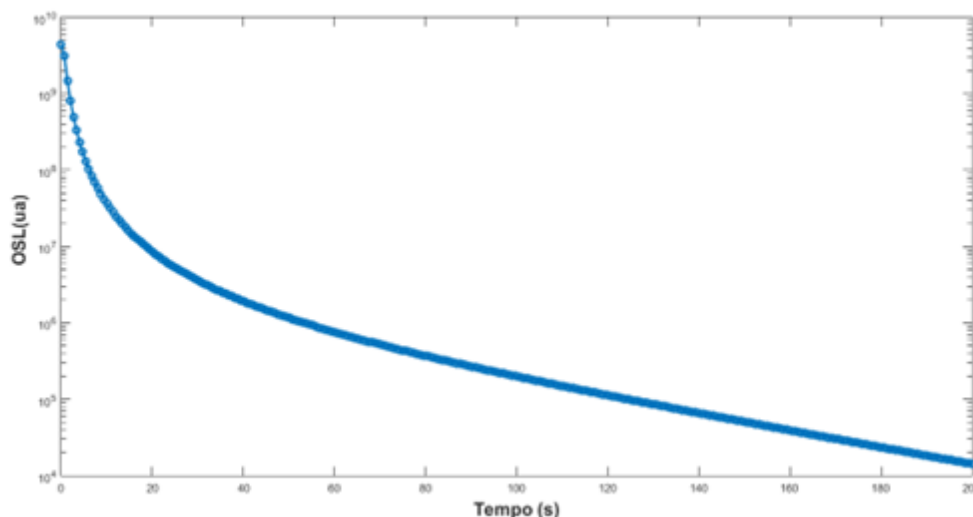


Figura 5: Resultado da simulação das equações diferenciais 10 a 12, para os seguintes parâmetros: $s = 10^{12} \text{ s}^{-1}$, $E = 1.5 \text{ eV}$, $A_n = 4.6 \times 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$, $A_m = 4.6 \times 10^{-7} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$, $B = 4 \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$, $X = 5 \times 10^7 \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$, $N = 10^{10}$, $M = N = 10^{10} \text{ cm}^3$.

As técnicas de OSL têm vantagens sobre as técnicas TL por uma série de razões. A vantagem mais clara reside no fato de que o método de leitura é totalmente óptico, não sendo necessário o aquecimento das amostras (embora possam existir algumas vantagens em fazer leituras OSL em temperaturas acima do ambiente). Além de eliminar a necessidade de um sistema de aquecimento

confiável, ajuda a lidar com os problemas relacionados ao *thermal quenching* (redução na eficiência da luminescência conforme a temperatura da amostra aumenta, devido à abertura de vias de relaxamento não radiativas).

Outra vantagem de um sistema óptico de estímulo é a possibilidade de variar o arranjo experimental para obter, ao invés de uma iluminação contínua como foi o caso discutido acima, uma iluminação linearmente modulada (LM-OSL) ou pulsada (POSL). Enfim o estímulo óptico favorece outros arranjos experimentais em que a luminescência pode ser estimulada.

Em geral a alta sensibilidade OSL também leva a vantagens relacionadas a múltiplas leituras, uma vez que não é necessário estimular todas as armadilhas para ter um sinal de luminescência suficiente para leitura. Desse modo permaneceria um sinal residual, que pode ser estimulado posteriormente, uma segunda ou terceira vez, para fins de verificação de dose. Finalmente, o processo de leitura óptica pode ser feito muito rapidamente, ajustando a potência da luz usada no estímulo, levando a vantagens associadas à análise rápida de muitos dosímetros. (YUKIHARA, 2011)

2.3 A Fluorita

Fluorita é o nome para o mineral natural fluoreto de cálcio CaF_2 . Sua estrutura cristalina é cúbica de face centrada nos íons de Ca^{2+} , a célula unitária mostrada na Figura 6, possui 8 íons de Ca^{2+} de modo que cada ânion de F^- é cercado por 4 íons de Ca^{2+} . Os parâmetros da célula são $a=b=c=5.463\text{Å}$ (arestas do cubo), $\alpha=\beta=\gamma=90^\circ$ (onde α , é o ângulo entre b e c; β , é o ângulo entre a e c; γ , o ângulo entre a e b) (SCHREYER et al, 2014).

Embora o material puro seja incolor, o mineral natural costuma ser bastante colorido devido à presença de “centros F” (defeitos intrínsecos que correspondem a vacâncias de ânions ocupada por 1 ou mais elétrons armadilhados) e a impurezas comuns em minerais naturais, no caso da fluorita a substituição do cátion de cálcio por certos elementos terras raras, como ítrio e cério, além de ferro, sódio e bário que também são impurezas comuns.

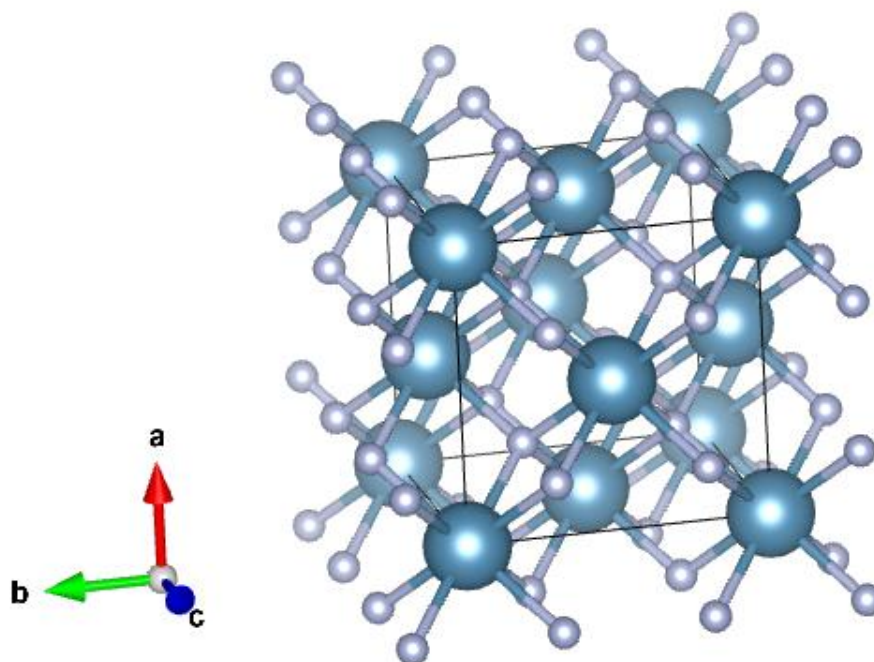


Figura 6: Estrutura da célula unitária de CaF_2 construído a partir do software VESTA (MOMMA et al, 2011), onde a esfera grande representa o Ca e a pequena representa o F

A gama de cores comuns para a fluorita é enorme sendo possível encontrá-la nas cores roxa, azul, verde, amarelo, incolor, marrom, rosa, preto e laranja avermelhado, e cores intermediárias entre essas citadas. Não à toa a fluorita ganhou a reputação de “O Mineral Mais Colorido do Mundo” (e talvez rivalizando na gama de cores com o quartzo). (ROPP, 2012)

A fluorita é bastante abundante e é a principal fonte comercial do elemento flúor. É amplamente utilizada na indústria, em especial na metalurgia para a fabricação do aço, como fluidificante de escórias, fabricação do alumínio, fundição de ligas especiais, fundição de zinco e magnésio, e como citado na indústria química o uso mais tradicional é a obtenção do flúor elementar, além de fluoretos inorgânicos e ácido fluorídrico (HF).

A fluorita exibe um forte sinal TL/OSL, e, após tratamento térmico, pode ser utilizada de forma satisfatória para fins de dosimetria de radiação. No Brasil, um grupo do Instituto de Física da Universidade de São (UFUSP) e do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN) nos anos 60 liderados pelo professor S. Watanabe começaram os estudos da TL da fluorita brasileira de uma

jazida em Criciúma. E foram Okuno (OKUNO, 1971) e Cruz (CRUZ, 1972) que estabeleceram as condições de estabilidade e reprodutibilidade do sinal TL da fluorita brasileira, enfatizando o uso do material para fins de dosimetria de radiação. (TRZESNIAK *et al.*, 1990)

2.4 O método Monte Carlo

O método Monte Carlo (MC) é uma ferramenta numérica, que faz uso de algoritmos estocásticos para simular o comportamento de sistemas físicos ou matemáticos. Foi apresentado pela primeira vez em 1940 por Metropolis e Ulam, e teve seu potencial testado pela primeira vez em 1945, após a invenção do primeiro computador – O ENIAC (METROPOLIS, 1987).

O ENIAC, foi desenvolvido na Universidade da Pensilvânia e teve como responsáveis o físico John Mauchly e o engenheiro Presper Eckert. Mauchly, que tinha familiaridade com os contadores Geiger nos laboratórios de física, percebeu que se esse circuito era capaz de contar, então ele poderia realizar operações, e por que não, resolver equações diferenciais. Foi Von Neumann quem programou o ENIAC para realizar cálculos com o método Monte Carlo (METROPOLIS, 1987) (ECKHARDT, ULAM e VON NEUMANN, 1987) .

Hoje em dia, temos disponíveis diversos códigos MC como o PENELOPE (SEMPAU, BADAL e BRUALLA, 2011) e o GEANT4 (AGOSTINELLI *et al.* 2003) que são usados na física médica para estudar e simular o transporte de radiação na matéria. Esses códigos MC simulam o transporte de radiação na matéria, calculando uma interação partícula-material, uma partícula por vez – chamada de história. Quando a partícula simulada atinge uma energia menor do que a energia de corte, ou deixa a região de interesse da simulação, sua história acaba, e começa a simulação de outra partícula.

2.4.1 O código PENELOPE

O código Monte Carlo usado nesse trabalho é o PENELOPE, com a interface PenEasy V20190921, cujo nome é um acrônimo para *PENetration and Energy LOss of Positrons and Electrons*. Inicialmente o código simulava somente elétrons e passou, mais tarde, a simular também fótons. O algoritmo de simulação é baseado em um modelo de espalhamento que combina bancos de dados

numéricos com modelos analíticos de seção choque para os diferentes mecanismos de interação e é aplicável a energias de partícula com valores de 50 eV a 1 GeV.

Alguns parâmetros usados na simulação devem ser fornecidos pelo usuário, através de um arquivo de entrada. Esses parâmetros são:

- Localização da fonte de radiação.
- Geometria da fonte de radiação.
- Energia inicial das partículas.
- Direção de propagação.
- Número inicial de partículas.
- Geometria do espaço (geometria de todo o sistema simulado, detector, fonte, objetos de interesse).
- Energia de corte de fótons e elétrons.

A simulação da primeira partícula é dada a partir da posição e da geometria da fonte. A simulação do espaço onde o PENELOPE simula o transporte de energia é feita com uma sub-rotina o PENGEO, que funciona com a superposição de planos, superfícies cônicas, hiperboloides, esferas e elipses. A interseção de superfícies define um volume que o PENELOPE chama de corpos (“body”).

A composição atômica dos corpos é feita com outra sub-rotina, chamada MATERIAL, que contém as densidades e a fração por peso de cada elemento presente na geometria criada. A fração por peso de cada elemento no volume que define a probabilidade de a partícula interagir com aquele elemento. Por fim no arquivo de entrada, é configurado a energia de absorção dos fótons e dos elétrons, que é a energia na qual a história da partícula é finalizada. Esses valores são definidos para cada material na simulação. Um fluxograma simples da estrutura do código é mostrado na Figura 7.

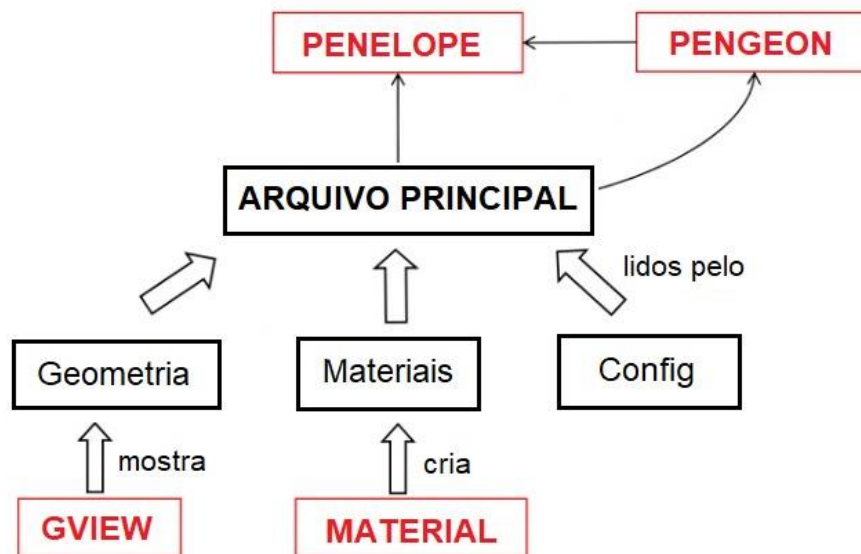


Figura 7: Fluxograma do código PENELOPE, onde em vermelho são arquivos fornecidos pelo PENELOPE, e em preto são informações que o usuário deve fornecer ao código.

Vale ressaltar que toda simulação possui limitações, seja por simplificações no modelo, ou por aproximações nas contas das seções de choque. No caso do PENELOPE, as estruturas moleculares são desprezadas, e para energias muito baixas, valores menores que 1keV, os bancos de dados de seção de choque não possuem resultados tão acurados, quanto para energias mais elevadas.

2.5 Grandezas dosimétricas

O uso de radiação ionizante na ciência, indústria ou na medicina requer uma habilidade para medir com precisão a quantidade e qualidade da radiação ionizante produzida por uma fonte radioativa ou equipamento de raios X. Em especial a precisão é importante no uso médico para diagnóstico (imagem de raios-x e medicina nuclear) ou tratamento (radioterapia) de doenças. Na imagem, o objetivo é obter a melhor qualidade de imagem com dose mínima de radiação; na radioterapia é entregar a dose prescrita para o volume alvo com os melhores valores possíveis, sem ultrapassar valores de dose seguros nos órgãos sadios.

De modo que se faz necessário falar de algumas das principais grandezas da física das radiações, introduzidas no começo do século XX, depois da descoberta que a radiação poderia destruir tecidos. As grandezas usadas na física das radiações estão separadas em três grupos como mostra a Figura

8, e, como podemos notar as grandezas operacionais e de proteção são baseadas na definição de uma grandeza física fundamental chamada de dose absorvida.

A **dose absorvida** é definida como a energia média ($d\bar{\epsilon}$) depositada pela radiação em um meio de massa dm : $D = \frac{d\bar{\epsilon}}{dm}$. Sua unidade no sistema internacional é o gray (Gy), sendo $1 \text{ Gy} = 1 \text{ J/kg}$.

Outra grandeza física cuja unidade também é o gray, é o **kerma** (acrônimo para “Kinetic energy released in matter”), que é dada pela razão entre a energia transferida (dE_{tr} soma de todas as energias cinéticas iniciais das partículas carregadas liberadas por partículas sem carga (fótons, nêutrons)) por dm : $K = \frac{dE_{tr}}{dm}$.

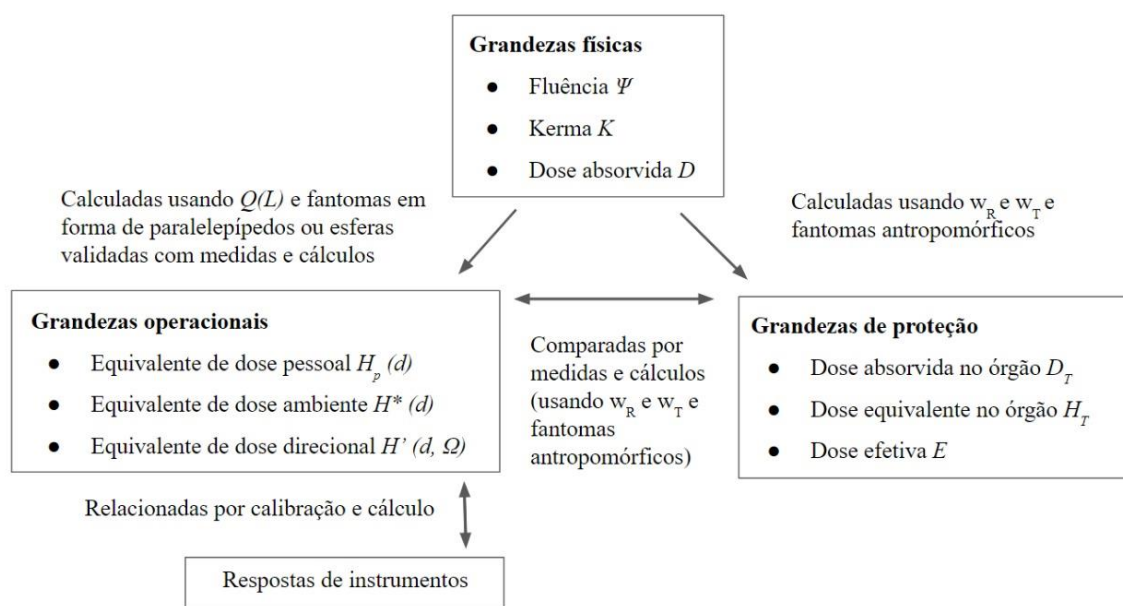


Figura 8: Relação de grandezas para fins de monitoramento e proteção radiológica (ICRU, 1998).

Essas duas grandezas podem ser medidas experimentalmente, em especial pode-se estimar o kerma no ar na entrada do corpo de um ser humano e a dose absorvida na pele (OKUNO, 2018).

Outra grandeza que é importante ser definida nesse trabalho, e pode ser estimada a partir das grandezas acima é o **equivalente de dose pessoal**, que é uma grandeza operacional para monitoração individual externa. Definida como o produto da dose absorvida em um ponto na

profundidade d , abaixo de um ponto especificado sobre o corpo, ponderada por um fator Q de qualidade da radiação nesse ponto: $H_p(d) = DQ$.

Essas grandezas, foram mudando e sendo mais bem definidas com o passar do tempo, junto com o desenvolvimento das técnicas de medição de radiação ionizante estimulado pela rápida expansão da pesquisa em física da radiação; devido ao grande potencial dos raios X e da radioatividade na medicina, bem como na indústria comercial e militar, de modo que a dosimetria da radiação se tornou e ainda é o componente mais importante da física das radiações.

3. MATERIAIS E MÉTODOS

3.1 Amostras

As amostras de fluorita utilizadas neste trabalho pertencem ao Grupo de Dosimetria e Física Médica do IFUSP, são cristais de cor verde obtidas a partir de uma jazida em Criciúma na sua forma bruta (TRZESNIAK *et al.*, 1990). Os cristais foram enviados ao laboratório de caracterização tecnológica na Escola Politécnica, e a identificação foi efetuada através do pó de fluorita, mediante o emprego de difratômetro de raios X.

A identificação das fases cristalinas, discriminadas como mostra a Figura 9, foi obtida por comparação do difratograma da amostra com os bancos de dados PDF2 do ICDD - International Centre for Diffraction Data e ICSD – Inorganic Crystal Structure Database. As linhas azuis indicam as fases identificadas da fluorita (01-077-2245) e as linhas em verde indicam uma possível presença de quartzo (01-083-0539).

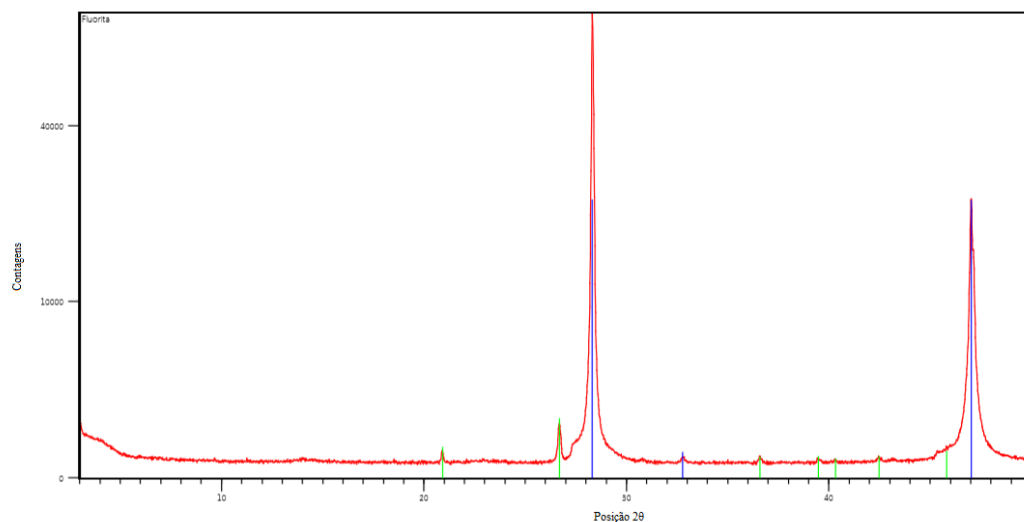


Figura 9: XRD da amostra de fluorita Natural em vermelho, e em azul as fases características da fluorita de acordo com o banco de dados do ICDD.

O processo de fabricação das pastilhas que serão usadas como dosímetros emprega o pó da fluorita, triturado com tamanho de grão entre 85 μm e 185 μm , após o tratamento térmico, o pó é misturado com um aglutinante líquido usando na cola Durabond 950 da Cotronics Corp (resistente a temperaturas até 650°C).

A mistura é prensada a frio por meio de uma prensa hidráulica, e submetida a um processo de cura no forno por 12h a 100°C. As amostras em forma de disco de 5mm de diâmetro foram lixadas para obter uma espessura adequada e uma superfície lisa. A proporção do pó de fluorita e do aglutinante é de 100:30 partes por peso. A distribuição de massas do lote de 48 pastilhas produzidas pode ser vista na Figura 10, com média 0,054g e desvio padrão 0,003g. Nas amostras foram feitas leituras de OSL/TA-OSL e em algumas somente leituras TL.

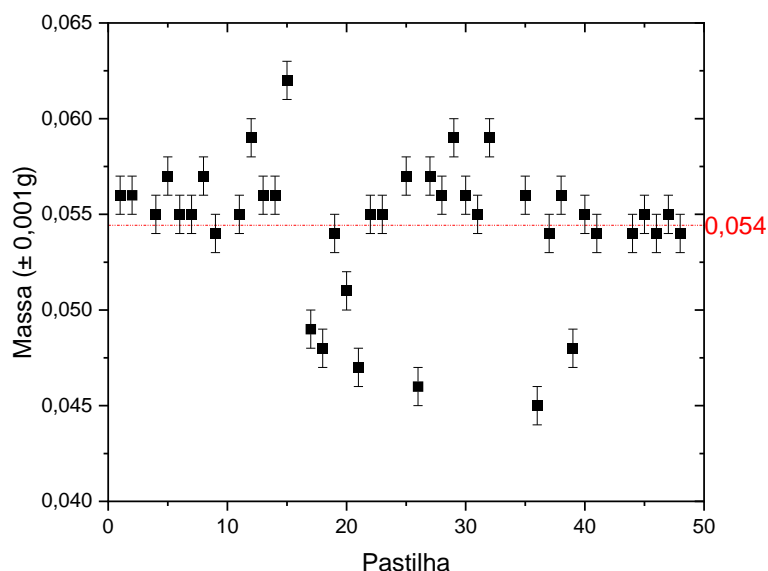


Figura 10: Distribuição de massas das amostras de fluorita.

3.2 Tratamentos térmicos

Os tratamentos térmicos realizados em materiais naturais são necessários para manter a estabilidade e a sensibilidade (o sinal OSL/TL por dose de radiação) do material usado para a dosimetria. Nesse trabalho dois tipos de tratamentos térmicos foram efetuados para preparar o material para uso dosimétrico.

O pó de fluorita foi aquecido a 600°C por 15 minutos, num forno mufla da marca: EDG Equipamentos e Modelo: Edgcon 3P para reduzir a fotossensibilidade e esvaziar as armadilhas

importantes para a dosimetria; um aquecimento posterior a 400°C por 2 horas para estabilizar a resposta TL a radiação ionizante.

O resfriamento da amostra é feito retirando-se o recipiente de cerâmica do forno e colocando-o sobre uma superfície de alumínio espessa a temperatura ambiente. Todo o processo do tratamento térmico é feito no ar.

3.3 Procedimentos de Irradiação e Equipamentos

3.3.1 O leitor TL/OSL

As irradiações foram realizadas no laboratório do Grupo de Dosimetria e Física Médica do IFUSP. As medidas de TL e OSL foram realizadas usando o leitor comercial produzido pelo Risø DTU National Laboratory modelo DA-20 (Figura 11).

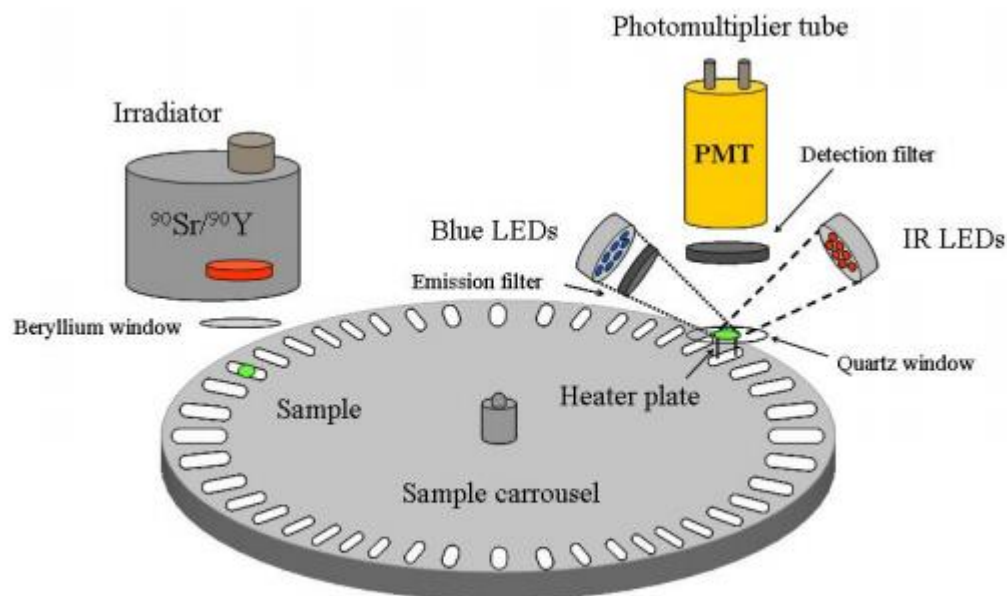


Figura 11: Esquema do leitor de TL/OSL Risø

A luminescência é estimulada utilizando diodos emissores de luz azul (470 nm, FWHM = 20 nm) distribuindo 80 mW/cm², na posição da amostra, em modo CW, e para o caso da TL é utilizado o sistema de aquecimento do próprio equipamento, com temperatura máxima recomendada de 700°C, e taxa de aquecimento podendo variar de 0,1°C/s até 10°C/s.

Os sinais TL/OSL são detectados com um tubo fotomultiplicador (PMT) atrás de um filtro óptico transmissor de UV (Hoya U-340, 7,5 mm de espessura e 45 mm de diâmetro) para bloquear a luz de estimulação e transmitir parte do sinal OSL, além desse filtro também é utilizada uma máscara (colimador de luz) de 5 mm de diâmetro.

As irradiações utilizando a fonte beta $^{90}\text{Sr} / ^{90}\text{Y}$ com energia máxima de 2,27MeV e atividade em torno de 1,48GBq são realizadas à temperatura ambiente utilizando irradiador incorporado ao leitor TL / OSL com taxa de dose aproximadamente de 10 mGy/s. A fonte é montada em uma roda giratória de aço inoxidável, que é acionada pneumaticamente. O tempo para ir da posição fechada para a aberta é 0,11s.

A distância fonte-amostra deve ser tão pequena quanto possível para fornecer a maior taxa de dose possível, no caso do Risø essa distância é 7mm. Há um atenuador de 0.1 cm alumínio após a fonte e uma janela de quartzo de 0,0125 cm que está localizada entre o irradiador e a amostra para atuar como interface de vácuo.

O procedimento para as leituras dos sinais TL/OSL é bastante direto, uma vez que o editor de sequências a ser realizado pelo leitor Risø é bastante intuitivo, uma sequência é como uma planilha - é uma grade retangular de colunas e linhas. A unidade básica de uma sequência é uma célula, na qual um único comando é armazenado. Esse comando pode ser, dentre outros, expor a amostra a radiação, estimular a amostra com calor ou luz. Todas as leituras foram realizadas imediatamente após a irradiação.

3.3.2 Tubo de raios X

O tubo de raio X utilizado nesse trabalho é o modelo X MG 540 fabricado pela Philips (Philips GmbH, Hamburgo, Alemanha) com um alvo fixo de tungstênio (W) e uma filtração inerente de 2,2 mm de berílio (Be), conectado a um gerador de potencial constante. Esse equipamento possui uma unidade de controle modelo MGC 30, podendo ser acionado pela sala anexa ao local em que se encontra o equipamento.

Durante as irradiações com raios X, utilizamos uma filtração adicional fixada no colimador do feixe; o colimador é feito de chumbo, recoberto por inox e com um orifício cônico de diâmetro menor 5 cm. A filtração foi adicionada para que o feixe correspondesse a um feixe com as qualidades de radiação de referência para espectro estreito fornecidos pela norma NBR ISO – 4037 de 2020 (ABNT,2020). A tabela 1 mostra as qualidades de radiação de referência usadas nesse trabalho.

Tabela 1: Características da série de espectro estreito fornecidas pelo relatório 4037 da NBR ISO (ABNT,2020)

Qualidade	Potencial do Tubo (kV _p)	Filtro Adicional (mm)				Primeira CSR (mm de Cu)	Segunda CSR (mm de Cu)	Energia Média (keV)	Energia Efetiva (keV)
		Al	Cu	Sn	Pb				
1	60	4,0	0,6	-	-	0,234	0,263	47,9	45,3
2	80	4,0	2,0	-	-	0,580	0,622	65,2	63,5
3	100	4,0	5,0	-	-	1,09	1,15	83,3	82,1
4	120	4,0	-	2,5	-	2,30	2,41	100	100
5	200	4,0	2,0	3,0	1,0	3,92	3,99	165	164

Os valores de primeira e segunda camada semirredutora (CSR), assim como a posição das amostras expostas a radiação são medidas a 1m do ponto focal.

3.3.3 Fonte de ⁶⁰Co

A fonte de ⁶⁰Co usada nesse trabalho é uma fonte selada com atividade de 199,52 mCi em 06/09/2007, localizada dentro de um irradiador com blindagem cilíndrica de chumbo, com uma abertura circular de controle manual. Durante as irradiações as amostras foram colocadas a 190 cm da fonte em suportes de madeira apoiados em mesa com tampo de poliestireno expandido. Essa foi a fonte foi usada nos experimentos para a determinação da dependência energética das amostras.

3.4 Descrição da simulação Monte Carlo

3.4.1 Geometria da simulação

Nesse trabalho a deposição de energia foi simulada em duas geometrias diferentes. A geometria simulada para a deposição de energia da radiação beta, onde as amostras foram expostas à fonte de ⁹⁰Sr /⁹⁰Y do leitor de TL/OSL Risø, possui as seguintes características:

- O dosímetro de fluorita CaF₂ de espessura de 0,1 cm e raio 0,255 cm, posicionada a 0,7 cm da fonte.

- Fonte de radiação fonte de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ com 0,05 cm de espessura e 0,5 cm de raio posicionada a 0,7 cm da amostra (obtidas a partir do manual Guide to “The Risø TL/OSL Reader”).
- Atenuador de 0,1 cm de Al.
- Janela de quartzo de 0,0125 cm de espessura de 0,6 cm de raio entre a fonte e a amostra.

Como as medidas não são feitas a vácuo, uma esfera de ar de 1m foi simulada, uma imagem da geometria descrita pode ser vista na Figura 12.

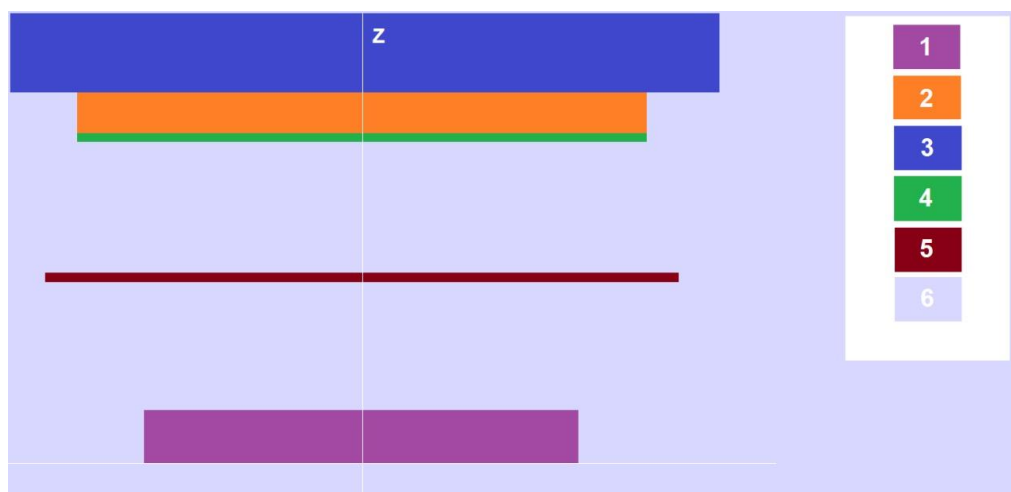


Figura 12: Simulação da geometria da situação de irradiação do equipamento Risø TL/OSL reader Model DA-2. O Material 1 é a fluorita, Material 2 é a fonte de radiação, Material 3 é a capsula de Al, Material 4 é o atenuador de Al e o Material 5 é a janela de quartzo, o material 6 representa o ar.

A geometria da simulação com o raio X é relativamente mais simples, pois o tubo raio X não será simulado, uma vez que como fonte de radiação será usado um PSF (*phase space file*) como será discutido em 3.4.2. Outro fator que simplifica a simulação da geometria é que o detector é o mesmo nas duas situações simuladas, e ele está situado a 1m da fonte como foi discutido na seção 3.2.

3.4.2 Características dos espectros de entrada

Os espectros de energia da radiação beta da fonte de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ do leitor de TL/OSL Risø, podem ser vistos na Figura 13, onde no eixo x temos a energia em keV, e no eixo y o produto do volume V por Φ_E (a fluência diferencial em energia). Esses espectros foram obtidos com a sub-rotina PENELOPE /PENNUC, que permite a simulação da cascata de decaimento completo de um radionuclídeo, incluindo raios-x e elétrons Auger produzidos após o decaimento atômico. Os

arquivos do radionuclídeo (Sr90.nuc por exemplo) podem ser obtidos no site do Laboratoire National Henri Becquerel. (GARCÍA-TORAÑO, PEYRES e SALVAT, 2019).

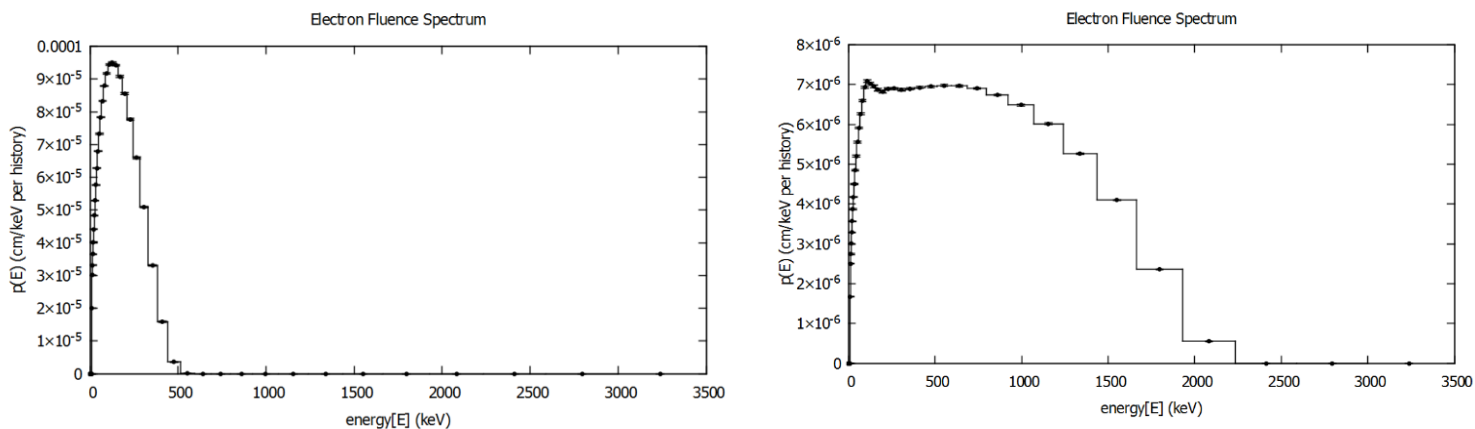


Figura 13: Espectros defluência de energia de elétrons emitidos por ⁹⁰Sr e ⁹⁰Y respectivamente, gerados com o PenNuc.

Os espectros de raios X com as qualidades mostradas na tabela 1, foram simulados usando o modelo TBC (Tucker-Barnes-Chakraborty) modificado (COSTA, NERISSIAN, *et al.*, 2007), um exemplo da qualidade 7 encontra-se na Figura 14. O espectro criado com o software TBC é dado como uma distribuição de probabilidade contínua. No entanto, no PENELOPE/penEasy, a distribuição da energia da fonte deve ser na forma de um histograma. Assim, o espectro de TBC foi transformado em um conjunto de probabilidades não normalizadas de intervalo seguindo o Apêndice B do Manual do Usuário PENELOPE/penEasy.

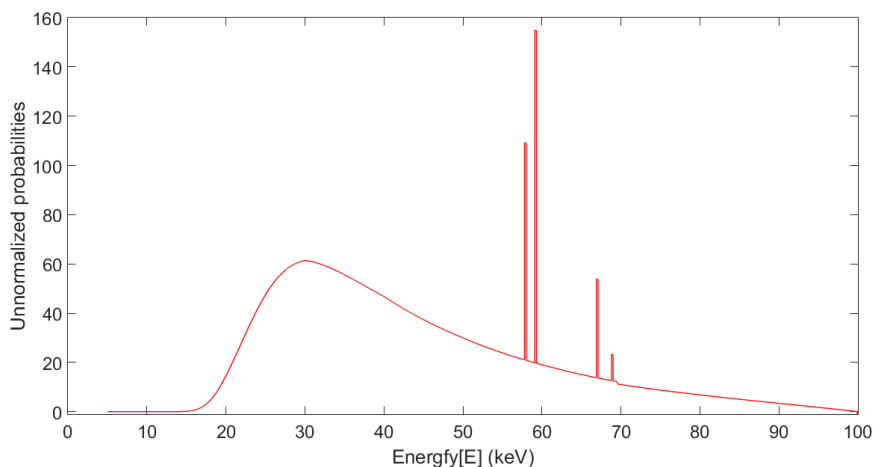


Figura 14: Espectro de raio X, simulado com o modelo TBC modificado.

3.4.3 A energia de absorção dos fótons e dos elétrons

A energia de absorção dos fótons na simulação tanto para a deposição de energia com irradiações no leitor de TL/OSL Risø, quanto para o experimento com raios X, foi de 10 keV, para reduzir o tempo de simulação de fótons abaixo dessa energia, uma vez que esses fótons têm probabilidade muito baixa de depositar energia no dosímetro.

Quanto aos elétrons, embora o tempo de simulação seja consideravelmente maior do que o tempo usado para simular fótons, uma vez que os elétrons depositam energia principalmente por colisões, a energia de absorção escolhida também foi de 10 keV. O tempo de simulação ganho com os fótons foi investido em simular mais tempo os elétrons interagindo no material, principalmente por causa da fonte de ^{90}Sr / ^{90}Y do leitor de TL/OSL Risø. Dessa forma, simulamos mais tempo os elétrons interagindo na amostra do que os fótons, que podem depositar sua energia “longe” do material de interesse para a simulação. Essas energias foram usadas para todos os materiais.

3.4.4 Limitações na simulação e número de histórias simuladas

O número de histórias foi escolhido de modo que a incerteza na energia depositada no detector fosse menor que 5%. Foi escolhido essa grandeza, por ser o objeto de maior interesse na simulação.

Toda simulação possui limitações. Neste trabalho a fluorita foi simulada usando a sub-rotina MATERIAL do PENELOPE (que cria um arquivo com tabelas de seções choque para um determinado material) que usa o ESTAR (BERGER, COURSEY, *et al.*, 2005) como banco de dados. Portanto, a fluorita simulada não possui os componentes da cola usada na mistura, e nem outras impurezas que amostras naturais eventualmente possam vir a ter (como uma certa quantidade de quartzo como identificado na Figura 10).

Além do detector, alguns componentes da fonte não foram simulados, como por exemplo no leitor de TL/OSL Risø a fonte é colocada em uma roda giratória de aço inoxidável. Esses componentes não foram simulados, pois o objetivo da simulação é obter qualitativamente a energia depositada na amostra, e a radiação que seria espalhada por esses componentes contribui pouco para o total de energia depositada unicamente pela fonte.

4. RESULTADOS EXPERIMENTAIS E ANÁLISE

4.1 A curva de decaimento OSL

Já é conhecida a relação entre os sinais TL e OSL da fluorita natural usada pelo nosso grupo onde o NaCl é usado como aglutinante na fabricação dos dosímetros. No trabalho de (FERREIRA *et al.*, 2014), é mostrado que o aglutinante não tem participação na parte estável do sinal OSL, e ainda mostrou que o sinal OSL é extinto se a amostra for aquecida a 350 °C.

Na Figura 15 (a) está a resposta TL para doses que variam de 10 mGy até 100 mGy de radiação beta, para a fluorita misturada com o novo aglutinante resistente a altas temperaturas, onde notamos que o sinal TL aumenta com a dose, em especial a área do terceiro pico (“pico dosimétrico”) está diretamente relacionada com a dose, como mostra a Figura 15 (b). Essa dependência que já é conhecida para a fluorita natural, e o novo aglutinante não alterou essa característica (UMISEDO *et al.*, 2020).

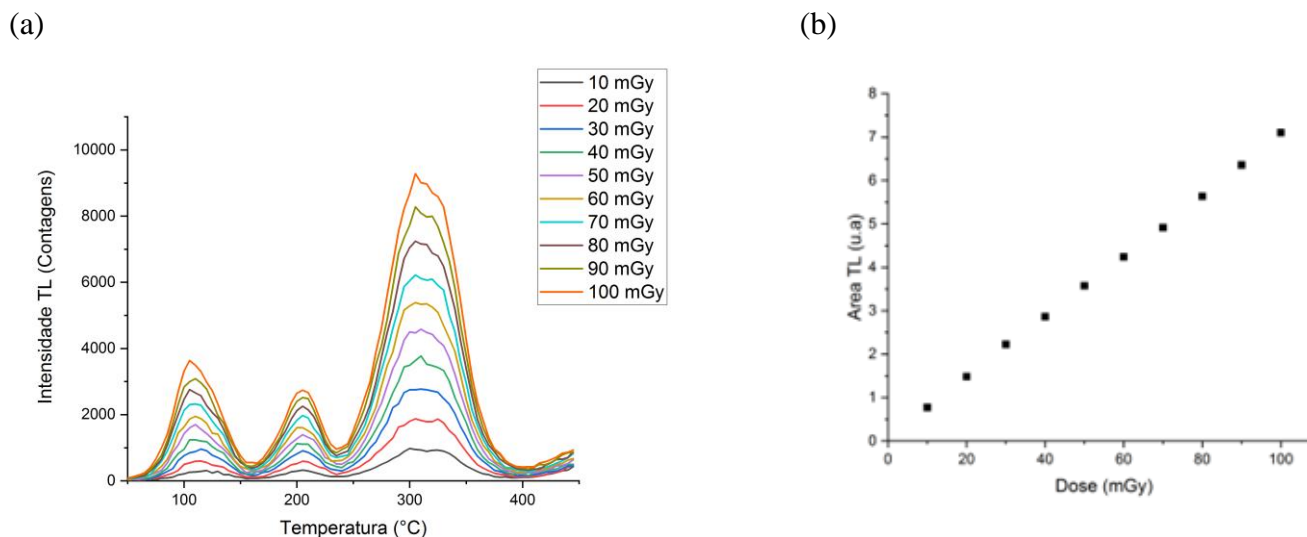


Figura 15: Sinal TL para diversas doses na figura (a) e a área do terceiro pico em função da dose na figura (b).

Essa mesma característica é observada nas medidas OSL realizadas a temperatura ambiente, como mostra a figura 16 (a), onde vemos sinal inicial alto e depois um decaimento mais “lento”, que vai depender do tempo de iluminação. A área sob essa curva depende da dose como mostra a figura 16 (b) que já era um resultado esperado para as amostras de fluorita.

Esse tipo de decaimento da luz emitida sob estímulo luminoso de uma amostra real, não pode ser descrito em todos os detalhes pela equação 9, usada quando discutimos um modelo teórico que pode descrever um decaimento OSL. Na verdade, em muitos materiais dosimétricos, verifica-se que o sinal OSL contém várias componentes exponenciais. Por exemplo, está bem estabelecido que no quartzo existem três componentes exponenciais denominadas de acordo com a magnitude da seção de choque da estimulação óptica σ , como componente "lenta", "média" e "rápida" (WINTLE, 2006).

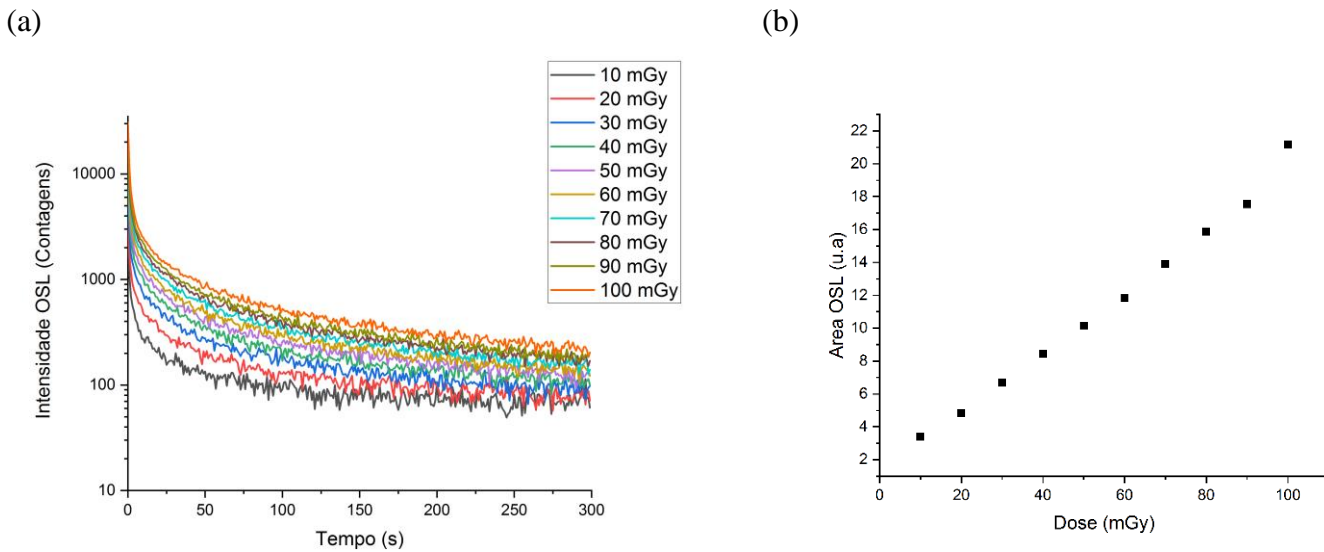


Figura 16: Sinal OSL para diversas doses na figura (a) e a área sob a curva em função da dose na figura (b).

No caso da fluorita, entretanto essa soma de componentes exponenciais simples não descreve bem o decaimento OSL. Um exemplo de ajuste para uma dose de 10mGy, usando a soma de duas exponenciais simples como mostra a equação 13 onde, I_1 e I_2 são as intensidades para $t = 0$ e τ_1, τ_2 são os tempos necessários para decair para e^{-1} da intensidade inicial de cada componente.

$$I_{OSL} = I_1 e^{\frac{-t}{\tau_1}} + I_2 e^{\frac{-t}{\tau_2}} + C \quad (13)$$

O ajuste dessa equação a um conjunto de dados experimentais pode ser visto na figura 17 (a) e foi feito em um script de MATLAB (apêndice A), usando o método dos mínimos quadrados.

Essencialmente foi usado a função *fminsearch* para minimizar o $\chi^2 = \sum_i^N \left(\frac{y_i^{exp} - y_i^{fit}}{\sigma_i} \right)^2$, em que σ_i é a incerteza na intensidade OSL (SOARES, 2018), e a incerteza dos parâmetros ajustados foi gerada por MC.

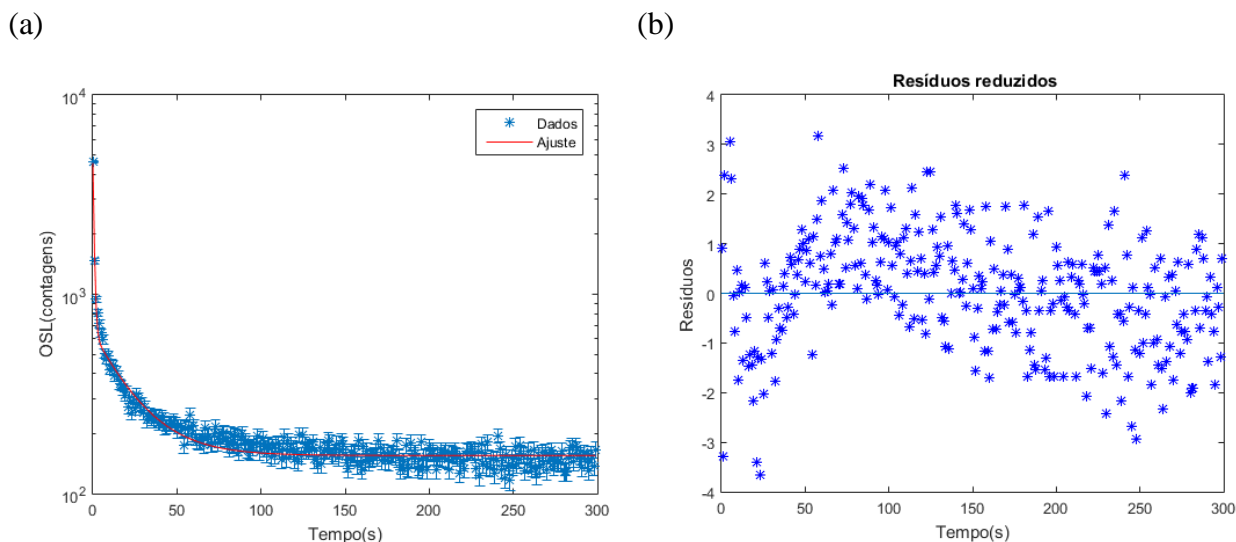


Figura 17: Ajuste da equação 13 para a fluorita irradiada com 100 mGy de radiação beta na figura (a) e os resíduos reduzidos do ajuste na figura (b).

Em uma análise qualitativa do ajuste da Figura 17, vemos que o gráfico dos resíduos reduzidos não se distribui uniformemente em torno de 0, principalmente nos primeiros 100 pontos no início do decaimento OSL, que já é um indício de que o modelo usado no ajuste pode não ser o mais adequado para descrever o conjunto de dados experimentais. Na tabela 2 encontram-se os valores dos parâmetros ajustados, onde notamos que o valor do χ^2 encontrado é de 445 que é bem distante do valor esperado para o $\chi^2_{esp} = 295 \pm 24$, indicando novamente que o modelo utilizado no ajuste não é adequado para o conjunto de dados experimentais.

Tabela 2: Valores dos parâmetros ajustados pela equação 13

I_1	$\tau_1(s)$	I_2	$\tau_2(s)$	C	χ^2	χ^2_{res}
39139±82	1,36±0,04	489±14	0,040±0,001	155±2	445	1,51

Foi observado ainda que esse caso se repete se tentarmos somar mais uma exponencial e usar um modelo parecido com o caso do quartzo. Indicando que para o caso da fluorita usada nesse trabalho, a soma de componentes exponenciais simples não descreve bem o decaimento OSL.

O modelo para o decaimento OSL da fluorita sugerido neste trabalho, é a combinação de um decaimento na forma de uma exponencial estendida com uma exponencial simples, como mostra a equação 14.

$$I_{\text{OSL}} = I_1 e^{\left(\frac{-t}{\tau_1}\right)^\beta} + I_2 e^{\frac{-t}{\tau_2}} + C \quad (14)$$

Em (BERBERAN-SANTOS et al, 2005), esse tipo de decaimento é explorado de modo mais amplo, onde são comentados os diversos tipos de fenômenos físicos que podem ser modelados por essas exponenciais, como a descarga de capacitores, ou ainda em estudos de relaxamento de sistemas complexos, no campo da luminescência molecular etc.

Em (CHEN, 2003), é discutido o papel desse novo parâmetro β , sendo sugerido (PAVESI, 1993) que este parâmetro, estaria relacionado com a desordem na rede e, portanto, atuaria como um fator de dispersão. É mostrado em (CHEN, 2003), através de simulações numéricas que, para obter um decaimento do tipo da equação 14 é necessário que o coeficiente de re-armadilhamento seja alto (o termo A_n presente na equação 10). E, portanto, a dispersão seria causada por múltiplos armadilhamentos e re-armadilhamentos

O ajuste da equação 14 ao conjunto de dados experimentais pode ser visto na figura 18(a), onde podemos ver que a curva em vermelho nos primeiros 50s está mais “suavizada” em comparação com a figura 17(a), e não está tão inclinada nos segundos finais. Com os resíduos reduzidos na figura 18 (b), podemos observar melhor o que foi dito anteriormente, e notar que os pontos se distribuem uniformemente em torno de zero em todo o intervalo de tempo.

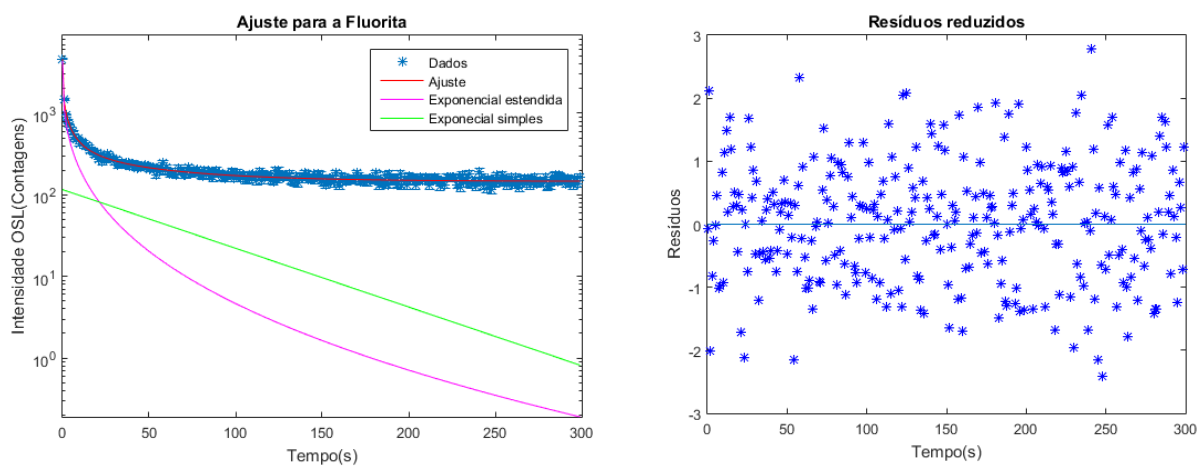


Figura 18: Ajuste da equação 14 na figura (a) e os resíduos reduzidos do ajuste na figura (b).

Na tabela 3 encontram-se os valores dos parâmetros ajustados, onde notamos que o valor do χ^2 encontrado é de 271 que diferentemente do ajuste anterior já não é distante do valor esperado para o $\chi^2_{\text{esp}} = 295 \pm 24$, o que indica que o modelo se adequa bem ao conjunto de dados experimentais.

Tabela 3: Valores dos parâmetros ajustados pela equação 14

I_1	$\tau_1(\text{s})$	β	I_2	$\tau_2(\text{s})$	C	χ^2	χ^2_{res}
4374±95	0,41±0,03	0,35 ±0,02	116±47	0,016±0,006	146±3	271	0,92

Nas tabelas 4 e 5 do apêndice A, encontram-se as tabelas de correlações para os parâmetros ajustados. Dessas tabelas vemos uma correlação positiva forte entre o valor de β e o valor de I_2 e uma correlação negativa moderada com o valor de I_1 .

Ainda não há argumento teórico que justifique o parâmetro β na equação 14, mas diversos trabalhos na literatura (CHEN, 2003), (BERBERAN-SANTOS et al, 2008), (BERBERAN-SANTOS et al, 2008) mostram que, no campo de luminescência da matéria condensada, esse valor está no intervalo $0 < \beta < 1$. Da interpretação física desse parâmetro feita até o momento é esperado não haver uma dependência da potência do LED, usado no estímulo para as leituras OSL/TA-OSL.

Foram feitas várias medidas para a mesma pastilha e mesma dose variando somente a potência do LED, obtendo o parâmetro β em cada ajuste e como mostram os pontos em preto na figura 19 não há nenhuma correlação entre os dois parâmetros nessa figura: os pontos estão distribuídos em torno da média, mas não há indicação de tendência aparente, indicando, que provavelmente β não está relacionado ao fluxo de fótons de estímulo (Φ na equação 10) incidente na amostra. Ainda na figura 19, estão os resultados de diversas medidas na mesma amostra a uma potência constante e variando somente a dose, para obter a relação entre o parâmetro β e a dose na amostra. Em uma análise qualitativa da figura é difícil ver alguma relação entre as duas grandezas, mas é possível notar que o valor de β aumentou em média em comparação aos valores obtidos variando a potência, que foi obtida para uma dose de 10 mGy, embora seja um aumento discreto

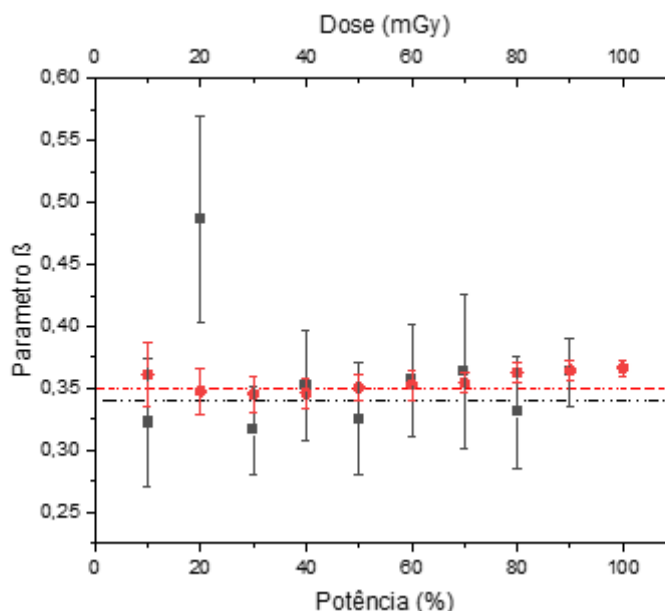


Figura 19: Gráfico da variação de β com a potência do LED (eixo-x inferior) representado pelos pontos em preto, e da variação de β com a dose (eixo-x superior) na amostra representado pelos pontos em vermelho. As linhas horizontais em preto e vermelho são as médias dos valores de β 0,34 e 0,35 respectivamente.

Na figura 20 (a), está o mesmo conjunto de dados da Figura 19, para a variação com a dose. Com o auxílio de uma linha de tendência podemos ver uma relação, mostrando que β pode variar com a dose. Com o uso do coeficiente de Pearson para medir uma possível correlação entre as grandezas, temos um valor de 0,81, indicando haver uma possível correlação moderada entre a dose e o valor de β encontrado. Ou seja, β pode estar relacionado de forma crescente com a energia depositada na amostra.

Essa energia depositada na amostra é usada em ionização e excitação das moléculas da rede cristalina que fazem com que os portadores de carga se espalhem pela sua estrutura cristalina da amostra, portanto, β poderia significar ou estar relacionado a um fator de dispersão. Uma outra contribuição para esse argumento está na figura 20 (b), onde é mostrado como o parâmetro β varia com a temperatura em que a leitura OSL é feita, variando da temperatura ambiente até 200°C. Nessa figura, a linha de tendência ajuda a visualizar melhor uma relação mais forte do que a vista na Figura 20 (a). De fato, o coeficiente de Pearson para a correlação entre a temperatura e o parâmetro β é de 0,96, indicando uma correlação forte entre os dois parâmetros, e o crescimento de β com a temperatura de leitura, conseqüentemente com a desordem da rede.

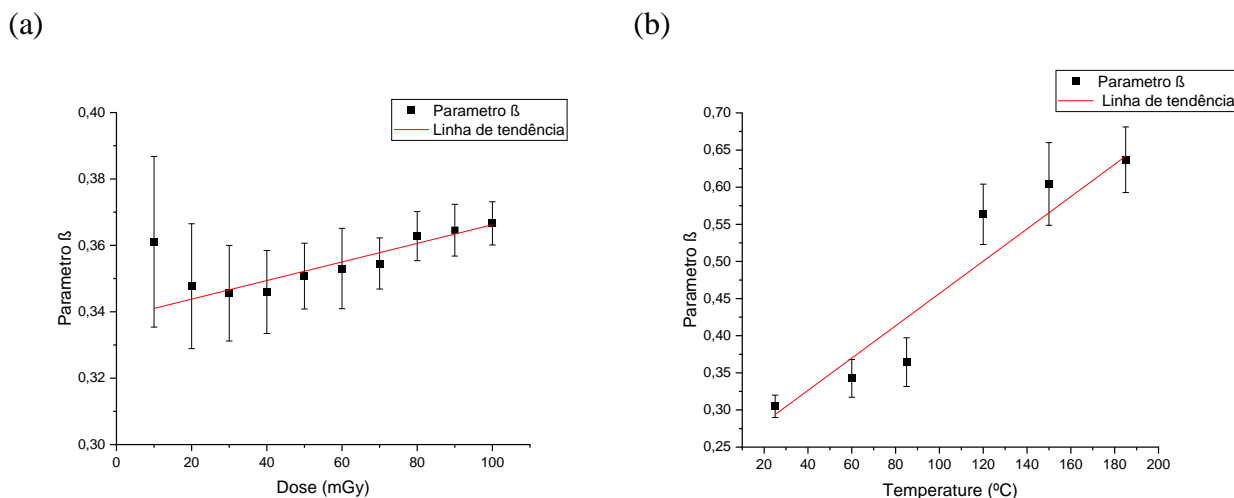


Figura 20: Relação entre β e a dose na amostra na figura (a) e relação entre β e a temperatura de leitura OSL na figura (b).

Portanto, no caso da fluorita natural estudada nesse trabalho, é provável que o parâmetro β seja um fator de dispersão. Embora a simulação numérica feita por Chen e Leung em (CHEN, 2003), mostre que é necessário que o coeficiente de re-armadilhamento seja alto para um decaimento do tipo da equação 14 ocorrer, esse coeficiente não foi avaliado nesse trabalho.

4.2 OSL termicamente assistida (TA-OSL)

Como mostrado na sessão anterior o parâmetro β na equação 14, depende da temperatura. Sabe-se também que a temperatura influencia a forma do decaimento OSL, como mostrado para o quartzo e alguns outros materiais (MCKEEVER *et al.*, 1997). Mas essa influência da temperatura pode-se dar de algumas formas diferentes, e uma descrição teórica dessa influência pode ser bastante complicada devido ao grande número de parâmetros envolvidos.

Uma das formas que a temperatura pode afetar a luminescência do material é através de um fenômeno conhecido como *Thermal quenching*, onde há uma perda de eficiência de luminescência com o aumento da temperatura, pois a desexcitação pode ocorrer por outras vias não radiativas, à medida que o material é aquecido, o que é uma desvantagem para a TL comparada a OSL, uma vez que a sua eficiência pode variar a medida que o material é aquecido. No trabalho de (KAFADAR, 2011) é possível observar o *Thermal quenching* para a TL da fluorita artificial (TLD-200 e TLD-300), onde a taxa de aquecimento varia de $10\text{ }^{\circ}\text{C/s}$ a $30\text{ }^{\circ}\text{C/s}$, e é possível observar como a área sob a curva TL diminui conforme a taxa de aquecimento aumenta. Um outro fenômeno

observado é que a temperatura dos picos TL é deslocada conforme a taxa de aquecimento aumenta, provavelmente por causa do contato térmico do sistema, causando um pequeno atraso entre a temperatura da amostra e a temperatura medida.

A OSL termicamente assistida (TA-OSL) é uma outra forma que podemos observar a influência da temperatura no sinal luminescente, em especial OSL. Nessa técnica, o estímulo óptico é combinado ao estímulo térmico, e dessa combinação é possível acessar armadilhas mais profundas (as quais, em geral, precisam de mais energia para serem acessadas) do material analisado.

Um exemplo da TA-OSL, para a fluorita usada nesse trabalho, para uma dose de 10 mGy de radiação beta, para temperaturas variando da temperatura ambiente até 400°C, pode ser vista na figura 21 (a). O procedimento é detalhado a seguir:

1. Expor a amostra a uma dose teste. (Em geral 10mGy).
2. Medir a TL, para avaliar o formato da curva, e em seguida expor novamente a amostra a dose teste.
3. Elevar e manter a temperatura em T_i (°C); e realizar a CW-OSL nesta temperatura para obter o sinal TA-OSL.
4. Realizar uma leitura de TL residual (RTL), a fim de registrar mudanças na curva de emissão TL após a TA-OSL, incluindo qualquer sinal possivelmente induzido por fototransferência após a leitura de TA-OSL na etapa 3.
5. Expor novamente a amostra a radiação com a mesma dose de teste da etapa 1.
6. Medir a TL para verificar as mudanças de sensibilidade e/ou variações da estrutura da curva em comparação com a TL obtido na etapa 2.

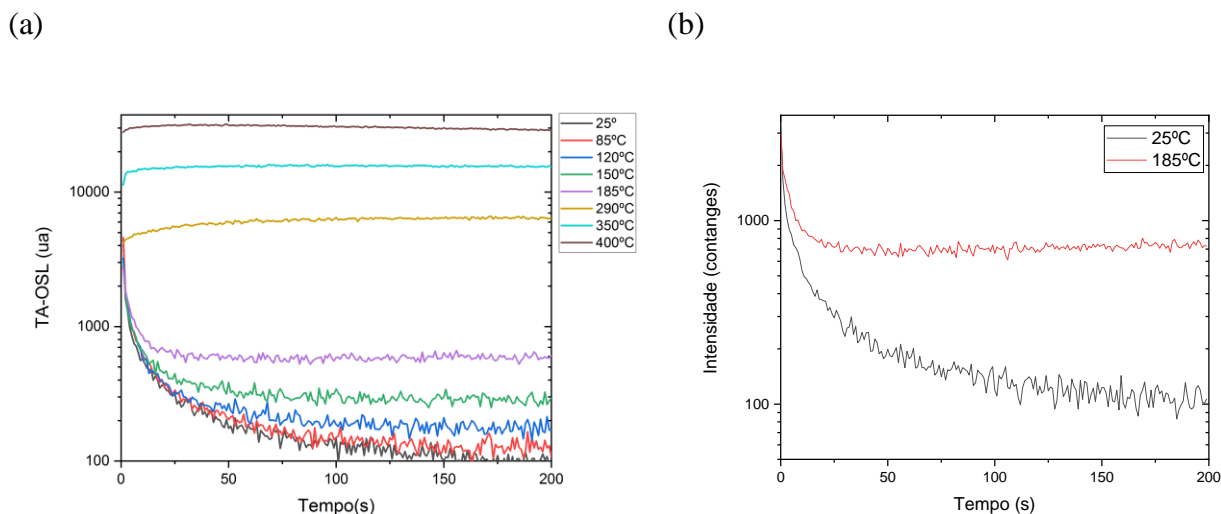


Figura 21: Na figura (a) OSL termicamente assistida para a fluorita para várias temperaturas, na figura (b) a TA-OSL somente para duas temperaturas.

O objetivo dessa medida para várias temperaturas, é encontrar uma temperatura ideal para analisar a TA-OSL da amostra, e verificar se o modelo da equação 14 é válido para sinais OSL obtidos nessas temperaturas. Chama atenção na figura 21 (a) como a forma da curva varia conforme a temperatura aumenta, o modelo da equação 14 pode ser usado apenas até a temperatura de 185°C, pois a partir dessa temperatura, a emissão de luz, perde a característica de decair com o tempo de iluminação. Para a temperatura de 290°C vista na figura 21(a), a leitura CW OSL foi continuada por 600s sem haver queda aparente do sinal. Vale comentar ainda que em princípio o sinal OSL da fluorita usada não apresenta *thermal quenching*, porque o sinal até cresce com o aumento de temperatura.

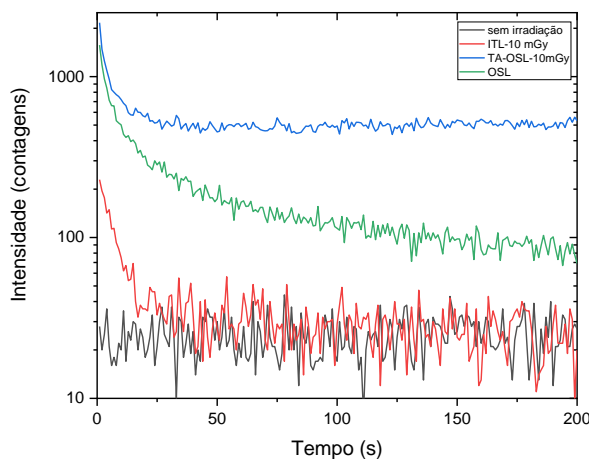
Como a TA-OSL é uma combinação do estímulo térmico e óptico, no sinal visto nas figuras 21(a) e (b) vale a pena observar que há a emissão de um sinal de TL isotérmica (ITL - uma medida TL a uma temperatura fixa, no caso desse trabalho 185°C) junto a uma emissão OSL. Na figura 22 (a) temos os sinais dos três fenômenos para a mesma dose de 10 mGy de radiação beta, onde a linha em preto é um estímulo de ITL sem dose irradiação. Embora exista emissão ITL a 185°C, seu decaimento é rápido e a intensidade pequena comparada à diferença de intensidades OSL nessa temperatura e à temperatura ambiente.

Um resultado interessante da análise das curvas de TL residual na figura 22 (b), é que ao medir a TL logo a após a OSL à temperatura ambiente (obter a TL residual da OSL), vemos que parte do

o sinal do pico 3 é "apagado", como é observado na linha verde, que mostra um pico mais estreito que o da linha vermelha (TL após a ITL). Todavia a realização da TA-OSL não altera o formato do pico 3 diminuindo somente sua intensidade, além disso temos mais um pico que não aparecia somente com um dos estímulos, térmico ou óptico.

Uma possível explicação para o sinal de TA-OSL nas temperaturas mais elevadas ficar praticamente uma constante (ou levar muito mais tempo para decair), pode ser ilustrado pelo diagrama na figura 23. Como a fluorita usada nesse trabalho é uma amostra natural e vem acumulando, pela irradiação natural, portadores de cargas armadilhadas há muitos anos, mesmo após os tratamentos térmicos descritos na seção 3.2, é possível que haja portadores de cargas aprisionados, em armadilhas muito profundas (AP na figura 23), cujo acesso não seria possível somente com os estímulos térmicos ou ópticos isoladamente.

(a)



(b)

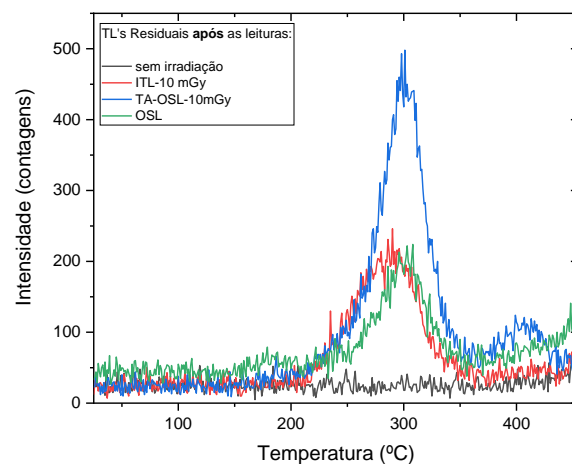


Figura 22: Na figura (a) temos a comparação dos três estímulos para a mesma dose de 10 mGy de radiação beta onde a ITL em vermelho e a TA-OSL em azul são medidas em 185°C e a OSL em verde a temperatura ambiente, e na figura (b) a TL residual feita imediatamente depois das leituras mostradas em (a).

Na figura 24 (a), vemos um gráfico das curvas TL residuais (o sinal de TL que “sobrou”, após a medida de TA-OSL), realizadas imediatamente após as medidas de TA-OSL para cada uma das temperaturas da figura 21 (a). Na linha em preto está a TL residual para a medida OSL realizada a temperatura ambiente, e notamos que, nesse caso, há emissão somente no terceiro pico de TL. Entretanto, conforme a temperatura de realização da medida de TA-OSL vai aumentando até

290°C, o pico 3 da fluorita tem sua intensidade aumentada, e há também o surgimento de um pico TL adicional (que chamamos pico 4, com $T \sim 410^\circ\text{C}$), corroborando com a hipótese de que, com a combinação dos estímulos térmicos e ópticos simultâneos, os elétrons de armadilhas profundas são estimulados para as armadilhas mais superficiais (III e IV no diagrama da figura 23). Nas medidas de TL realizadas na fluorita registramos 3 picos bem definidos, como mostra a figura 15, porém, após um procedimento TA-OSL na figura 24 (a) podemos ver um quarto pico na temperatura de 410 °C aparecendo cada vez mais definido e intenso conforme a temperatura da TA-OSL aumenta, uma vez que mais portadores de carga vão ficando disponíveis para essa armadilha que até então não contribuía para a TL. Como dito na sessão 3.3.1 o filtro de luz empregado em todas as leituras de luminescência tem uma janela bem estreita, então, fazer a hipótese de que a luz observada provém do mesmo centro de recombinação parece razoável. Se houver outras contribuições em outros comprimentos de onda, não são observadas. É importante notar que para o estímulo luminoso acima de 350°C, não há mais o terceiro pico TL na TL residual, pois os portadores de carga não conseguem ficar presos nessa armadilha - é uma temperatura de estímulo suficiente para liberá-los dessa armadilha.

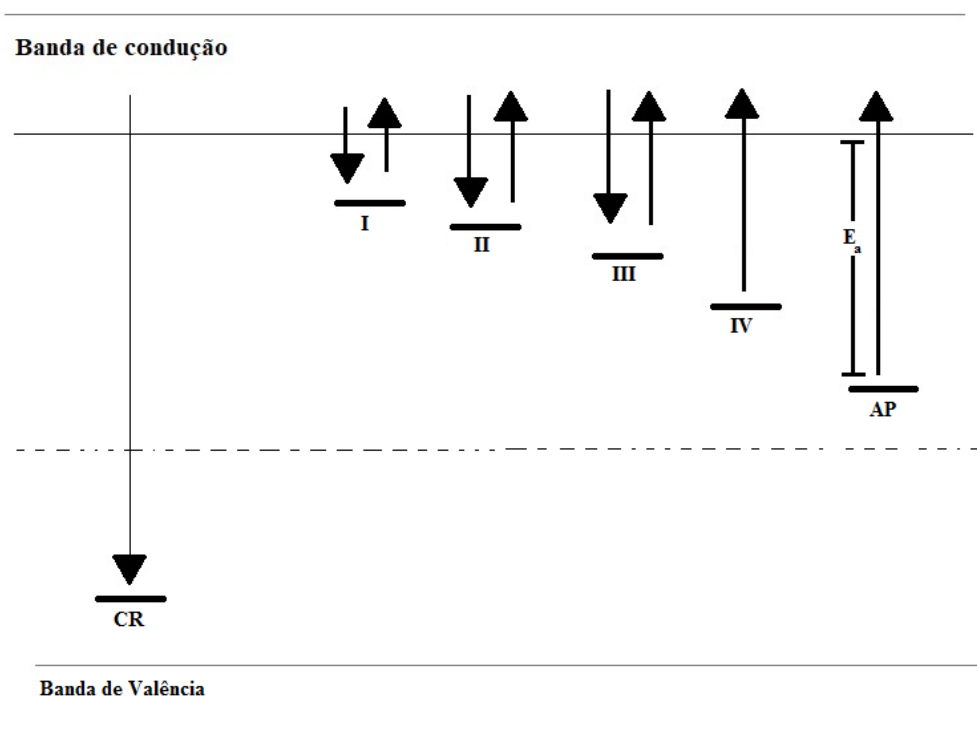
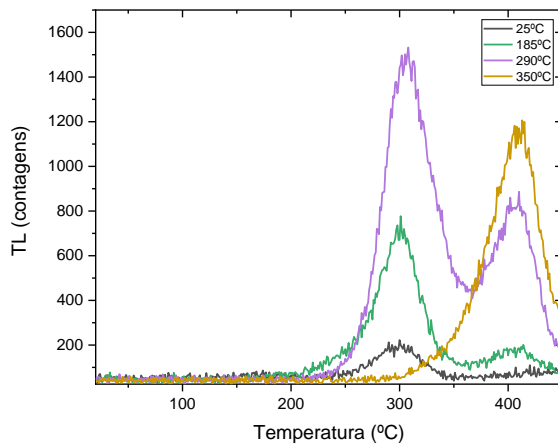


Figura 23: Diagrama para exemplificar a TA-OSL, CR é o centro de recombinação, as armadilhas de I-IV ilustras as armadilhas da fluorita usada no trabalho e AP é um exemplo de armadilha profunda.

Na figura 24 (b), estão as medidas de TL da etapa 6 do procedimento cujo objetivo é avaliar se o procedimento experimental para obter o sinal de TA-OSL não alterou o formato das curvas TL. Como mostra a figura 24(b) para todas as amostras em que a TA-OSL foi realizada o sinal de TL está como esperado. A exceção é para a curva onde a TA-OSL foi realizada em uma temperatura de 350 °C (curva amarela), apesar de não haver alteração na posição ou formas dos picos 1 a 3 esperados para essa amostra, ainda há sinal remanescente de um pico de temperatura ainda mais elevada. Em novas leituras TL esse sinal não é mais detectado.

(a)



(b)

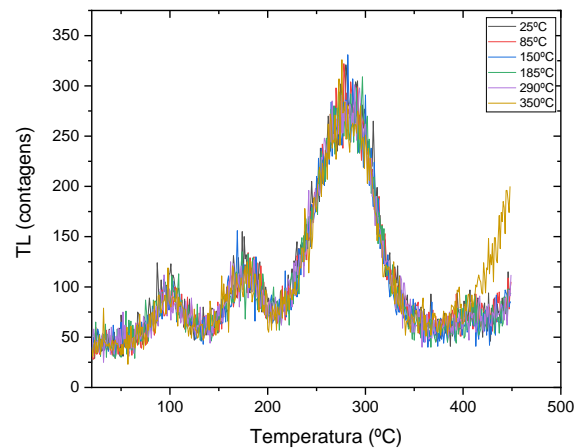


Figura 24: Na figura (a) vemos algumas das leituras das TL residuais após as medidas TA-OSL, na figura (b) TL das amostras após todos o procedimento de leituras TA-OSL e nova irradiação (passo 5 do procedimento para TA-OSL).

Foi sugerido por alguns autores (SPOONER, 1994) (MISHRA *et al.*, 2011), que a seção de choque óptica σ , que aparece na equação 10, pode ser escrita como o produto de dois termos, um sendo independente da temperatura e a outra é um termo exponencial dependente da temperatura, descrito pela equação 15.

$$\sigma(T, \lambda) = \sigma_0(\lambda) e^{\frac{-E_A}{kT}} \quad (15)$$

onde $\sigma(T, \lambda)$ é a seção de choque de fotoionização à temperatura T (K) para o comprimento de onda de estímulo λ , k é a constante de Boltzmann e $\sigma_0(\lambda)$ é o fator pré-exponencial da seção de choque de ionização que não é influenciado por perturbações térmicas e corresponde à seção de

choque para $E_A \ll kT$. A seção de choque de fotoionização está relacionada à probabilidade de escape de elétrons durante a aplicação do estímulo óptico.

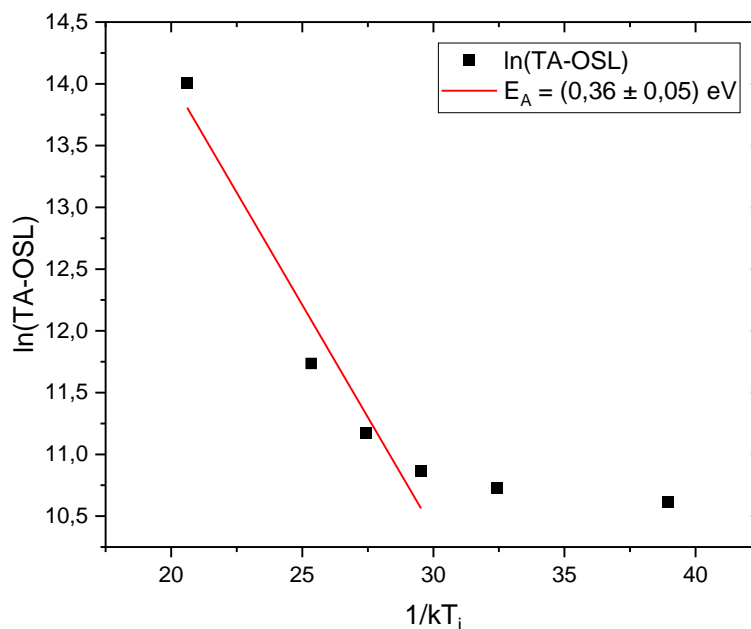


Figura 25: Gráfico de $\ln(TA - OSL)$ por $1/kT_i$ para o cálculo da energia de ativação para a amostra de fluorita.

Em processos assistidos termicamente, o gráfico de $\ln(TA-OSL)$ por $1/kT_i$ (onde T_i representa a temperatura de medição), de acordo com o modelo da Equação 15, produz uma relação linear com uma declividade correspondente à energia de ativação térmica E_A , que indica a quantidade de energia fornecida na forma de energia térmica para que as cargas aprisionadas possam ser liberadas de uma armadilha muito profunda para uma armadilha mais rasa e, neste caso, opticamente ativa. Para o caso da fluorita usada nesse trabalho, como mostra a figura 25, a energia de ativação térmica, é $E_A = (0,36 \pm 0,05)$ eV. Esse valor, está de acordo com o valor já reportado para a fluorita natural de origem grega (POLYMERIS *et al.*, 2006).

A variação dos sinais de TA-OSL realizada a temperatura de 185°C e de TL residual com dose, podem ser vistas nas figuras 26(a) e 26(b) respectivamente. É possível notar na figura 26(a) que mesmo quando a amostra não é exposta a radiação há um sinal de fundo elevado, provavelmente

relacionado ao processo de fototransferência de cargas de armadilhas profundas e sua captura pelos centros que estão relacionados com os picos 3 e 4, pois como mostra a 26(b), mesmo quando a amostra não foi exposta a radiação, e é realizado uma leitura TL há sinais nos picos 3 e 4.

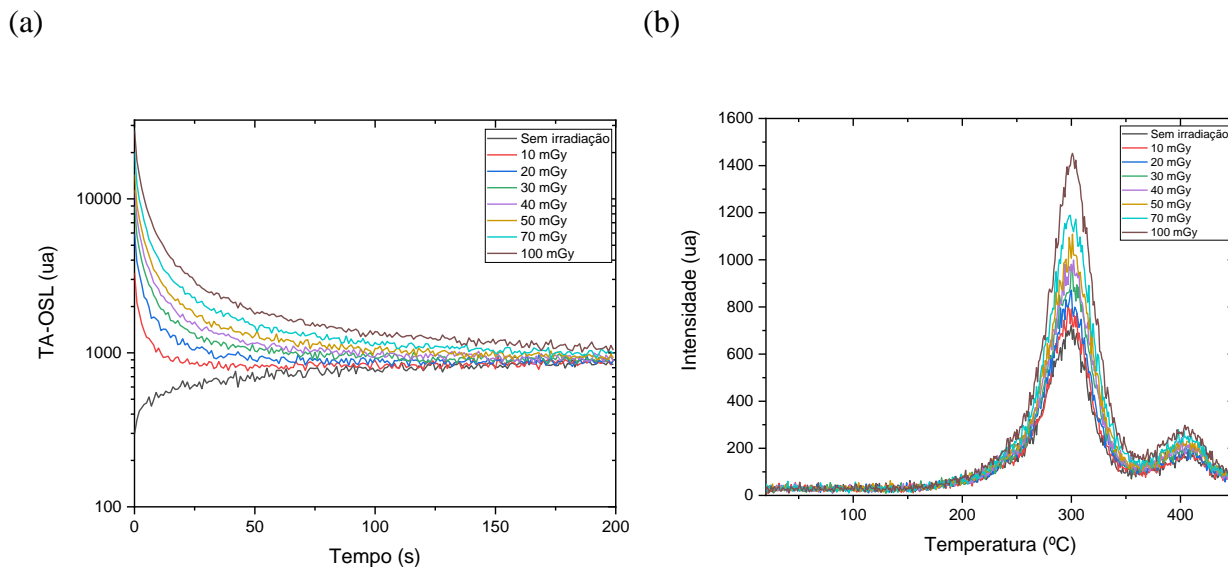
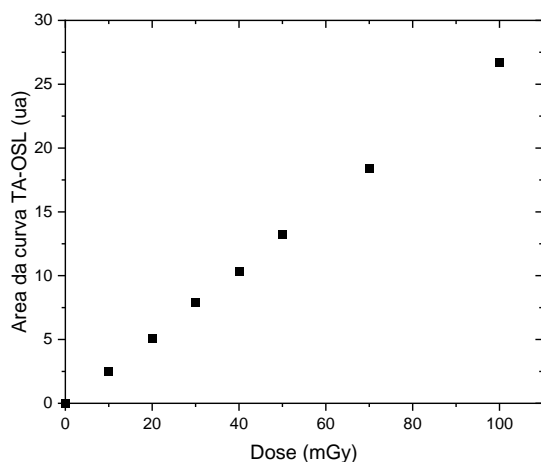


Figura 26: Variação das curvas de TA-OSL medidas em 185°C com a dose para a amostra de fluorita na figura (a), bem como o sinal de TL residual na figura (b).

Como mostram as figuras 27(a) e 27(b) ambos os sinais apresentam uma dependência linear com a dose nessa região até 100mGy de radiação beta. Sabe-se que as medidas de TA-OSL, possibilitam uma melhora na dose mínima detectada pelos materiais que apresentam o fenômeno (POLYMERIS, 2016), embora não seja possível com leitor Riso irradiar com doses menores que 10mGy, comparando os resultados vistos na figura 16 com a figura 27 temos um aumento na sensibilidade para a TA-OSL de aproximadamente 38% no sinal, mas ainda não conseguimos verificar diretamente essa propriedade para a fluorita usada nesse trabalho.

(a)



(b)

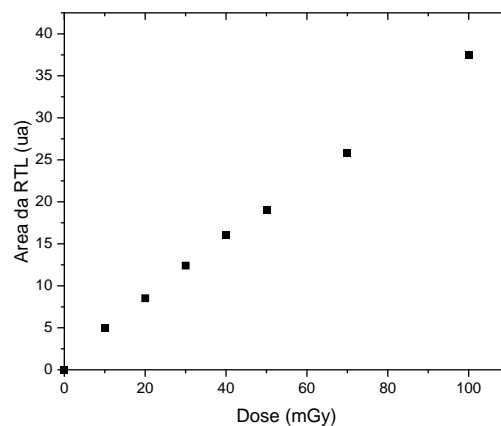


Figura 27: Área da curva de TA-OSL medidas em 185°C para a amostra de fluorita na figura (a) bem como o sinal de TL residual na figura (b).

4.3 O fading do sinal de TA-OSL

Foi investigado o *fading* (que é o desvanecimento do sinal devido a tempo de espera entre irradiação e leitura do sinal luminescente) da TA-OSL para a amostra de fluorita natural misturada com o aglutinante resistente a altas temperaturas usadas nesse trabalho, o resultado pode ser visto na figura 28, para diversos tempos de espera. Notamos que após uma semana há uma perda de 25% do sinal e não há uma grande perda de sinal se a leitura for realizada uma semana ou 7 meses depois como um fading de pouco mais que 7% entre essas medidas e um fading total de aproximadamente 30%. Esse é um resultado bastante interessante, pois para fluorita de mesma origem, porém com o NaCl como aglutinante tem como resultado um fading do sinal OSL rápido de 60% nas primeiras horas (YOSHIMURA, 2006). Mais tarde, foi visto que o NaCl usado como aglutinante contribuía majoritariamente para o fading visto nessas amostras (FERREIRA, *et al.*, 2014).

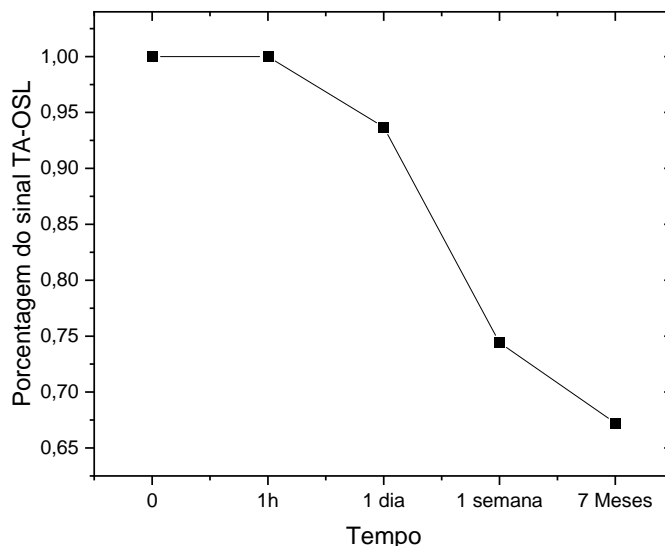


Figura 28: Fading para a amostra de fluorita, o sinal está normalizado e a linha preta é apenas um guia para os olhos.

Como mostrado em (YOSHIMURA, 2006), um aquecimento prévio da amostra em 150 °C resolve o problema do fading rápido do sinal OSL nas amostras de fluorita natural com NaCl como aglutinante. No caso da figura 28, a temperatura de leitura é 185°C, apesar dos fenômenos serem diferentes não há a contribuição dos centros de temperatura mais baixa nos resultados de fading observado aqui.

Foi ainda investigado o fading do pico 4 da TL, visto na figura 29, com o objetivo de entender o porquê normalmente esse pico não aparece nas medidas de TL para essa amostra. A hipótese seria que esse centro possuísse um fading anômalo, que é um fading significativamente mais rápido do que o garantido pelos parâmetros e características do pico TL em questão. Foi então avaliado a TL em uma série de tempos e o resultado foi comparado com o pico 3 (pontos em preto) e o resultado está na figura 29.

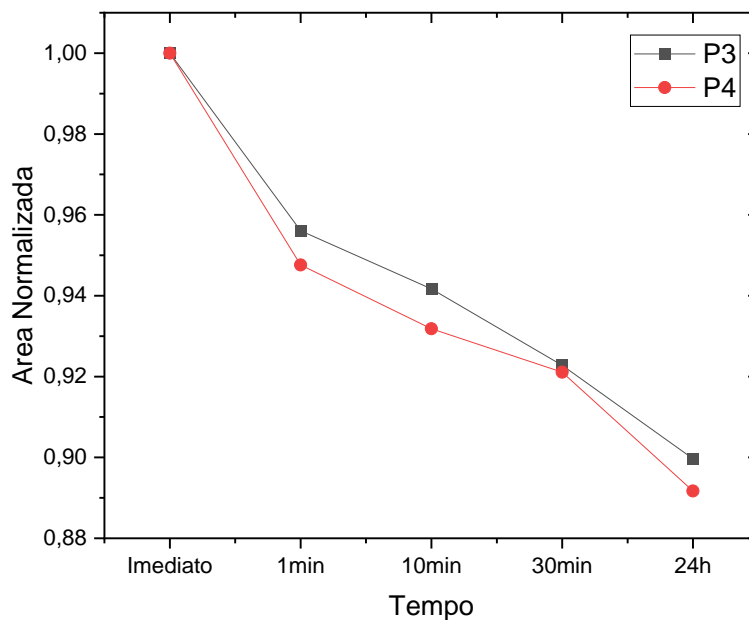


Figura 29: Fading do pico 3 representado pelos pontos pretos bem como o pico 4 como pontos vermelhos da TL residual das TA-OSL em 185°C para uma dose de 10 mGy.

Como mostra a figura 29 o pico 4 (pontos em vermelho) não possui um fading mais rápido que o esperado, pois ele perde sinal no mesmo “passo” que o pico 3 também perde, e em princípio o pico 3 da fluorita é o mais estável e usado para a dosimetria, descartando assim a hipótese de fading anômalo para o pico 4 ao menos nas primeiras 24h após a irradiação.

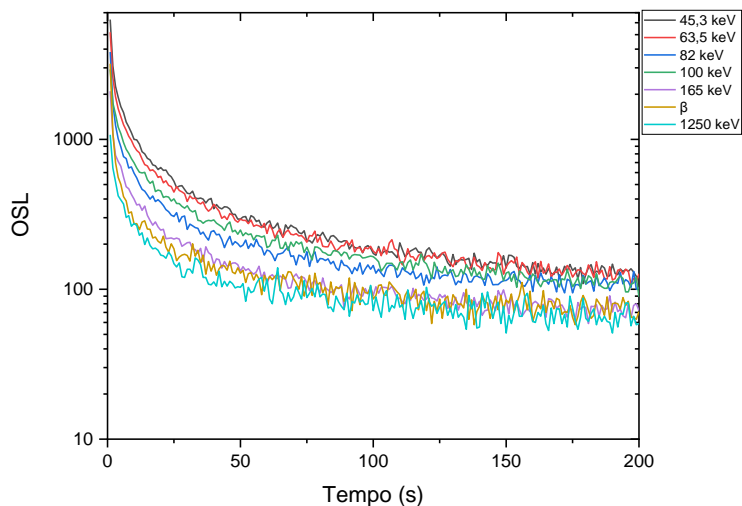
4.4 Dependência energética para a OSL e TA-OSL

Nessa seção serão discutidos os resultados para um parâmetro muito importante para a dosimetria das radiações que pode afetar o emprego do sinal luminescente da amostra em dosimetria (MALTHEZ, *et al*, 2014), que é a dependência energética. A tabela 1 (Seção 3.3.2) mostra as qualidades de radiação de referência usadas nesse trabalho para o espectro estreito fornecido pela norma ISO – 4037 de 2020 (ABNT, 2020), e a descrição da fonte de cobalto usada está na Seção 3.3.3.

A figura 30 (a) é um exemplo do sinal OSL para cada uma das energias usadas nesse trabalho bem como na figura 30(b) as respostas para a TA-OSL em 185°C, para uma mesma dose de 2 mGy. É possível notar uma diferença na intensidade do sinal, conforme a energia varia, tanto para o OSL

como para a TA-OSL, onde as curvas com energia mais baixa têm maior intensidade que as curvas com energia mais alta para a mesma dose absorvida, em um comportamento semelhante para os dois fenômenos.

(a)



(b)

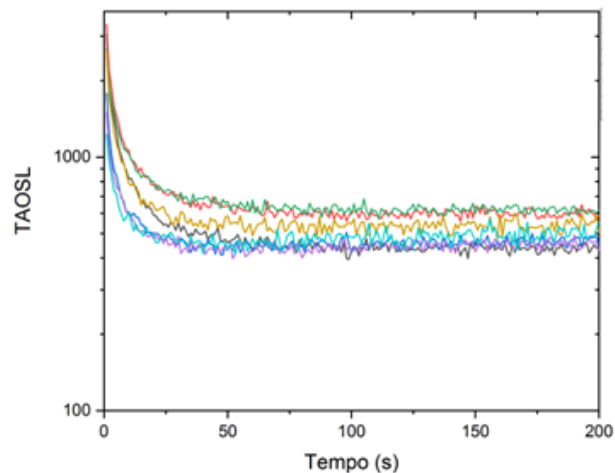


Figura 30: Sinal OSL para diversas energias para a amostra de fluorita na figura (a), bem como o sinal de TAOSL para as mesmas energias e mesma dose (2m Gy) na figura (b).

As curvas de dependência energética podem ser usadas para a caracterização dos dosímetros e para a determinação do equivalente de dose pessoal, em conjunto com outro fator de correção. Essas curvas são obtidas a partir da curva de dose resposta do dosímetro, como pode ser visto na figura 31, onde estão todas as curvas para cada uma das energias mencionadas anteriormente na tabela 1.

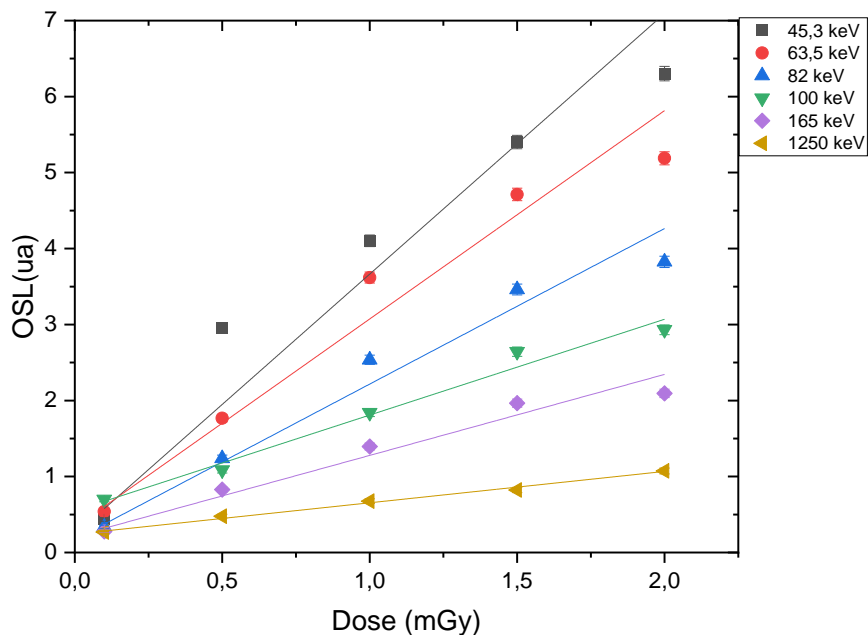


Figura 31: Curvas de dose resposta. Os pontos são os dados experimentais com as barras de incerteza e as retas o ajuste linear. Na legenda estão as energias efetivas dos feixes empregados na irradiação.

Com o coeficiente angular das curvas de dose-resposta em função da energia temos uma curva para a dependência energética dos dosímetros usados nesse trabalho como pode ser vista nas figuras 32(a) e 32(b), para OSL e TA-OSL respectivamente.

(a)

(b)

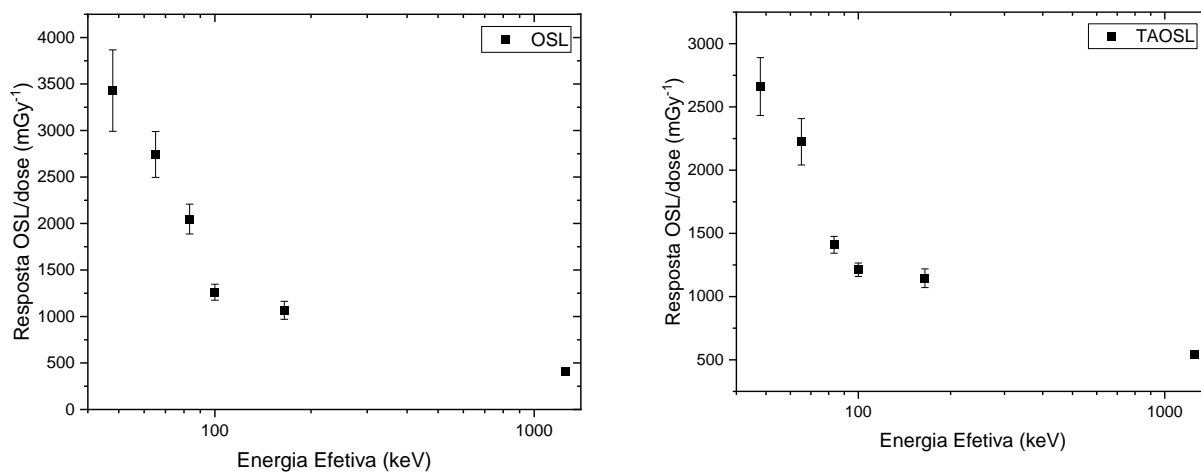


Figura 32: Resposta OSL para diversas energias para a amostra de fluorita na figura (a), bem como resposta TA-OSL para as mesmas energias na figura (b).

Podemos observar que embora sejam fenômenos ligeiramente diferentes, a dependência energética do sinal em função da energia é bastante semelhante tanto na ordem de grandeza dos valores bem como na distribuição dos pontos. Ao normalizar os valores da resposta OSL/dose para a energia do Co-60, podemos observar pela figura 33 que a dependência energética é 1,5 vezes maior na OSL em comparação a TA-OSL, de modo que a combinação dos estímulos aparentemente contribui para a redução na dependência energética da amostra.

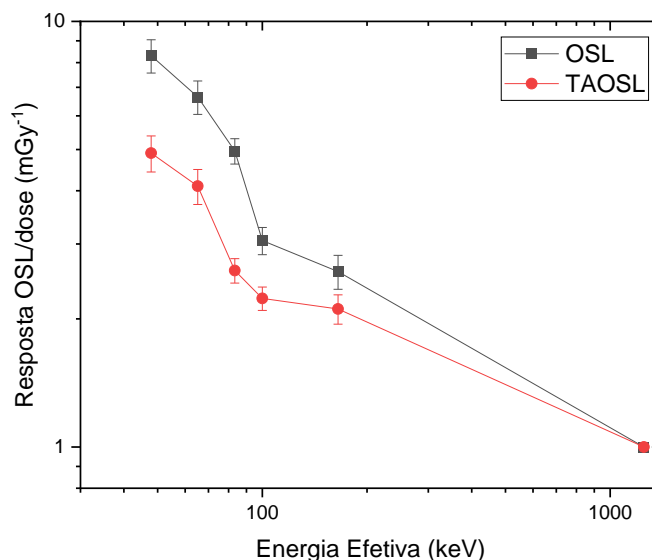


Figura 33 Resposta OSL e TA-OSL para diversas energias para a amostra de fluorita relativas à energia do Co-60.

Nota-se ainda na Figura 33 a ausência de um ponto experimental no intervalo entre 165 e 1250 keV (poderia ser a linha de 662 keV do Cs-137, por exemplo), que afeta o traçado da curva de dependência energética em um intervalo grande de energias, mas ainda assim é possível observar a tendência de queda da resposta OSL/dose.

Como vimos nas seções anteriores a equação 14 descreve bem o decaimento OSL da fluorita usada nesse trabalho, e vimos que o parâmetro β dessa equação pode estar relacionado a dispersão dos portadores de carga na amostra. Os valores do parâmetro β obtidos por ajustes da equação 14 aos pontos experimentais das curvas OSL e TA-OSL para as amostras usadas nesse trabalho, para as diversas energias podem ser vistas na figura 34. Os pontos em preto na figura 34 são os valores de β para a OSL onde estão as médias dos valores ajustados para doses variando de 0,1 até 2 mGy

para cada qualidade de feixe da tabela 1. A média é a reta horizontal vermelha com valor de 0,46 e não há uma dependência evidente entre o valor de β e a energia do feixe. Notamos que há valores abaixo da média para energia até 100 keV e acima da média a partir desse valor, indicando alguma tendência, mas não muito forte.

Os resultados para a TA-OSL na mesma situação descrita para a OSL anteriormente, são os pontos em vermelho na figura 34, a primeira grande diferença para aos valores de β para a TA-OSL é que eles estão maiores do que os valores obtidos para a OSL. A média nesse caso é 0,64, e como mostrado na seção 4.1 a temperatura tem bastante influência sobre os valores de β , o que pode explicar o aumento do valor de β na TA-OSL em comparação com a OSL (realizada em temperatura ambiente). Apesar dessa diferença de valores entre a OSL e a TA-OSL, até 100 keV o comportamento dos pontos é similar nos dois casos, porém a partir dessa energia o comportamento entre os dois fenômenos difere. Enquanto para a OSL não há nenhuma tendência evidente, para a TA-OSL a linha preta que ajuda a guiar os olhos evidencia um aumento do parâmetro β conforme a energia dos fótons de raios X ou Γ aumenta.

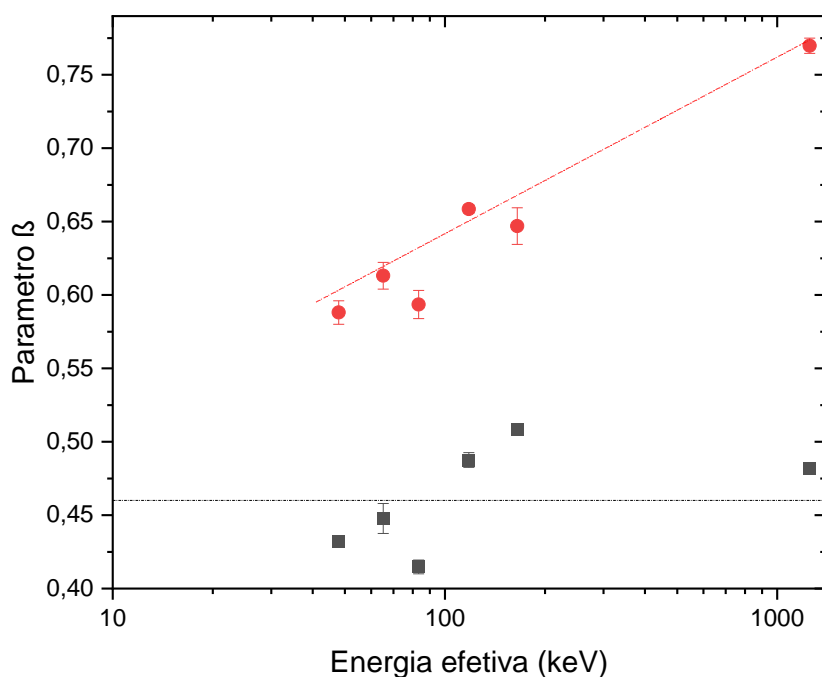


Figura 34: Variação do parâmetro β em função da energia. Em vermelho estão os pontos para a TA-OSL para uma temperatura de 185°C, e em preto os valores de β para a OSL.

O experimento deve ser repetido para verificar se esse ponto de 1225 keV para a OSL realmente cai, ou se aumenta como no caso da TA-OSL, e como podemos notar, um ponto em 662 keV (irradiação com Cs-137) ajudaria a completar a dependência energética para a fluorita usada nesse trabalho. Se confirmado em experimentos futuros essa dependência vista na figura 34 para a TA-OSL, o modelo de ajuste pode ser uma ferramenta usada para estimar a energia do fóton que depositou energia na amostra.

4.5 Simulação MC

Essa sessão trata da simulação usando o código PENELOPE com a interface PenEasy V20190921, para avaliar a deposição de energia nas amostras de fluorita. Como comentado na sessão 2.4.1 a composição atômica dos corpos, é feita com a sub-rotina, chamada MATERIAL, que contém as densidades e a fração por peso de cada elemento presente na geometria criada, portanto a fluorita simulada aqui não possui exatamente todas as características físicas da fluorita natural misturada com o aglutinante usada no trabalho.

De toda forma, para uma análise qualitativa para a deposição de energia a simulação pode ser útil para entender o que acontece nas figuras 35 (a) e (b). Onde, foi feito um experimento em que as faces da pastilha são identificadas e é avaliado o sinal emitido pelas duas faces de uma mesma amostra. Na primeira parte do experimento, a medida consiste numa exposição à radiação beta e leitura na mesma face, e na segunda parte uma face é exposta a radiação e a leitura é feita na outra face (esse procedimento é feito abrindo o Risø e virando a outra face da amostra, logo após a exposição para a realização da leitura).

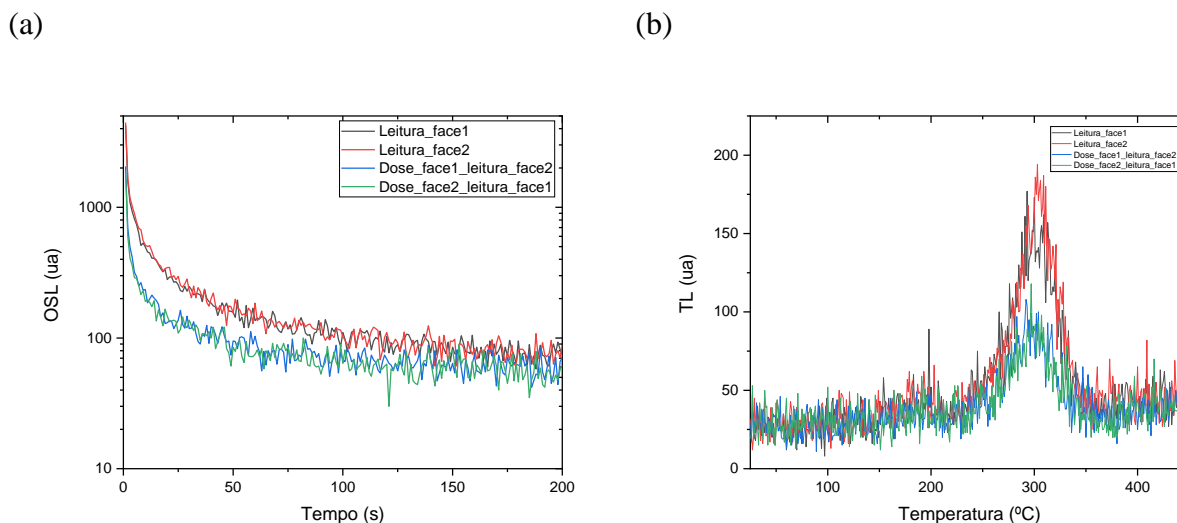


Figura 35: Sinal OSL, para uma dose de 10mGy de radiação beta para uma amostra de fluorita, para leitura e exposição nas duas faces na figura (a) e sua TL residual na figura (b).

Como é mostrado na figura 35 (a) praticamente não há diferenças no decaimento OSL quando a exposição e leitura são realizadas na mesma face e o mesmo acontece para as TLs residuais na figura 35(b). Resultado semelhante é visto no segundo experimento, ou seja, quando a exposição é feita em uma face e a leitura em outra. Há diferenças nos sinais de OSL somente quando comparamos o resultado de um experimento com o outro, isso acontece porque a deposição de energia não é uniforme ou é a falta de transparência à luz que afeta os sinais, ou ainda uma combinação das duas hipóteses?

Se a energia for depositada uniformemente na amostra, como a pastilha de fluorita não é completamente transparente, a luz emitida por TL/OSL que é captada pela fotomultiplicadora do leitor deve vir majoritariamente da face que esta apontada para o detector. A geometria do equipamento simulado, bem como o espectro de energias da fonte de radiação beta estão na seção 3.4, o resultado visto na figura 36 é a distribuição cilíndrica de dose na pastilha de fluorita, onde a escala de cores representa a dose em keV/g por história para cada fatia de posição z a partir da base da pastilha ($z=0$), e para cada posição radial R a partir do centro da pastilha ($R=0$).

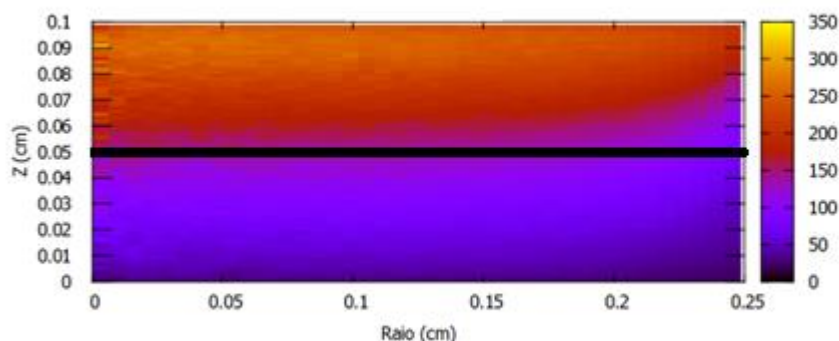


Figura 36: Distribuição de dose (keV/g por história) cilíndrica para a amostra de fluorita irradiada com radiação beta (Sr/Y-90). A linha horizontal mostra a posição z que corresponde a 50% da dose máxima.

Como mostra a figura 36 a deposição simulada de energia não é distribuída uniformemente, sendo depositada majoritariamente na face mais próxima da fonte de radiação beta, o que ajuda a explicar a perda de quase 50% do sinal luminescente emitido pela amostra quando exposição é feita em uma face e a leitura em outra. Dessa forma a perda de sinal vista na figura 35, pode não ser causada apenas pelo fato de a amostra usada não ser completamente transparente a luz, mas também a dose não se distribuir uniformemente pela amostra. O experimento cujos resultados estão na figura 37 foram realizados para a irradiação com os raios X, como descrito na Seção 3.4.2.

Nessa simulação foi gerado em média $2,8 \times 10^8$ histórias com uma energia média depositada na amostra de $5,3 \times 10^3$ eV/história, e considerando a massa média das pastilhas como 0,054 g temos uma estimativa de 4,5 mGy de dose, que é pouco mais que o dobro das doses usadas na seção 4.3 na avaliação da dependência energética e na dependência do parâmetro β na seção 4.3. Vemos uma deposição de energia semelhante nos 4 casos mostrados na figura 36, onde em nenhuma das qualidades os resultados da simulação mostraram uma deposição de energia uniforme em todo o volume da amostra, estando concentrado principalmente na face apontada para o feixe, embora de forma bem menos concentrada que para irradiação com partículas beta.

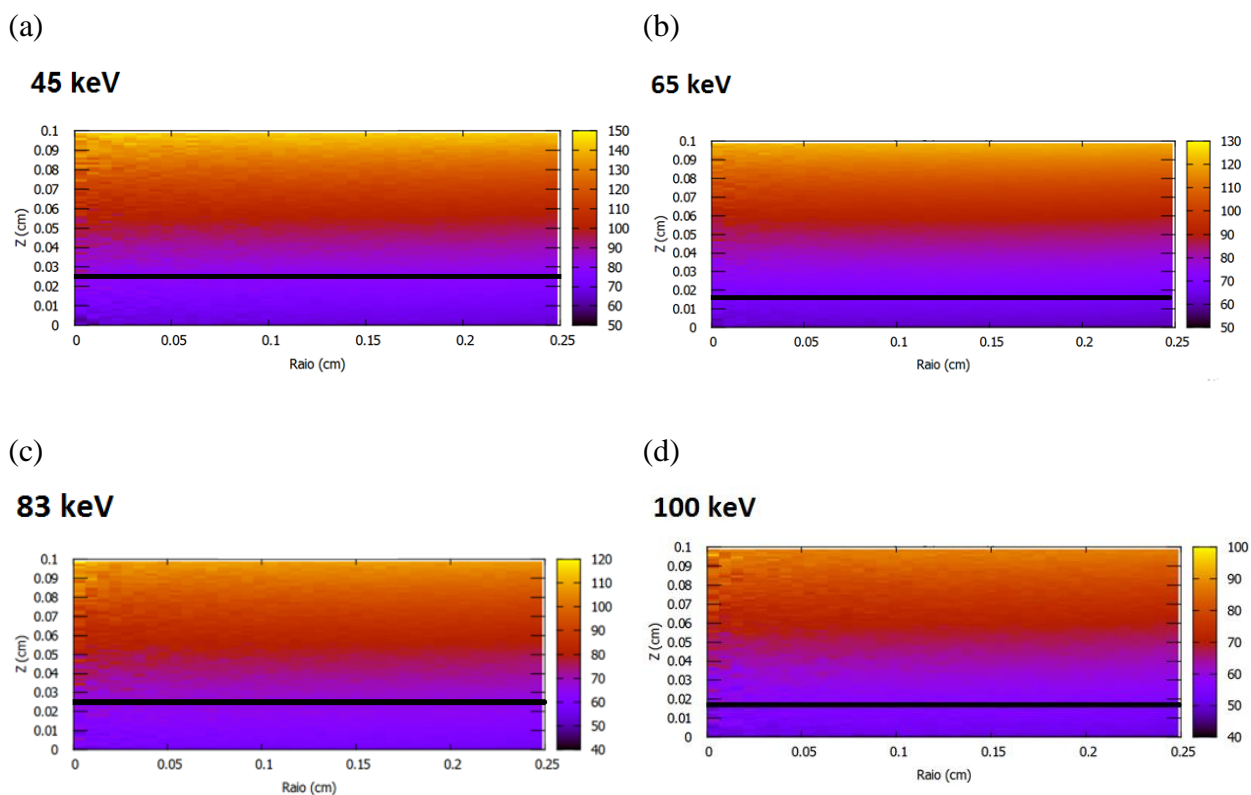


Figura 37: Distribuição de dose (keV/g por história) cilíndrica para a amostra de fluorita. Note que a escala de cores muda para cada simulação. Uma linha horizontal mostra a posição z que corresponde a 50% da dose máxima em cada caso.

Durante todos os experimentos na seção 4.3 onde os feixes de raios X foram usados foi tomado o cuidado de manter a face que estava exposta a radiação, também apontando para a fotomultiplicadora no momento da leitura. Os resultados vistos nessa seção são fruto de uma simulação numérica, que possui suas limitações como comentado na seção 3.4.4, mas contribui de forma qualitativa para o entendimento da deposição de energia nas amostras de fluorita.

5.CONCLUSÕES

O presente trabalho explora resposta de sinais luminescentes (TL/OSL e TA-OSL) de detectores obtidos pela prensagem a frio de fluorita verde natural em pó combinado com um aglutinante comercial, para irradiação com fótons de raios X e Γ de diversas energias e radiação beta, e apresenta um modelo para o decaimento OSL em CW que também pode ser aplicado para o decaimento TA-OSL até a temperatura máxima de estímulo de 185°C. O modelo apresentado, é de um decaimento na forma de uma exponencial estendida seguido por uma exponencial simples, e apresenta um bom ajuste ao conjunto de dados experimentais com o χ^2_{res} em torno de 0,92.

Foi avaliado ainda o comportamento do parâmetro β na exponencial estendida em relação as diversas variáveis de interesse. Vimos que o parâmetro não está relacionado ao fluxo de fótons, mas pode haver correlação moderada e crescente entre β e a dose absorvida. O significado físico desse novo parâmetro pode estar relacionado a dispersão dos portadores de carga na estrutura cristalina do material, e o que contribui para esse argumento é a correlação forte entre a temperatura de leitura da TA-OSL e os valores de β ajustados aos diversos conjuntos experimentais. Outro resultado interessante é a dependência dos valores ajustados de β e a energia do fóton, que embora ainda sejam necessários mais testes no modelo para as amostras de fluorita, essa relação pode ser uma ferramenta usada para estimar indiretamente a energia do fóton que depositou energia na amostra. Foram obtidas ainda as curvas de dependência energética que podem ser usadas para a determinação do equivalente de dose pessoal.

O estudo do sinal TA-OSL da amostra de fluorita natural usada nesse trabalho mostrou alguns resultados bastante interessantes. Podemos observar o decaimento do sinal TA-OSL até uma temperatura máxima de estímulo de 185°C, pois, a partir dessa temperatura, a emissão se torna contínua, em especial, a curva de 290°C vista na figura 21(a) foi continuada por 600s sem haver queda aparente do sinal. Baseado no modelo proposto em (POLYMERIS, 2006) para explicar o que foi observado para o sinal de TA-OSL para fluorita usada nesse trabalho, que tem como hipótese a existência de portadores de cargas aprisionadas, em armadilhas muito profundas, cujo acesso não era possível somente com os estímulos ou térmicos ou ópticos, somente com o estímulo óptico termicamente assistido, inclusive a existência de um pico 4 na TL residual do sinal TA-OSL na temperatura de 410 °C, que não era esperado para a amostra usada nesse trabalho, cuja

intensidade está relacionada com a temperatura de estimula da TA-OSL. Foi avaliado a quantidade de energia fornecida na forma de energia térmica para que as cargas aprisionadas possam ser liberadas de uma armadilha muito profunda $E_A = (0,36 \pm 0,05)$ eV, bastante próximo do valor já reportado na literatura.

Durante o trabalho foram desenvolvidos alguns códigos em MATLAB usados na simulação de curvas de TL/OSL a partir das equações fundamentais, sendo possível variar alguns parâmetros como concentrações de defeitos e dose absorvida, bem como um script para o ajuste das curvas de OSL/TA-OSL que estão disponíveis no apêndice A. Foi usando ainda o código PENELOPE para avaliar a deposição de energia pelas radiações X e beta nas amostras de fluorita, onde os resultados da simulação contribuem qualitativamente para o entendimento da deposição de energia nas amostras. Os resultados mostraram que em nenhuma das qualidades dos feixes de raio X simulados ou para a exposição à radiação beta temos uma deposição de energia uniforme em todo o volume da amostra, estando concentrado principalmente na face apontada para o feixe. Os resultados deste trabalho podem colaborar com o projeto de um monitor individual baseado em OSL e com bom desempenho para trabalhadores em radiologia.

Sugestões para Trabalhos futuros

- Realizar irradiações com doses mais baixas (menores que 0.1 mGy) a fim de verificar diretamente o limite de detectabilidade do sinal de TA-OSL para as amostras de fluorita usadas neste trabalho.
- Expor a amostra ao Cs-37 a fim de completar as informações sobre a dependência energética do sinal e sua relação com o parâmetro β do modelo visto na equação 14.
- Avaliar a dependência angular da resposta TA-OSL para raio-X e Γ bem como a relação do parâmetro β do modelo proposto na equação 14.
- Medir o espectro de emissão do sinal de TA-OSL e TL, e se possível inferir quais centros de emissão na amostra colaboram para a emissão de luz, em especial uma avaliação da emissão do pico 4, vistos nas figuras 23 e 24.
- Comparar a emissão TA-OSL das amostras naturais de fluorita com uma amostra sintética, a fim de avaliar o comportamento das curvas e da TL residual.
- Explorar as correlações TA-OSL com a TL e OSL.
- Aprimoramento da simulação TL/OSL e expandir o código para simular um decaimento de TA-OSL.

Referências Bibliográficas

AGOSTINELLI, S.; ALLISON, J.; AMAKO, K. J. Geant4—a simulation toolkit. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment**, v. 506, n. 3, Jul 2003.

ABNT - ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE NORMAS TÉCNICAS. **NBR 4037 Proteção radiológica Radiação X e gama de referência para calibração de dosímetros e medidores de taxa de dose, e para determinação de suas respostas em função da energia dos fótons Parte 1: Características das radiações e métodos de produção**. Rio de Janeiro, p. 53. 2020.

BERBERAN-SANTOS, M. N.; BODUNOV, ; VALEUR, B. Mathematical functions for the analysis of luminescence decays with underlying distributions 1. Kohlrausch decay function (stretched exponential). **Chemical Physics**, v. 315, n. 1-2, p. 171-182, ago. 2005.

BERBERAN-SANTOS, M.; BODUNOV, E. N.; VALEUR, B. History of the Kohlrausch (stretched exponential) function: Focus on uncited pioneering work in luminescence. **arXiv preprint arXiv:0804.1814**, 2008.

BERGER, M. J. et al. **ESTAR, PSTAR, and ASTAR: Computer Programs for Calculating Stopping-Power and Range Tables for Electrons, Protons, and Helium Ions (version 1.2.3)**, 2005. Disponível em: <<http://physics.nist.gov/Star>>. Acesso em: ago. 2021.

BØTTER-JENSEN, ; MCKEEVER, W.; WINTLE, A. G. **Optically stimulated luminescence dosimetry**. Amsterdam: Elsevier, 2003.

BULUR, E.; YELTIK, A. Optically stimulated luminescence from BeO ceramics: An LM-OSL study. **Radiation measurements**, v. 45, n. 1, p. 29-34, jan. 2010.

CHEN, R.; LEUNG, P. L. The decay of OSL signals as stretched-exponential functions. **Radiation measurements**, v. 37, p. 519-526, nov. 2003.

CHRUŚCIŃSKA, A. On some fundamental features of optically stimulated luminescence measurements. **Radiation measurements**, v. 45, n. 9, out. 2010.

CHRUŚCIŃSKA, A. Influence of spectral width of stimulation band on the shape of OSL curve. **Radiation measurements**, v. 56, p. 18-22, set. 2013.

CHRUŚCIŃSKA, A.; KIJEK, N. Thermally modulated optically stimulated luminescence (TM-OSL) as a tool of trap parameter analysis. **Journal of Luminescence**, v. 174, p. 42-48, jun. 2016.

COSTA, P. et al. Generation of calibrated tungsten target x-ray spectrum: modified TBC mode. **Health physics**, v. 92(1), p. 24-32, 2007.

CRUZ, M. T. D. **Propriedades termoluminescentes da fluorita brasileira de coloração violeta**. (Tese de Doutorado) Instituto de Física, Universidade de São Paulo. São Paulo. 1972.

ECKHARDT, R.; ULAM, S.; VON NEUMANN, J. The Monte Carlo method. **Los Alamos Science**, v. 15, p. 131, 1987.

FERREIRA, F. A. et al. Correlation of optically and thermally stimulated luminescence of natural fluorite pellets. **Radiation Measurements**, v. 71, p. 254-257, Dezembro 2014.

FURETTA, C. **Handbook of thermoluminescence**. [S.l.]: World Scientific, 2010.

GARCÍA-TORAÑO, G.; PEYRES, V.; SALVAT, F. PenNuc: Monte Carlo simulation of the decay of radionuclides. **Computer Physics Communications**, v. 245, dez. 2019.

GUIMARÃES, C. C.; MORALLES, M.; OKUNO, E. GEANT4 simulation of the angular dependence of TLD-based monitor response. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment**, v. 580, n. 1, p. 514-517, set. 2007.

HELENE, O. **Metodos dos Minimos Quadrado com formalismo matricial**. [S.l.]: Editora Livraria da Física, 2006.

ICRU. Conversion Coefficients for use in Radiological Protection. Against External Radiation (Report 57). **Journal of the International Commission on Radiation Units and Measurements**, 1998.

IRD - INSTITUTO DE RADIOPROTEÇÃO E DOSIMETRIA. **LABORATÓRIOS CERTIFICADOS PARA PRESTAÇÃO DE SERVIÇO DE MONITORAÇÃO INDIVIDUAL EXTERNA**. Disponível em: <<http://www.ird.gov.br/index.php/casec/download/9-casec/168-laboratorios-de-dosimetria-certificados-janeiro-2021>>. Acesso em: jan. 2021.

KAFADAR, V. E. Thermal quenching of thermoluminescence in TLD-200, TLD-300 and TLD-400 after β -irradiation. **Physica B: Condensed Matter**, v. 406, n. 3, p. 537-540, Fevereiro 2011.

KITIS, G.; POLYMERIS, S.; PAGONIS, . Stimulated luminescence emission: From phenomenological models to master analytical equations. **Applied Radiation and Isotopes** , v. 153, nov. 2019.

LEVERENZ, H. W. **An Introduction to Luminescence of Solids**. [S.l.]: Dover Publications, 1968.

MAJGIER, R. et al. Investigation on thermally assisted optically stimulated luminescence (TA-OSL) signal in various sodium chloride samples. **Applied Radiation and Isotopes**, v. 143, p. 98-106, jan. 2019.

MALTHEZ, A. L. et al. Experimental photon energy response of different dosimetric materials for a dual detector system combining thermoluminescence and optically stimulated luminescence. **Radiation measurements**, v. 71, p. 133-138, 2014.

MALTHEZ, A. L. et al. OSL dosimetric properties and efficiency of Brazilian natural calcium fluoride pellets. **Applied Radiation and Isotopes**, 135, Maio 2018. 166-170.

MCKEEVER, S. W. **Thermoluminescence of solids**. New York: Cambridge University Press, v. 3, 1988.

MCKEEVER, S. W. S. et al. Temperature dependence of OSL decay curves: experimental and theoretical aspects. **Radiation Measurements**, v. 2, p. 161-170, abr. 1997.

METROPOLIS, N. The beginning of the Monte Carlo method. **Los Alamos Science**, n. 584, p. 125-130, Jan 1987.

MISHRA, D. R. et al. Method of measuring thermal assistance energy associated with OSL traps in α -Al₂O₃: C phosphor. **Radiation measurements**, v. 46, n. 8, p. 635-642, ago. 2011.

MOMMA, K.; IZUMI, F. VESTA 3 for three-dimensional visualization of crystal, volumetric and morphology data. **Journal of Applied Crystallography**, v. 44, p. 1272-1276, 2011.

MUSTAFA, T.; CORRECHER, V.; GUINEA, J. G. Luminescence emission of natural fluorite and synthetic CaF₂: Mn (TLD-400). **Radiation Physics and Chemistry**, v. 119, p. 151-156, fev. 2016.

NORAS, J. M. Photoionisation and phonon coupling. **Journal of Physics C: Solid State Physics**, v. 13, n. 25, set. 1980.

NUTECH. **Guide to “The RisØ TL/OSL Reader”**. DTU. [S.l.]. 2014.

OKUNO, E. **Propriedades termoluminescentes do fluoreto de cálcio natural**. (Tese de Doutorado) Instituto de Física, Universidade de São Paulo. São Paulo. 1971.

OKUNO, E. **Radiação: efeitos, riscos e benefícios**. 2. ed. São Paulo: Oficina de Textos, 2018.

OKUNO, E. et al. Three decades of occupational individual monitoring at the University of São Paulo. **Radiation protection dosimetry**, v. 177, n. 3, p. 285-288, mar. 2017.

OKUNO, E.; YOSHIMURA, E. M. **Física das radiações**. 1. ed. São Paulo: Oficina de textos, 2010.

PAVESI, L.; CESCHINI, M. Stretched-exponential decay of the luminescence in porous silicon. **Physical Review B**, v. 48, n. 23, p. 17625, 1993.

POLYMERIS, G. S.; KITIS, ; TSIRLIGANIS, N. C. Correlation between TL and OSL properties of CaF₂:N. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms**, v. 251, n. 1, p. 133-142, set. 2006.

POLYMERIS, S. Thermally assisted OSL (TA-OSL) from various luminescence phosphors; an overview. **Radiation Measurements**, v. 90, p. 145-152, jul. 2016.

POLYMERIS, S.; KITIS, G. Thermally assisted photo transfer OSL from deep traps in Al₂O₃: C grains exhibiting different TL peak shapes. **Applied Radiation and Isotopes**, v. 70, n. 10, out. 2012.

REUVEN, C.; LEUNG, P. L. The decay of OSL signals as stretched-exponential functions. **Radiation measurements**, v. 37, n. 4-5, p. 519-526, nov. 2002.

ROPP, C. **Encyclopedia of the alkaline earth compounds**. Amsterdam: Elsevier, 2012.

SCHREYER, ; GUO, L.; THIRUNAHARI, S. Simultaneous determination of several crystal structures from powder mixtures: the combination of powder X-ray diffraction, band-target entropy minimization and Rietveld methods. **Journal of Applied Crystallography**, v. 47, n. 2, p. 659-667, 2014.

SEMPAU, J.; BADAL, A.; BRUALLA, L. A PENELOPE-based system for the automated Monte Carlo simulation of clinacs and voxelized geometries—application to far-from-axis fields. **Medical physics**, v. 38, n. 11, p. 5887-5895, Nov 2011.

SHAMPINE, L. F. et al. Non-negative solutions of ODEs. **Applied mathematics and computation**, v. 170, n. 1, p. 556-569, 2005.

SHAMPINE, L. F.; REICHEL, M. W. The matlab ode suite. **SIAM journal on scientific computing**, v. 18, n. 1, p. 1-22, 1997.

SOARES, L. D. R. L. **Estudo do comportamento de sinais OSL de BeO e Al₂O₃: C usando o Modelo OTOR Simplificado e Método dos Mínimos Quadrados**. (Dissertação de Mestrado) Instituto de Física, Universidade de São Paulo. São Paulo. 2018.

SPOONER, N. A. On the optical dating signal from quartz. **Radiation Measurements**, v. 23, n. 2-3, p. 593-600, 1994.

TRZESNIAK, P. et al. Brazilian Fluorite-Based Dosimetric Pellets: History and Post-Use Review. **Radiation Protection Dosimetry**, v. 34, n. 1-4, p. 167–170, dez. 1990.

UMISED, N. K. et al. Development of a mechanically resistant fluorite-based pellet to be used in personal dosimetry. **Radiation Measurements**, v. 134, jun. 2020.

UNEP. **Radiation: Effects and sources**. [S.l.]: [s.n.], 2016. Disponível em: <<https://www.unep.org/resources/report/radiation-effects-and-sources>>. Acesso em: ago. 2021.

WINTLE, A. G.; MURRAY, A. S. A review of quartz optically stimulated luminescence characteristics and their relevance in single-aliquot regeneration dating protocols. **Radiation Measurements**, v. 41, p. 369-391, 2006.

YOSHIMURA, E. M.; DA CRUZ, M. T. Simultaneous Determination of Effective Energy and Exposure of X Ray Beams. **Radiation Protection Dosimetry**, v. 6, n. 1-4, dez. 1983.

YOSHIMURA, E. M.; YUKIHARA, E. G. Optically stimulated luminescence: searching for new dosimetric materials. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms**, v. 250, p. 337-341, 2006.

YUKIHARA, E. G.; MCKEEVER, W. **Optically stimulated luminescence: fundamentals and applications**. [S.l.]: John Wiley & Sons, 2011.

Apêndice A

Nesse apêndice estão os códigos usados na simulação de curvas de TL/OSL, bem como o script

usado para ajustar o modelo da equação 14: $I_{OSL} = I_1 e^{\left(\frac{-t}{\tau_1}\right)^\beta} + I_2 e^{\frac{-t}{\tau_2}} + C$.

Script para simulação das curvas TL/OSL:

Essa simulação usa três funções, a primeira função simula a excitação do meio pela irradiação e liberação dos elétrons:

```

1  function diffeqs = odes_sys_ex(t, var)
2  %Excitação, primeira etapa da simulação.
3
4  %Variaveis
5  n = var(1);
6  m = var(2);
7  n_c = var(3);
8  n_v = var(4);
9
10
11 %Constantes
12 s = 10^12; %s^-1
13 E = 1.5; %eV
14 K = 8.617333262*10^(-5); %eV/K
15 A_n = 4.6*10^(-8); % cm^3 s^-1
16 N = 10^10; %cm^-3
17
18 B = 4*10^(-11); %cm^3 s^-1
19 M = 10^(10); %cm^3 s^-1
20 A_m = 10^(-7);%cm^3 s^-1
21
22 X = 5 *10^7;%cm^-3 s^-1 variavel responsavel pela "dose" na amostra.
23
24 %Conjunto de equacoes diferenciais a ser resolvido:
25
26 diffeqs(1,1) = A_n*(N-n)*n_c; %- s*n*exp(-E/(K*t)) ; %dn/dt
27 diffeqs(2,1) = B*(M-m)*n_v -A_m*m*n_c;%dm/dt
28 diffeqs(3,1) = X - A_n*(N-n)*n_c - A_m*m*n_c ; %dn_c/dt
29 diffeqs(4,1) = A_n*(N-n)*n_c + X - A_n*(N-n)*n_c - A_m*m*n_c - B*(M-m)*n_v + A_m*m*n_c;
30 end

```

A segunda função simula a etapa de relaxamento, onde a variável X na linha 21 é zero, pois nessa etapa não há estímulo nem excitação, e é simulado a ocupação das armadilhas pelos portadores de cargas:

```

1 function diffeqs = odes_sys_re(t, var)
2 %Relaxamento, segunda etapa da simulacao.
3
4 %Variaveis
5 n = var(1);
6 m = var(2);
7 n_c = var(3);
8 n_v = var(4);
9
10
11 %Constantes
12 s = 10^12; %s^-1
13 E = 1.5; %eV
14 K = 8.617333262*10^(-5); %eV/K
15 A_n = 4.6*10^(-8); % cm^3 s^-1
16 N = 10^10; %cm^-3
17
18 B = 4*10^(-11); %cm^3 s^-1
19 M = 10^(10); %cm^3 s^-1
20 A_m = 10^(-7); %cm^3 s^-1
21 X = 0; %cm^-3 s^-1 nessa etapa nao ha estimulo
22
23 %Equações diferenciais
24
25 diffeqs(1,1) = A_n*(N-n)*n_c;% - s*n*exp(-E/(K*t)) ; %dn/dt
26 diffeqs(2,1) = B*(M-m)*n_v -A_m*m*n_c;%dm/dt
27 diffeqs(3,1) = X - A_n*(N-n)*n_c - A_m*m*n_c ; %dn_c/dt
28 diffeqs(4,1) = A_n*(N-n)*n_c + X - A_n*(N-n)*n_c - A_m*m*n_c -B*(M-m)*n_v +A_m*m*n_c; %dm_v/dt
29 end
30

```

A terceira etapa é o estímulo:

Térmico para simular uma curva de termoluminescência

```

1 function diffeqs = odes_sys_st(t, var)
2 %Excitação, primeira etapa da simulação.
3
4 %Variaveis
5 n = var(1);
6 m = var(2);
7 n_c = var(3);
8 %n_v = var(4);
9
10
11
12 %Constantes
13 s = 10^12; %s^-1
14 E = 1.5; %eV
15 K = 8.617333262*10^(-5); %eV/K
16 A_n = 4.6*10^(-8); % cm^3 s^-1
17 N = 10^10; %cm^-3
18 A_m = 10^(-7);%cm^3 s^-1
19
20 X = 0;%cm^-3 s^-1
21 B = 4*10^(-11); %cm^3 s^-1
22 M = 10^(10); %cm^3 s^-1
23
24
25
26 %Equações diferenciais
27
28 diffeqs(1,1) = A_n*(N-n)*n_c - s*n*exp(-E/(K*t)); %dn/dt
29 diffeqs(2,1) = -A_m*m*n_c ;%dm/dt
30 diffeqs(3,1) = s*n*exp(-E./(K*t)) - A_n*(N-n)*n_c - A_m*m*n_c ;%dn_c/dt
31 %diffeqs(4,1) = A_n*(N-n)*n_c + X - A_n*(N-n)*n_c - A_m*m*n_c -B*(M-m)*n_v +A_m*m*n_c; %dm_v/dt
32 end

```

Óptico para simular um decaimento OSL:

```

1 function diffeqs = odes_sys_st(t, var)
2 %Excitação, primeira etapa da simulação.
3
4 %Variaveis
5 n = var(1);
6 m = var(2);
7 n_c = var(3);
8 %n_v = var(4);
9
10
11
12 %Constantes
13 s = 10^12; %s^-1
14 E = 1.5; %eV
15 K = 8.617333262*10^(-5); %eV/K
16 A_n = 4.6*10^(-8); % cm^3 s^-1
17 N = 10^10; %cm^-3
18 A_m = 10^(-7);%cm^3 s^-1
19
20 X = 0;%cm^-3 s^-1
21 B = 4*10^(-11); %cm^3 s^-1
22 M = 10^(10); %cm^3 s^-1
23
24 phi_0 = 33; %mW/cm^2 %10^17
25 sigma_0 = 2e-16; %cm^2 %2e-16;
26 f = 1;
27
28 %Equações diferenciais
29
30 diffeqs(1,1) = A_n*(N-n)*n_c - f*n; %dn/dt
31 diffeqs(2,1) = -A_m*m*n_c; %dm/dt
32 diffeqs(3,1) = -A_m*m*n_c - A_n*(N-n)*n_c + f*n; %dn_c/dt
33 %diffeqs(4,1) = A_n*(N-n)*n_c + X - A_n*(N-n)*n_c - A_m*m*n_c - B*(M-m)*n_v + A_m*m*n_c; %dm_v/dt
34 end

```

Por fim o arquivo com o script onde são chamadas todas as 3 funções. A simulação consiste em partir de uma condição inicial, e resolver a primeira função que simula a etapa de excitação (irradiação), e a solução da primeira função é usada como condição inicial para resolver a segunda função que simula a etapa de relaxamento. No fim é usado como condição inicial os resultados da segunda função para o estímulo óptico ou térmico. Nesse script a partir da linha 17 estão as funções usadas na criação das figuras usadas no trabalho.

```

1 %Script
2 clear all
3
4 range = linspace(298,673,100); %temperatura
5 ICs = [10^10,10^10,0,0]; % Condições iniciais da simulacao
6
7 options = odeset('NonNegative',3);
8 [tsol1,varsol1] = ode45(@odes_sys_ex,range,ICs, options);
9 ICs1 = [varsol1(end,1),varsol1(end,2),varsol1(end,3),varsol1(end,4)]; %condicoes iniciais da etapa de relaxamento
10
11 [tsol2,varsol2] = ode45(@odes_sys_re,range,ICs1, options);
12 ICs2 = [varsol2(end,1),varsol2(end,2),varsol2(end,3)]; %condicoes iniciais da etapa de estimulo
13
14 [tsol3,varsol3] = ode45(@odes_sys_st,range,ICs2, options); conjunto final de solucoes
15
16 %FIGURAS
17 figure_concentracion= figure(1);
18 t = linspace(0,375,length(range));
19 plot(t, varsol3(:,2),'-o','LineWidth',2)
20 xlabel('Tempo (s)','fontweight','bold','fontsize',16)
21 xlim([0 365])
22 ylabel('Concentração de elétrons armadilhados n(t)','fontweight','bold','fontsize',16)
23
24 T = linspace(298,673,length(range));
25 figure_TL = figure(2);
26 TL2 = abs(gradient(varsol3(:,2)));
27 plot(T, TL2,'-o','LineWidth',2)
28 xlabel('Temperatura (K)','fontweight','bold','fontsize',16)
29 xlim([298 675])
30 ylabel('TL(ua)','fontweight','bold','fontsize',16)
31
32 %Salvar a TL em um arquivo .txt
33 save ('test2.txt', 'TL2', '-ascii')

```

Script para ajustar a equação: $I_{OSL} = I_1 e^{\left(\frac{-t}{\tau_1}\right)^\beta} + I_2 e^{\frac{-t}{\tau_2}} + Fundo$

```

1 clear all
2 D = load( 'Nome_do_Arquivo.txt' );
3 t = D(1:end,1); %primeira coluna dados tempo
4 y = D(1:end,2); %segunda coluna dados da intensidade
5 sy = D(1:end,3); %terceira coluna dados da incerteza na intensidade
6
7 f = @(A,y)( A(1)*exp(-(t/A(2)).^A(3))+A(5)*exp(-t*A(5))+ A(6));
8 Q = @(A,y)( sum( ( (y-f(A))./sy ).^2 ) );
9
10 %"parametros iniciais"
11 I0 = max(y) ;
12 s0 = -;
13 beta = -;
14 I1 = -;
15 s1 = -;
16 fundo = -;
17 %vetor com os parametros
18 Ac = [I0-fundo s0 beta I1 s1 fundo];
19 %numero de graus de liberdade
20 l = length(y)-length(Ac);

```

```

21
22 %minimização
23 Atil = fminsearch( @(z)Q(z,y), Ac );
24 chi2 = Q(Atil,y);
25 yresi = y - f(Atil);
26 chi2Reduzido = chi2/l;
27 yresired = (y - f(Atil))./sy;
28
29 %MC para avaliar incerteza
30 nREP = 1000;
31 for qR = nREP:-1:1
32     yMC = f(Atil) + sy.*randn(size(sy));
33     AtilMC(qR,:) = fminsearch( @(z)Q(z,yMC), Ac );
34     chi2MC(qR,1) = Q(AtilMC(qR,:),yMC);
35 end
36 %Matriz de covariancias
37 cov( AtilMC )

```

```

40 %Figuras
41 figure, errorbar( t, y, sy, '*' ), hold on, plot( t,f(Atil),'-r')
42 xlabel('Tempo(s)')
43 xlim([0 200])
44 ylabel('OSL (countagens)')
45 legend('Dados','Ajuste')
46 %title('Data and Fitted Curve')
47
48 % figure,plot( t,yresi,'*b')
49 % hline = reffline([0]);
50 % xlabel('Tempo(s)')
51 % %ylim([-50 50])
52 % ylabel('Resíduos')
53 % title('Resíduos')
54
55
56 % figure,errorbar( t, y, sy, '*' ), hold on, plot( t,f(Atil),'-r'),set(gca,'yscale','log')
57 % xlabel('Tempo(s)')
58 % xlim([0 200])
59 % ylabel('OSL (countagens)')
60 % legend('Dados','Ajuste')
61 % %title('Data and Fitted Curve')
62
63 figure,plot( t,yresired,'*b')
64 hline = reffline([0]);
65 xlabel('Tempo(s)')
66 %ylim([-3 3])
67 ylabel('Resíduos')
68 title('Resíduos reduzidos')

```

Esse script escrito em MATLAB, recebe um arquivo de texto (.txt) com três colunas, na primeira o tempo, a segunda a intensidade do sinal luminescente e na terceira a incerteza na intensidade. Na linha 7 está o modelo ajustado e na linha 8 o valor de Q que será minimizado usando uma função própria do MATLAB *fminsearch*. Como trata-se de um ajuste não linear, pode ser que os

parâmetros ajustados no processo que está linhas 22 a 27 ser sub ou superestimado, bem como os valores da sua incerteza. A correção pode ser feita, a partir de uma simulação (linhas 29 a 35), onde a partir de um valor ajustado, por exemplo β' podemos simular muitos conjuntos de dados obedecendo a distribuição do conjunto de dados experimentais. A correção então é feita de acordo com (HELENE, 2006) onde para cada valor simulado um novo β é ajustado, e é verificado se em média esses valores são distribuídos em torno de β . Caso não, é considerado a diferença entre o valor simulado e as médias dos vários resultados obtidos.

Na da linha 37 temos o comando cov para obter matriz de covariâncias, e no MATLAB podemos converter essa matriz em uma matriz de correlação com o comando corrcoef. Nas tabelas A1 e A2 temos dois exemplos para a matriz de correlação para o conjunto de dados de uma OSL para uma dose de 100 mGy e para uma TA-OSL em 185°C.

Tabela A1: Exemplo de matriz de correlações para a TA-OSL em 185°C OSL para uma dose de 100 mGy

	I_1	τ_1^{-1}	β	I_2	τ_2^{-1}	C
I_1	1	-0.7925	-0.4928	-0.9811	-0.3848	0.0770
τ_1^{-1}	-0.7925	1	0.9070	0.7721	0.8375	0.1030
β	-0.4928	0.9070	1	0.4701	0.9247	0.2800
I_2	-0.9811	0.7721	0.4701	1	0.4043	-0.0927
τ_2^{-1}	-0.3848	0.8375	0.9247	0.4043	1	0.2211
C	0.0770	0.1030	0.2800	-0.0927	0.2211	1

Tabela A2: Exemplo de uma matriz de correlações para a OSL para uma dose de 100 mGy

	I_1	τ_1^{-1}	β	I_2	τ_2^{-1}	C
I_1	1	-0.4931	-0.6271	-0.5565	-0.4995	-0.3930
τ_1^{-1}	-0.4931	1	0.4332	0.0268	-0.1283	-0.1459
β	-0.6271	0.4332	1	0.8950	0.7270	0.5387
I_2	-0.5565	0.0268	0.8950	1	0.9137	0.7017
τ_2^{-1}	-0.4995	-0.1283	0.7270	0.9137	1	0.9004
C	-0.3930	-0.1459	0.5387	0.7017	0.9004	1