

CONFEÇÃO DE DOSÍMETROS TERMOLUMINESCENTES
DE FLUORETO DE LÍTIO SINTERIZADO

DISSERTAÇÃO

Apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Engenharia da Energia
Metalurgia e dos Materiais - PPGUEEM, como parte dos requisitos
para a obtenção do Título de

MESTRE EM ENGENHARIA

ÁREA DE CONCENTRAÇÃO: CIÊNCIA DOS MATERIAIS

por

VOLNEI BORGES

Bacharel em Física

1983

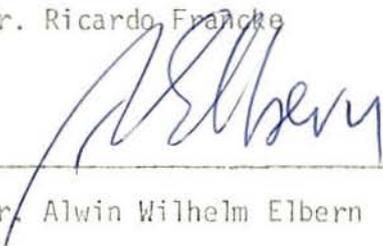
Esta DISSERTAÇÃO foi julgada adequada para a obtenção do título de Mestre em Engenharia e aprovada em sua forma final, pelo Orientador e pela Comissão Examinadora do Programa de Pós-Graduação.

Orientador: Dr. Alwin Wilhelm Elbern

Comissão Examinadora: Dra. Iduvirges Lourdes Müller
Dr. Ricardo Francke
Dr. Alwin Wilhelm Elbern

Dra. Iduvirges Lourdes Müller

Dr. Ricardo Francke



Dr. Alwin Wilhelm Elbern

Programa de Pós-Graduação:



Dr. Anildo Bristoti

Coordenador do Programa de Pós-Graduação
em Engenharia da Energia Metalurgia e dos
Materiais - PPGEEMM

RESUMO

Visando obter, no Brasil, dosímetros de estado sólido, que fossem sensíveis, reprodutíveis, de fácil manuseio e que pudessem ser empregados na dosimetria pessoal, foi desenvolvida uma técnica para obtenção destes dosímetros, utilizando pó de LiF dopado com Mg e Na. Diversos lotes de pastilhas compactadas a frio e sinterizadas foram investigadas em função da concentração de dopantes e tempo de sinterização. Determinou-se algumas características termoluminescentes, que foram comparadas com as dos dosímetros TLD-100 usados como referência internacional. A metodologia experimental e os resultados com as respectivas análises, são expostos neste trabalho.

ABSTRACT

With the aim of developing, in Brazil, dosimeters, which are sensible, reproducible, easy to handle and with possibility to be used in personal dosimetry, we worked on a technique to produce these dosimeters, using LiF powder, dopped with Mg and Na.

Many different baths of cold compacted and sinterized pellets were investigated as a function of the dopant concentration and the sinterization time. Some thermoluminescent characteristics were measured, and compared to those of the TLD-100 dosimeters, which are used as an international reference. The experimental methodology, the obtained results, with their respective analysis, are the subject of this work.

A G R A D E C I M E N T O S

O autor gostaria de expressar o seu reconhecimento:

ao CNPq-CNEN-PRONUCLEAR pelo apoio financeiro deste trabalho; .
ao prof. Alwin Wilhelm Elbern pela orientação prestada;
aos Professores Sérgio Luiz Lena Souto e Iduvirges Lourdes Müller
pelo apoio e incentivo dados;
aos Diretores da PRO RAD Consultores em Rádio Proteção Ltda, pelo
empréstimo de seus equipamentos;
e a todos aqueles que de uma forma ou outra colaboraram para a re-
alização deste trabalho, em especial aos professores do De-
partamento de Engenharia Nuclear da U.F.R.G.S.

DEDICADO

À CARININE

LISTA DE FIGURAS

	Pág.
FIGURA 1 - Esquema do diagrama de níveis de energia de um cristal o qual apresenta o fenômeno termoluminescente devido a irradiação.	5
FIGURA 2 - Curva de emissão do LiF não submetido ao tratamento térmico padrão de recozimento e irradiado com raios gama.	12
FIGURA 3 - Curva de emissão do LiF após sofrer o tratamento térmico padrão de recozimento e então ser submetido à radiação gama.	14
FIGURA 4 - Cristais de LiF fundidos em atmosferas distintas e resfriados lentamente.	21
FIGURA 5 - Equipamento e diagrama de bloco do sistema empregado na fusão para obtenção de cristais dopados de LiF.	23
FIGURA 6 - Prensa Hidráulica e compactador empregados na compactação das pastilhas de LiF.	24
FIGURA 7 - Tubo de alumina empregado na sinterização das pastilhas de LiF.	25
FIGURA 8 - Aspecto físico das pastilhas de LiF, após serem submetidas ao processo de sinterização.	26
FIGURA 9 - Equipamento e diagrama de bloco do sistema de leitura termoluminescente utilizado na leitura das pastilhas sinterizadas de LiF.	28
FIGURA 10 - Curva de aquecimento da plancheta do aparelho leitor Victoreen TLD READER 2800, obtida experimentalmente.	32
FIGURA 11 - Curvas de emissão do LiF dopado com 400 ppm de Mg e 50 ppm de Na, as pastilhas foram sinterizadas em tempos diferentes e expostas a IR.	33
FIGURA 12 - Curvas de emissão do LiF com diferentes concentrações de Mg e Na e tempo de sinterização, exposto a IR.	34
FIGURA 13 - Curvas de emissão do LiF dopado com mesma concentração de Na e diferente de Mg.	35

FIGURA 14	- Curvas de emissão do LiF dopado com mesma concentração de Na e diferente de Mg.	36
FIGURA 15	- Curvas de emissão para o LiF dopado com mesma concentração de Mg e diferente concentração de Na.	37
FIGURA 16	- Gráfico da sensibilidade TL em função do tempo de sinterização.	39
FIGURA 17	- Gráfico da sensibilidade TL em função da relação entre a concentração de Na pela de Mg.	40
FIGURA 18	- Gráfico da sensibilidade TL em função da concentração de Na	41
FIGURA 19	- Gráfico da sensibilidade TL em função da concentração de Mg.	42
FIGURA 20	- Curva de emissão obtida experimentalmente para o TLD 100 extrudado.	43
FIGURA 21	- Curva da resposta TL em função da exposição para o TLD-100	45
FIGURA 22	- Curva da resposta TL em função da exposição para um lote de pastilhas sinterizadas que possui 200 ppm de Mg e 15000 ppm de Na.	47
FIGURA 23	- Curva de resposta TL em função da exposição à radiação gama para pastilhas sinterizadas de LiF dopado - com 100 ppm de Mg e 5000 ppm de Na	49
FIGURA 24	- Curva da resposta TL em função da exposição à radiação gama para pastilhas sinterizadas de LiF dopado - com 1 ppm de Mg e 50 ppm de Na	51
FIGURA 25	- Curvas de emissão do LiF TLD-100 e LiF PTL-710	60
FIGURA 26	- Efeito do tratamento térmico a 210°C na altura de picos do LiF TLD-100 e LiF PTL-710	61
FIGURA 27	- Resposta de dois dosímetros TL de LiF com dopagem diferente, para doses absorvidas no ar normalizadas para fótons de 1 MeV	62

LISTA DE SÍMBOLOS UTILIZADOS

TL - Termoluminescente
BV - Banda de valência
BC - Banda de condução
S - Sensibilidade
X - Exposição em Roentgens
Z - número atômico
 Z_{ef} - número atômico efetivo
Gy - Gray
R - Roentgens
C - Coulomb
Ci - Curie
ppm - partes por milhão
h - horas
N - Newton
[] - concentração

CONTEÚDO

RESUMO (e ABSTRACT)	III
1. INTRODUÇÃO	1
2. O FENÔMENO TERMOLUMINESCENTE (TL)	3
2.1. MODELO QUALITATIVO DO PROCESSO TERMOLUMINESCENTE	4
2.2. CARACTERIZAÇÃO DE UM MATERIAL TERMOLUMINESCENTE PARA FINS DOSIMÉTRICOS	6
2.2.1. Curva de emissão	6
2.2.2. Sensibilidade e limite de dose	7
2.2.3. Estabilidade	8
2.2.4. Curva de resposta à exposição - Supralinearidade ..	8
2.2.5. Dependência com a taxa de exposição ou taxa de dose	8
2.2.6. Dependência com a energia da radiação	8
2.2.7. Reutilização	9
2.3: REQUISITOS DE SCHULMAN	9
3. FUNDAMENTOS TEÓRICOS	11
3.1. CARACTERIZAÇÃO DO FLUORETO DE LÍTIO COMO MATERIAL TL	11
3.1.1. Curva de emissão	11
3.1.2. Sensibilidade e limite de dose	12
3.1.3. Estabilidade	13
3.1.4. Curva de resposta à exposição- Supralinearidade...	13
3.1.5. Dependência com a taxa de exposição	14
3.1.6. Dependência com a energia da radiação	15
3.1.7. Reutilização	15
3.2. TRATAMENTOS TÉRMICOS	15
3.3. PROCESSO TERMOLUMINESCENTE NO FLUORETO DE LÍTIO	16
3.3.1. A importância dos íons Magnésio (Mg)	17
3.3.2. A importância dos íons Titânio (Ti) e Hidróxido (OH) ...	17
4. PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL	19
4.1. DOPAGEM DAS AMOSTRAS	19
4.1.1. Método de evaporação	19
4.1.2. Método de solidificação	20

....

4.1.3. Confeção das pastilhas	22
4.2. COMPACTAÇÃO E SINTERIZAÇÃO DO PÓ	24
4.3. IRRADIAÇÃO E LEITURA DAS PASTILHAS SINTERIZADAS	26
5. RESULTADOS E DISCUSSÃO	30
5.1. CURVA DE AQUECIMENTO DA PLANCHETA	31
5.2. CURVAS DE EMISSÃO DAS PASTILHAS	31
5.3. SENSIBILIDADE TL EM FUNÇÃO DO TEMPO DE SINTERIZAÇÃO	38
5.4. SENSIBILIDADE TL EM FUNÇÃO DA CONCENTRAÇÃO DE DOPANTES	39
5.5. CARACTERÍSTICAS TL DOS DOSÍMETROS EXTRUDADOS (TLD-100)	43
5.6. CARACTERÍSTICAS TL DAS PASTILHAS PRODUZIDAS	46
5.7. COMPARAÇÃO ENTRE AS SENSIBILIDADES TL DAS PASTILHAS E DOS TLD-100 EXTRUDADOS	52
5.8. REUTILIZAÇÃO DAS PASTILHAS SINTERIZADAS	54
6. CONCLUSÕES	55
7. SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS	56
8. BIBLIOGRAFIA	57
9. APÊNDICE	60
9.1. COMPARAÇÃO ENTRE AS CARACTERÍSTICAS TL DO LiF TLD E PTL	60
9.2. DOSÍMETROS SINTERIZADOS DE LiF	64
9.3. ALGUMAS APLICAÇÕES DOS DOSÍMETROS DE LiF	65
9.4. ALGUMAS DEFINIÇÕES BÁSICAS, UNIDADES E NORMAS EMPREGA- DAS NA DOSIMETRIA DE RADIAÇÕES	70

1. INTRODUÇÃO

Muitos dos problemas dosimétricos relacionados ao emprego da radiação com fins terapêuticos puderam ser solucionados com o uso da dosimetria termoluminescente (TLD). As principais vantagens dos dosímetros termoluminescentes residem nas suas dimensões reduzidas e extensa faixa de medida de doses, permitindo realizar medidas diretas sob condições impraticáveis para outras formas de dosímetros.

O LiF é um material amplamente utilizado na dosimetria termoluminescente (TL), sendo empregado para medidas de doses em radioterapias, radiodiagnósticos, dosimetria pessoal, monitoração ambiental, dosimetria de neutrons, medida da qualidade da radiação e outras aplicações, pois apresenta um bom compromisso entre as diferentes qualidades exigidas de um dosímetro (Requisitos de Schulman). Como dosímetros comerciais destacam-se os produzidos pela Harshaw, com os nomes TLD-100, TLD-600 e TLD-700, entretanto a sua utilização é muito dispendiosa, pois é produzido fora do Brasil a um alto custo, o que reforça a necessidade de obtenção de um dosímetro desse fósforo produzido em nosso país.

Em vista disso procurou-se obter pó de LiF dopado com diferentes concentrações de impurezas, mas o manuseio, a perda de pó e o tempo consumido são inconvenientes, especialmente para o trabalho de rotina. Este fato influenciou para que métodos de preparação de dosímetros na forma sólida fossem elaborados, tais como o LiF extrudado produzido pela Harshaw (3), a mistura de LiF-Teflon desenvolvida por Bjärngard (1) e o LiF sinterizado estudado por Niewiadonski (11).

Em nosso laboratório procuramos desenvolver a técnica de obtenção do dosímetro na forma sólida, compactando-se LiF a frio com posterior sinterização. Esse método é menos complicado e mais barato que o LiF extrudado, fornecendo ainda uma boa uniformidade na produção dos dosímetros.

O presente trabalho tem como objetivos desenvolver a técnica de produção de dosímetros sinterizados de LiF, e estudar suas propriedades termoluminescentes (TL) comparando-as com as propriedades dos dosímetros extrudados e examinando a possibilidade de em

pregar as pastilhas sinterizadas na dosimetria pessoal. Para confec_çionar as pastilhas foi preciso fazer um estudo da obtenção de cristais de LiF dopado com v_árias concentrações de impurezas, pois o po proveniente da trituração do cristal dopado, serviu como material b_ásico para produzir os dosímetros sinterizados.

Na pr_ática, o trabalho limitou-se a investigar poucas conçentrações de impurezas, alguns tempos e temperaturas de sinterização envolvidos, bem como propriedades termoluminescentes resultantes, pelo fato da limitação em equipamentos, nem sempre muito adequados para o trabalho, resultando um tempo para produzir os lotes de pastilhas relativamente longo.

Não foi feito um estudo teor_íco quantitativo relacionando os resultados obtidos com os dos modelos matem_áticos existentes, devido a limitação tanto dos modelos como dos metodos de mediças disponíveis dos nossos dosímetros. Limitamo-nos, no terceiro capítulo, a descrever alguns aspectos teor_ícos relacionados com as característícas dos dosímetros de LiF.

A metodologia experimental usada e os resultados com conçlusões, são descritos neste trabalho. Alem disso são tambem apresentadas as principais propriedades que caracterizam um material como termoluminescente, bem como um estudo das característícas do LiF para esse fim.

No apêndice apresentamos, resumidamente, alguns artigos ençontrados na literatura relacionados com o estudo que desenvolvemos, bem como algumas definições b_ásicas empregadas na dosimetria de radiações, isso foi feito com o objetivo de complementar o nosso trabalho, apresentando um estudo condensado do LiF sinterizado como do símetro termoluminescente.

2. O FENÔMENO TERMOLUMINESCENTE (TL)

É possível se observar uma emissão de luz por parte de alguns minerais, tais como algumas fluoritas e pedras calcárias, quando aquecidas em ambiente escuro. Em 1663, Robert Boyle já havia observado o fenômeno da termoluminescência (TL) ao aquecer um diamante. A termoluminescência já era um fenômeno conhecido mesmo pelos alquimistas medievais, mas o seu uso na dosimetria de radiações é um fato recente.

Daniels (4) foi o primeiro a propor o uso de materiais termoluminescentes (TL) como dosímetros para radiação, tendo inclusive, juntamente com seu grupo de pesquisas desenvolvido instrumentos para esse propósito. As primeiras aplicações da TL na dosimetria foram feitas por Daniels e seus colaboradores no início dos anos 50, quando fluoreto de lítio (LiF) foi usado para medir os níveis de radiação após um teste nuclear. Em 1953 Daniels e Brucer utilizaram LiF para dosimetria "in vivo". Um paciente após ter recebido uma dose terapêutica de iodo radioativo (^{131}I) engoliu um pequeno cristal de fluoreto de lítio. O cristal foi recuperado após passar através do aparelho digestivo do paciente e sua TL foi medida para determinar a dose de radiação recebida. Os trabalhos de Daniels em dosimetria termoluminescente (TL) foram interrompidos em 1955. Entretanto este trabalho foi retomado em 1960 na Universidade de Wisconsin por J. R. Cameron, em colaboração com Daniels e N. M. Johnson.

As características TL do LiF foram estudadas, extensivamente, por vários pesquisadores, destacando-se o grupo de Cameron, que em colaboração com a Harshaw Chemical & Co desenvolveu dosímetros de fluoreto de lítio (LiF) dopado com magnésio (Mg) e titânio (Ti) de modo que seja termoluminescente (TL) no grau máximo, pois o LiF na sua forma mais pura é relativamente pouco TL. A presença de impurezas, especificamente magnésio e titânio, parece ser necessária para que a termoluminescência seja induzida pela radiação.

Entendemos por termoluminescência (TL) ao fenômeno pelo qual cristais iônicos emitem luz quando aquecidos, tendo sido previamente irradiados com qualquer tipo de radiação ionizante.

Ainda não existe uma teoria que explique completamente o fenômeno TL, mas há um modelo qualitativo que o tenta explicar, levando em conta a existência de impurezas e defeitos na rede cristalina.

2.1. MODELO QUALITATIVO DO PROCESSO TERMOLUMINESCENTE

Existe um modelo em estado sólido que distribui os estados possíveis de energia dos elétrons num cristal em duas faixas: uma correspondente a estados ligados dos elétrons aos íons da rede (banda de valência) e outra, a estados em que os elétrons podem mover-se livremente pelo cristal (banda de condução). Entre essas duas faixas encontra-se um intervalo de valores de energia que não podem ser assumidos pelos elétrons na rede, que é a banda proibida.

A ocorrência de impurezas e a existência de defeitos no cristal introduzem estados energéticos localizados na banda proibida, cujas transições eletrônicas podem ser opticamente detetadas em virtude do aparecimento de bandas de absorção na região espectral normalmente transparente.

Embora não exista ainda uma teoria que explique completamente a TL, há um modelo simples, qualitativo que o faz levando em conta a existência de defeitos e impurezas nos cristais iônicos. Quando um fósforo TL é exposto à radiação ionizante, por definição, alguns elétrons são liberados da banda de valência e atingem a de condução, deixando lacunas na banda de valência. Nesse estado, tanto elétrons como lacunas são livres e movem-se pelo cristal até se recombinarem ou serem capturados em estados metaestáveis, criados por vacâncias ou impurezas. Esses estados metaestáveis, chamados "armadilhas", se localizam na banda proibida. Os elétrons capturados permanecem nessas armadilhas, até que rece

com energia suficiente para serem liberados. Uma vez livres, os elétrons podem ser recapturados pelas armadilhas ou, então, sofrer uma recombinação com uma lacuna, ocasionando a emissão de luz. O mesmo mecanismo é válido para uma lacuna, caso ela seja capturada por uma armadilha e, posteriormente liberada (2,14). O modelo pode ser visto na figura 1, onde é mostrado um esquema do diagrama dos níveis de energia de um cristal que apresenta o fenômeno termoluminescente.

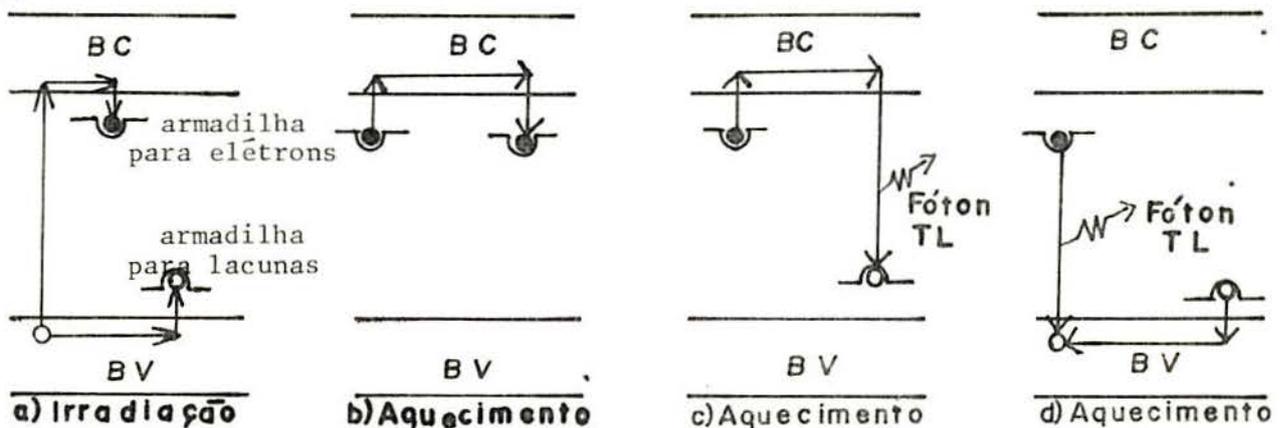


FIGURA 1 - Esquema do diagrama de níveis de energia de um cristal o qual apresenta o fenômeno termoluminescente devido a irradiação. (Cameron et al., 1968) (2)

Na figura 1.a, o fósforo TL é exposto à radiação ionizante, alguns elétrons são liberados da banda de valência e atingem a de condução, deixando lacunas na primeira. Os elétrons e lacunas (buracos) livres movem-se pelo cristal até se recombinarem ou serem capturados em armadilhas. Na figura 1.b, o fósforo quando aquecido, os elétrons capturados nas armadilhas recebem energia suficiente para serem liberados, atingindo a banda de condução, mas esses elétrons livres são novamente capturados pelas armadilhas para elétrons. Na figura 1.c, os elétrons capturados recebem energia tornando-se livres, e se recombinam com lacunas, podendo emitir luz. Na figura 1.d, as lacunas capturadas tornam-se livres, se recombinam com os elétrons

podendo emitir luz.

Para que o elétron seja liberado de sua armadilha é necessário que ele receba, pelo menos, uma energia, conhecida como profundidade de armadilha. Esta energia é recebida por interação de fônons provenientes de estimulação térmica, quando do aquecimento do cristal. Aquecendo o cristal a temperaturas suficientemente altas (em torno de 400°C), ocorre o esvaziamento das armadilhas, ficando o cristal apto a detectar nova radiação.

Para que um cristal seja utilizado na detecção de radiações, este deve possuir algumas propriedades que o caracterizem como termoluminescente.

2.2. CARACTERIZAÇÃO DE UM MATERIAL TERMOLUMINESCENTE PARA FINS DOSIMÉTRICOS

Existem muitos fósforos disponíveis que exibem o fenômeno da TL. O problema em dosimetria termoluminescente não é encontrar um fósforo que possua TL, mas selecionar o mais apropriado, ou seja, aquele que apresente um bom compromisso entre as diferentes qualidades exigidas de um dosímetro, que são determinadas a partir de uma análise da curva de emissão, da estabilidade do fósforo, da curva de resposta à exposição, da dependência energética da radiação e de outros fatores.

2.2.1. Curva de emissão

A medida que o fósforo TL se aquece, este emite luz, que é transformada em corrente elétrica pela válvula fotomultiplicadora, corrente esta que é amplificada e registrada. A intensidade de luz emitida em função da temperatura ou tempo durante o qual o fósforo é aquecido nos dá uma curva a qual chama-se curva de emissão.

A curva de emissão de um fósforo é provavelmente a sua melhor característica. Se ocorrer picos somente a baixas temperaturas, implica que o fósforo perde sua TL armazenada com o tempo, tornando-se inconveniente para medidas a longo tempo. Se os picos aparecerem em temperaturas muito elevadas, ocorre problemas para a instrumentação, devido a produção de radiação infravermelha. O ideal seria um fósforo que apresenta-se um único pico a uma tempe

ratura suficientemente alta (em torno de 200°C) que assegura-se a estabilidade a temperatura ambiente, mas não tão alta (acima de 400°C) que pudesse ocasionar problemas com a instrumentação.

2.2.2. Sensibilidade e limite de dose

Sensibilidade é definida como sendo a quantidade de luz emitida pelo fósforo por unidade de exposição à radiação:

$$S = TL/X \quad \text{onde: TL= luz termoluminescente}$$

$$X= \text{exposição em Roentgens.}$$

O limite inferior de sensibilidade útil depende do aparelho leitor e das características do fósforo, enquanto que o limite superior, geralmente só depende do fósforo.

Os limites de doses seriam:

- (a) leitura de dose nula - se a amostra não receber nenhuma dose de radiação ionizante desde a sua última leitura, algum sinal irá aparecer. Isto pode ser devido a:
- triboluminescência e quimioluminescência
 - detetor estimulado por luz visível ou ultravioleta
 - flutuação da corrente de escuro na fotomultiplicadora
 - emissão infravermelha do elemento aquecido
 - sinal residual devido a exposição anterior.
- (b) limite inferior - para uma certa combinação entre o dispositivo de leitura e o material TL, o limite inferior de detecção é determinado essencialmente pela variabilidade do sinal obtido por leitura de dosímetros não irradiados. O limiar de detecção, o qual é definido como a menor dose que pode ser distinguida significativamente de uma dose nula (com um nível de confiança de 95%), é aproximadamente 1,5 vezes o desvio padrão da leitura de dose nula, expressa em unidades de dose absorvida. Convém enfatizar que a incerteza de uma dose, na região limiar de detecção pode ser da ordem de 100% (16).
- (c) limite superior - o limite superior de dose é governado pelos efeitos de saturação no cristal, e é geralmente tomado como 20% abaixo do valor dessa saturação (16). Devido ao efeito dos danos devido à radiação, o LiF apresenta uma redução na sensibi-

lidade depois de exposto a doses superiores a 10 Gy (1000 Rads) (16).

2.2.3. Estabilidade

Se o fósforo apresentar uma perda TL a temperatura ambiente, menor ou igual a 10% ao ano, diz-se que ele apresenta boa estabilidade (14). Em geral, um dos picos da curva de emissão é de baixa temperatura, instável a temperatura ambiente, mas com a remoção deste pico mediante tratamento térmico, a termoluminescência restante pode apresentar boa estabilidade.

2.2.4. Curva de resposta à exposição - supralinearidade

Se a relação entre a resposta termoluminescente de um fósforo e a exposição for linear para um amplo limite de dose, o seu uso como dosímetro é simplificado. Caso contrário, é necessário utilizar-se da curva de calibração, que deve ser obtida detalhadamente.

Acima de um certo limite de dose, a emissão TL é mais que proporcional à exposição, a isto se chama supralinearidade.

2.2.5. Dependência com a taxa de exposição ou taxa de dose

Os dosímetros TL, em geral, não dependem da taxa de dose sobre um amplo limite de exposição, o que já não ocorre com muitos detetores de radiação que mostram uma mudança na resposta em função da taxa de exposição.

2.2.6. Dependência com a energia da radiação

Para energias de fótons abaixo de 100 KeV, o processo de absorção fotoelétrica é predominante. Esta interação que envolve os elétrons da camada interna do átomo, depende da carga nuclear, ou seja, do número atômico Z. Para fósforos com Z alto, o número de elétrons liberados pelo efeito fotoelétrico aumenta para fótons de baixa energia e, como a absorção de energia da radiação esta relacionada com a liberação de elétrons da banda de valência, esta será maior para fótons de baixa energia.

Em termos de dosimetria TL é conveniente utilizar-se um material cuja resposta à exposição praticamente não apresente mudança com a energia do fóton. O ideal seria um fósforo que não apresentasse dependência com a energia, o mais indicado para monitoração pessoal é aquele cujo Z efetivo seja equivalente ao do tecido humano, embora esse problema possa ser solucionado com a utilização de filtros adequados.

2.2.7. Reutilização

Os fósforos termoluminescentes são inerentemente reutilizáveis, contudo, a constância das propriedades dosimétricas é frequentemente uma função de sua história térmica e de irradiação. Para obter resultados reproduzíveis, os fósforos requerem um tratamento térmico especial antes de serem novamente utilizados, a este tratamento chamamos aquecimento pré-irradiação.

O propósito desse tratamento é:

- extinguir a informação anterior
- conseguir uma sensibilidade reproduzível
- restaurar a curva de emissão
- conseguir a estabilidade dos detetores.

2.3. REQUISITOS DE SCHULMAN

Sabe-se que muitos compostos inorgânicos possuem propriedades TL. Entretanto, um fósforo TL só pode ser utilizado como dosímetro se combinar certas propriedades específicas. Esta exigência limita bastante o número destes materiais possíveis de emprego na dosimetria das radiações.

Para que um fósforo possa ser útil na dosimetria de radiações, deve apresentar as seguintes características (Requisitos de Schulman) (6):

- (1) uma concentração ótima de armadilhas de elétrons ou lacunas, levando-se em conta o efeito de inibição por concentração;
- (2) uma eficiência alta na emissão de luz associada a processos de recombinação;
- (3) armazenamento estável dos elétrons ou lacunas na temperatura em que o material vai ser utilizado;

- (4) um espectro de emissão TL para o qual o sistema detetor (com binação fotomultiplicadora e filtro) responda eficientemente e cuja interferência com a emissão incandescente (infravermelha) do material aquecido seja a menor possível. Desta forma, comprimentos de onda entre 300 e 600 nm são os mais desejáveis, a menos que sistemas sensíveis a ultravioleta sejam utilizados;
- (5) uma distribuição simples de armadilhas, de preferência que consista numa curva de emissão com um único pico, para maior simplicidade de operação e interpretação da leitura;
- (6) resistência a diversos fatores ambientais, potencialmente perturbadores, tais como luz, umidade, gases, etc.;
- (7) baixa dependência com a energia dos fótons e resposta linear num amplo intervalo de doses;
- (8) alta ou baixa sensibilidade a neutrons térmicos, dependendo do uso a que se destina;
- (9) baixo custo.

3. FUNDAMENTOS TEÓRICOS

O fluoreto de lítio (LiF) é um dos fósforos mais comumente utilizado em dosimetria termoluminescente, pois apresenta um bom compromisso entre as diferentes qualidades exigidas de um dosímetro. Atualmente destacam-se os dosímetros de LiF produzidos pela Harshaw sob as denominações TLD-100, TLD-600 e TLD-700, o primeiro contendo lítio na sua composição isotópica natural, e os dois últimos indicando que ^6Li e ^7Li aparecem, respectivamente, com 95,6% e 99,99% (2).

Devido as suas amplas aplicações e como o LiF é produzido fora de nosso país a um alto custo, fomos incentivados a utilizá-lo como objeto de pesquisa. A seguir apresentaremos um breve estudo sobre as características do LiF como material TL, bem como os tratamentos térmicos a que é submetido e a sua influência na sensibilidade e altura de picos, e a importância das impurezas no processo termoluminescente desse fósforo.

3.1. CARACTERIZAÇÃO DO FLUORETO DE LÍTIO COMO MATERIAL TERMOLUMINESCENTE.

Vamos aqui considerar as principais características que qualificam o LiF como material TL, fazendo um breve estudo da: curva de emissão, sensibilidade e limite de dose, estabilidade, curva de resposta à exposição, dependência com a taxa de exposição, dependência com a energia da radiação e da reutilização do LiF.

3.1.1. Curva de emissão

A curva de emissão do LiF é complicada devido a sua dinâmica complexa de armadilhas, como pode ser vista na figura 2. A curva apresenta cinco picos principais localizados, aproximadamente a temperaturas de 65°C, 120°C, 160°C, 195°C e 210°C. Ocorre ainda a existência de um sexto pico no espectro do LiF, cujo máximo corresponde a uma temperatura de 275°C, tal pico aparece quando o fósforo é exposto a doses de radiação relativamente altas (em média 1 Gy=100 Rads)⁺. O pico principal normalmente utilizado em dosimetria, devido a sua grande estabilidade, é o pico 5 cujo máximo corresponde a temperatura de 210°C (8, 13).

⁺Ver anêndico 9 4

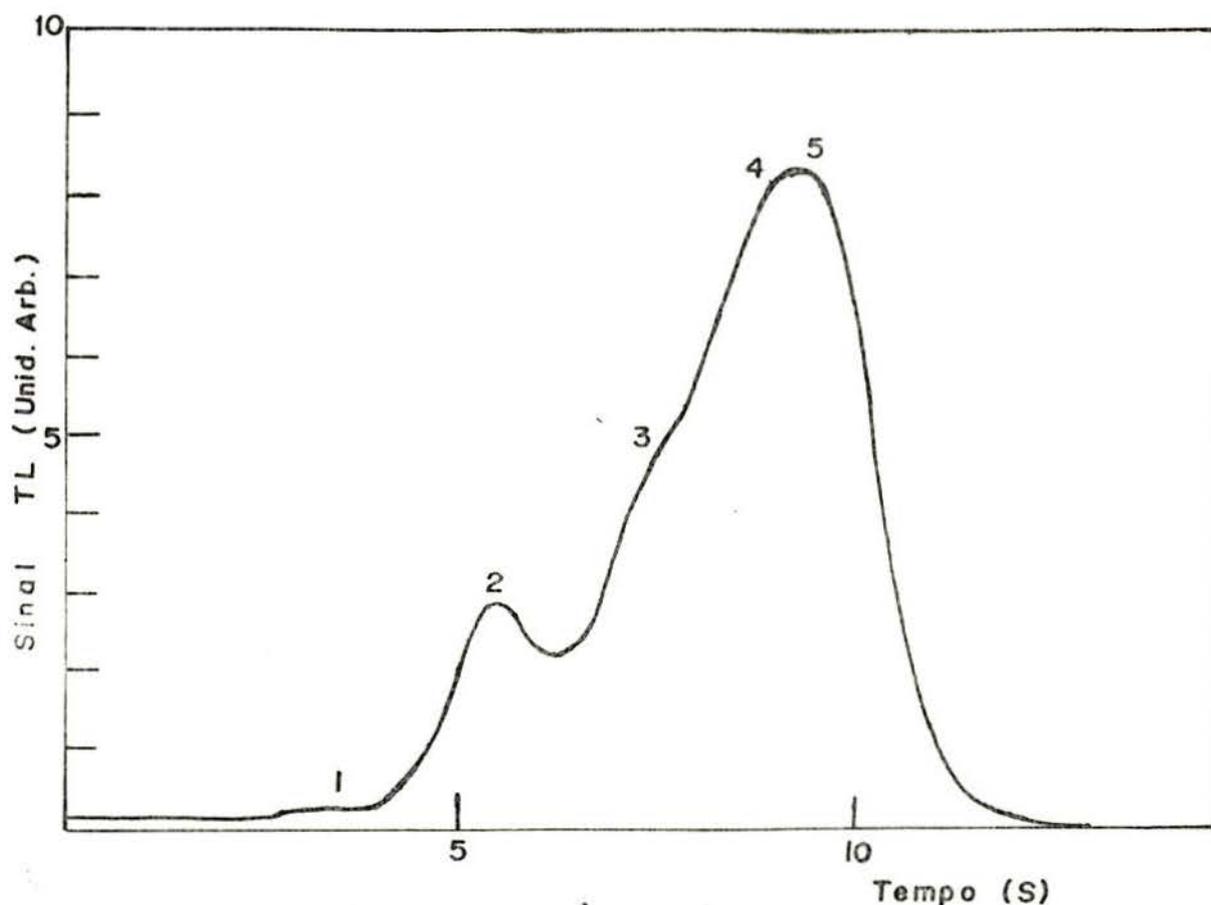


FIGURA 2 - Curva de emissão do LiF não submetido ao tratamento térmico padrão de recozimento e irradiado com raios gama.

3.1.2. Sensibilidade e limite de dose

A sensibilidade de dosímetros de LiF (TLD-100) é tal que 50 mg desse material irradiado com 1R (258 $\mu\text{C}/\text{Kg}$) emitem luz que pode ser detetado pelo olho humano. Uma válvula fotomultiplicadora, de alta sensibilidade, pode detetar luz TL correspondente a 1 mR (2).

É possível aumentar a sensibilidade do LiF pela aplicação de exposições elevadas (maior que 10R) e após aquecê-lo a temperaturas próximas de 300°C. Por exemplo, o LiF exposto a 10R e submetido a um tratamento térmico durante 30 minutos a 280°C torna-se, aproximadamente, seis vezes mais sensível. A regeneração térmica do fósforo destrói os efeitos desta técnica. Para exposições da ordem de 1R a técnica de sensibilização descrita não re-

sulta em vantagem, pois o aquecimento próximo de 300°C deixa alguns centros termicamente estáveis intactos e estes centros interferem nas medidas de pequenas doses.

O LiF quando exposto a doses elevadas (maiores que 10^4 Gy) apresenta uma perda irreversível na sensibilidade, devido a danos de radiação em sua rede cristalina.

Quanto aos limites de dose, a menor dose detetável depende da forma física do dosímetro e do aparelho leitor. Para dosímetros TLD-100, na forma de pó ou extrudado, o limiar está geralmente entre 50 a 100 uGy para irradiações com fonte de Co^{60} e usando uma leitora comercial. A magnitude do intervalo de doses em que o LiF pode ser empregado é da ordem de 10^{-2} a 10^4 Rads (100 uGy a 100 Gy) (16).

3.1.3. Estabilidade

O LiF é um material termoluminescente que não apresenta um desvanecimento térmico pronunciado. Logo após a irradiação há uma pequena perda de resposta, após a qual estabiliza, apresentando desvanecimento desprezível. A taxa de desvanecimento dos máximos de emissão varia em função da temperatura dos mesmos, sendo mais pronunciada para os picos de menor temperaturas. No caso do LiF, a altura relativa dos picos, após a irradiação, é altamente dependente do tratamento térmico dado ao material antes deste ser irradiado. Se o dosímetro for convenientemente recozido pode ser eliminado os picos de baixas temperaturas e com isto diminuir a perda de resposta do material.

O tratamento térmico padrão dado ao LiF para eliminar os picos de baixas temperaturas é 1 hora a 400°C e resfriado rapidamente, após é submetido a 80°C por 24 horas ininterruptas. A figura 3 mostra a curva de emissão do LiF após ser submetido a esse tratamento.

3.1.4. Curva de resposta à exposição - Supralinearidade

A região de resposta linear para o LiF é pouco reduzida, estando limitada em média a 300R (3Gy) e às vezes chega a 100Rads (1Gy) se os aparelhos de medidas forem incapazes de eliminar a in

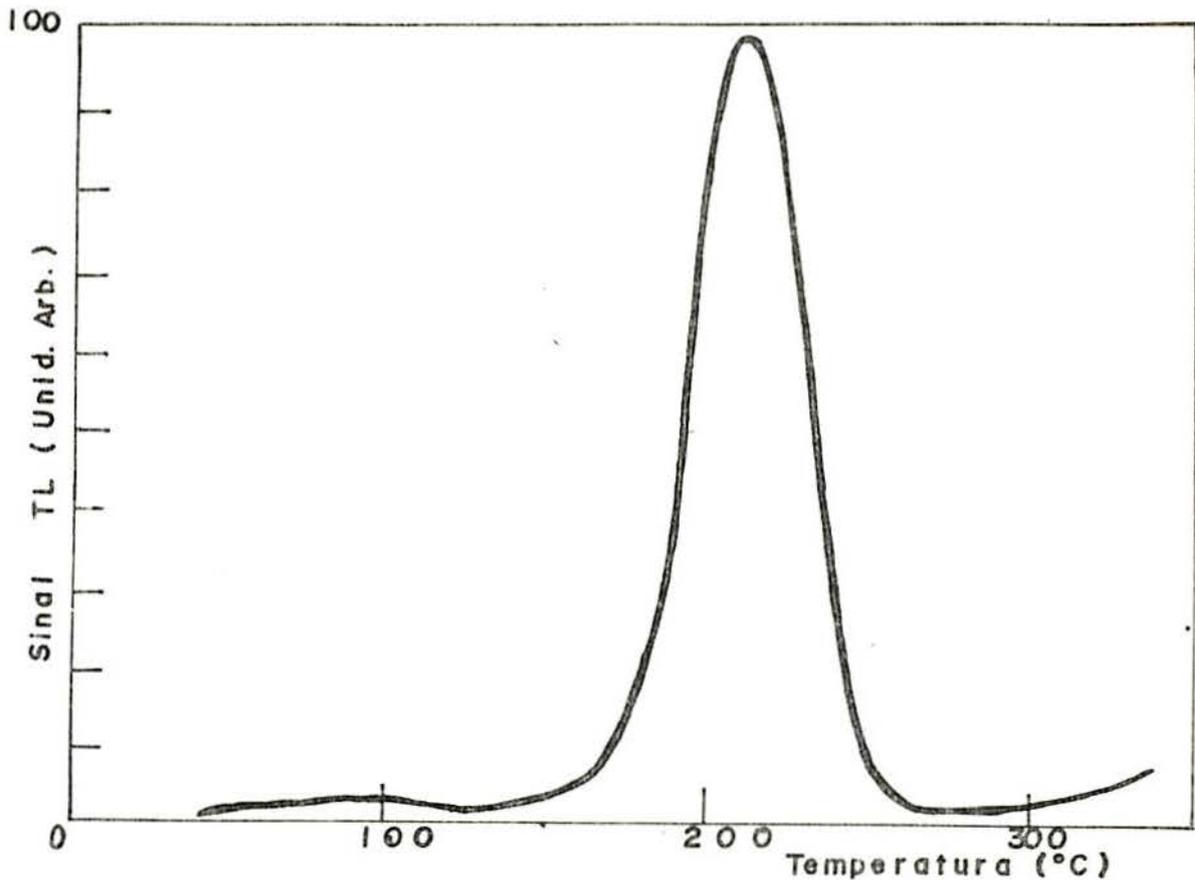


FIGURA 3 - Curva de emissão do LiF após sofrer o tratamento térmico padrão de recozimento e então ser submetido à radiação gama.

fluência do sexto pico deste fósforo. Se o LiF for pré-irradiado com uma dose de 10^4 Rads sua sensibilidade aumenta e sua linearidade estende-se até 10^4 Rads, mas a regeneração térmica destrói o efeito desse tratamento.

Em geral, considera-se que a curva de resposta TL em função da exposição é linear até cerca de 10^3 R, torna-se supra-linear até cerca de 10^5 R, onde entra na região do plateau, decrescendo para exposições superiores a 10^6 R.

3.1.5. Dependência com a taxa de exposição

Para fins de proteção radiológica, a dependência com a taxa de dose ou exposição dos materiais TL pode ser considerada insignificante. A resposta do LiF é independente da taxa de dose até cerca de 10^{11} Rads/segundo (10^9 Gy/segundo).

3.1.6. Dependência com a energia da radiação

O número atômico efetivo (Z_{ef}) do LiF é aproximadamente 8,2, comparado com o do tecido humano que é 7,4, para a maioria das aplicações ele pode ser considerado aproximadamente como equivalente ao tecido, assim sendo, uma das vantagens desse material reside no fato de que a dependência com a energia das radiações é pequena (9).

3.1.7. Reutilização

O LiF pode ser usado e reusado um grande número de vezes. Para a dosimetria de rotina, com um recozimento padrão de 400 °C, o número máximo de reuso recomendado é de 50 vezes (Wald et al. 1977) (17), pois a sensibilidade TL é afetada pelos recozimentos repetidos aos quais o fósforo é submetido após cada ciclo de uso.

Para utilizar-se novamente os dosímetros, após 50 ciclos de reuso, é recomendado fazer uma nova calibração do sistema.

3.2. TRATAMENTOS TÉRMICOS

Zimmerman (19) e seus colaboradores estudaram dosímetros de LiF pré-recozidos a diferentes temperaturas. Eles encontraram que as alturas absolutas e relativas dos picos podem ser alteradas se os dosímetros forem recozidos a determinadas temperaturas. Desde que o recozimento seja efetuado antes da irradiação, essas mudanças não são causadas pela liberação de elétrons de suas armadilhas, mas deve representar ou uma alteração no número de armadilhas relacionada a determinado pico (eficiência de armadilha) ou uma alteração na eficiência da conversão de elétrons armadilhados para fótons.

Daniels e Rieman (5) observaram que a temperatura ótima para o recozimento inicial e para o recozimento antes do reuso do LiF é aproximadamente 400 °C. O recozimento inicial aumenta a sensibilidade por um fator de 4 ou 5.

O pré-recozimento e a taxa de resfriamento recomendado, para o LiF:Mg,Ti é uma (1) hora a 400 °C seguida de 24 horas a 80 °C com um tempo de resfriamento de 400 °C à temperatura ambiente de 10 a 20 minutos. Convém salientar que para temperaturas inferior-

res a 1450°C a taxa de resfriamento não afeta a curva de emissão. É usada a temperatura de 400°C porque a curva de emissão é completamente restaurada a sua forma e altura original após qualquer pré-recozimento a temperaturas inferiores a ela. Um recozimento a 80°C por 24 horas elimina praticamente os picos 1, 2 e 3 de baixas temperaturas, sendo que os picos 4 e 5 sofrem uma redução na altura em torno de 5%.

3.3. PROCESSO TERMOLUMINESCENTE NO FLUORETO DE LÍTIO

Vários pesquisadores tentaram mostrar a relação existente entre determinado pico de emissão e a armadilha a ele associado, mas ainda não existe um modelo completamente satisfatório, sendo que nos últimos anos tem sido feito um progresso considerável no estudo do comportamento do LiF como fósforo termoluminescente. Sabe-se que o LiF na forma mais pura é muito pouco TL, determinando-se que as impurezas tem uma importância fundamental na criação de armadilhas. A impureza necessária para produzir alta termoluminescência é o Magnésio (Mg), se a quantidade de Mg for menor que 1 ppm, o fósforo não é TL. Trabalhos mais recentes mostram que o Titânio (Ti) é essencial para produzir altas sensibilidades.

Grant e Cameron (7), usando medidas dielétricas, mostraram que as armadilhas responsáveis pelo pico 2 é devido a criação de vacâncias de dipolos produzidos pelo Mg. Nesse trabalho, foi encontrado que a concentração de dipolos era diretamente proporcional a altura do pico 2.

Watanabe (18) investigando as intensidades dos picos 2, 3 e 5 do LiF após recozido a temperaturas entre 60 e 360°C, mostrou que o pico 2 apresenta um máximo depois de recozido a 240°C. Resultados de medidas de condutividade iônica (15) mostram que o dipolo é o defeito predominante no equilíbrio entre 240 e 450°C: e a máxima concentração de dipolos poderia estar presente em torno de 240°C. Isso indica uma correlação entre a concentração de dipolos e o pico 2.

Estudos do comportamento ótico e medidas dielétricas indicam que o pico 3 apresenta comportamento similar ao pico 2, levando a conclusão que os centros de armadilhas responsáveis por esses picos estão relacionados entre si (15).

Stoebe e Watanabe (15) seguindo resultados de medidas de condutividade iônica em amostras recozidas a diferentes temperaturas, sugeriram a hipótese que o agrupamento de dois dipolos (dimer) são responsáveis pelas armadilhas que correspondem ao pico 5, só que tal relação não é direta (como também é o caso para as relações entre o pico 2 e dipolos), e que outros fatores devem ser considerados na identificação exata dos defeitos responsáveis por essas armadilhas.

3.3.1. A Importância dos Íons Magnésio (Mg)

Os íons Mg formam armadilhas para elétrons combinado com certos centros de defeitos na rede. O íon magnésio divalente (Mg^{2+}) é introduzido dentro da rede cristalina que consiste de íons monovalentes de lítio (Li^+) e fluor (F^-). A substituição do íon Li^+ pelo íon Mg^{2+} resulta em um excesso de cargas positiva no sítio da rede. A atração Coulombiana resulta na formação de dipolos que consiste de um íon substitucional Mg^{2+} em combinação com a vacância de um íon Li^+ . Acredita-se que sob determinadas condições térmicas, os dipolos agregam-se formando dimers, trimers e complexos de ordens superiores. Existe evidência, conforme mencionado anteriormente, que a disposição de um simples dipolo está associado com centros de armadilhas para elétrons, responsáveis pelos picos 2 e 3 de baixas temperaturas. Os complexos de dipolos estão associados com os picos principais para a dosimetria, ou seja, os picos 4 e 5. A agregação de dipolos simples para formar complexos é criticamente dependente da temperatura e taxas de aquecimento e resfriamento.

3.3.2. A Importância dos Íons Titânio e Hidróxis

A presença de titânio combinado com íons hidróxis (OH^-) é um pré-requisito para a eficiente emissão TL no LiF. Todos os materiais cristalinos crescidos pelo método de solidificação no ar contêm íons OH em concentrações de várias dezenas de ppm. A sensibilidade TL do LiF:Mg,Ti aumenta com um aumento na concentração de íons Ti presentes, alcançando um máximo quando a concentração atinge 7 ppm e então começa a decrescer (15). Onde altas concentrações de Ti existem, a sensibilidade TL parece ser controlada pe-

la baixa concentração de íons OH e vice-versa. Resultados de experimentos da condutividade iônica indicam que Ti pode estar presente no estado divalente Ti^{2+} , possivelmente formando vacâncias de dipolos $Ti^{2+} - Li^+$ como no caso do Mg^{2+} .

4. PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

Para desenvolvermos a técnica de compactação e sinterização do LiF obtendo-se pastilhas resistentes ao manuseio e estudar a viabilidade de empregá-las como dosímetro pessoal, o seguinte procedimento experimental se fez necessário:

- (1) dopagem das amostras - a dopagem constitui em substituir átomos que formam a rede cristalina normal, por átomos de impurezas. Para isso tentou-se duas técnicas de crescimento de cristais, as quais são descritas neste capítulo.
- (2) compactação e sinterização do pó - para evitar a perda de pó, tornar as pastilhas resistentes ao manuseio e transparentes à luz, as amostras são compactadas e sinterizadas, utilizando-se como material básico o pó proveniente da trituração dos cristais dopados.
- (3) irradiação e leitura das pastilhas - as pastilhas sinterizadas, são submetidas a diferentes doses de radiação, juntamente com os TLD-100. Após irradiados, os dosímetros (pastilhas e TLD-100) são lidos e algumas características TL são determinadas, sendo feita uma comparação entre as pastilhas produzidas e os dosímetros TLD-100, tendo como objetivo examinar a possibilidade de empregar as pastilhas na dosimetria pessoal.

A seguir apresentaremos o procedimento experimental utilizado no presente trabalho.

4.1. DOPAGEM DAS AMOSTRAS

Para a dopagem dos cristais tentamos utilizar duas técnicas: a técnica da evaporação e a de solidificação.

4.1.1. Método da Evaporação

Nesta técnica o solvente utilizado foi ácido fluorídrico industrial (38-40%), mas o LiF apresentou baixa solubilidade e com isso não conseguimos produzir os cristais desejados, de modo que a técnica foi abandonada em vista de não poder-se utilizar outros ácidos sob pena de contaminar o LiF. Devido a tais dificuldades optamos pelo método de solidificação.

4.1.2. Método de Solidificação

Esta técnica consiste na fusão de pó de LiF juntamente com o material dopante, seguido de resfriamento lento da massa fundida.

Utilizando esta técnica conseguimos obter cristais de LiF dopados, mas para obter um produto final o mais puro possível, diversos problemas relacionados com o ataque corrosivo do LiF durante a fusão tiveram que ser solucionados, tais como: escolha do cadinho adequado, atmosfera protetora, recipiente para conter o cadinho sob atmosfera protetora, etc.

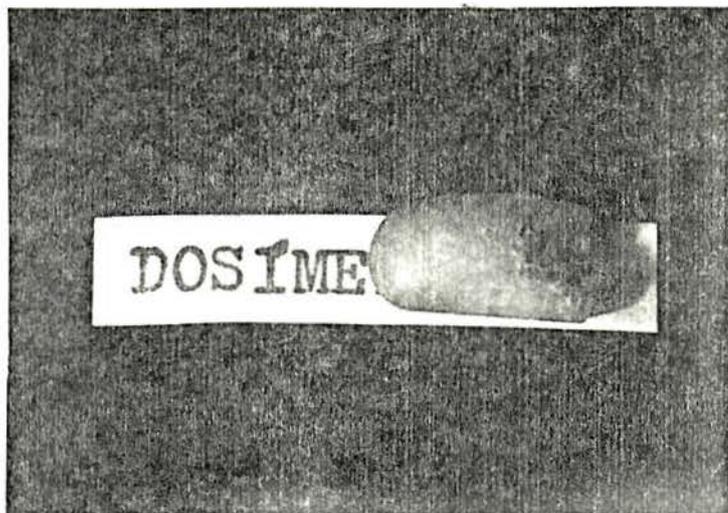
Os cadinhos testados no experimento foram: de porcelana, de óxido de ferro e silício e, grafite. Tanto os cadinhos de porcelana como os de óxido de ferro e silício foram atacados e a massa fundida de LiF ficava aderida a eles. O cadinho de grafite mostrou ser o melhor para a realização da fusão, pois mesmo não foi atacado, mas surgiu o problema da deteriorização do cadinho no ar, e com isso houve necessidade de empregar atmosfera protetora. A vantagem da atmosfera protetora está no fato de diminuir a contaminação da massa fundida e proteger o cadinho da deteriorização.

Após a escolha do cadinho e tendo necessidade de atmosfera protetora, procuramos colocar o referido cadinho dentro de tubos (recipientes para conter a atmosfera protetora), sendo que em uma das extremidades entrava gás e na outra foi adaptada uma bomba de vácuo.

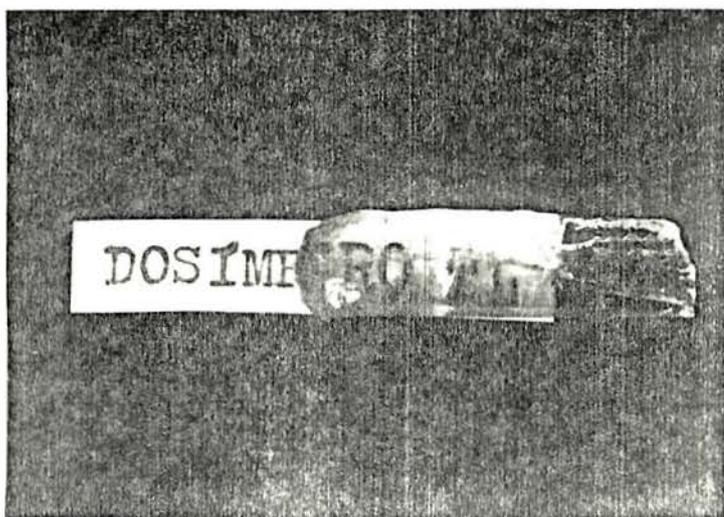
Um dos tubos testados foi de quartzo, mas os vapores provenientes da massa fundida atacava-o, corroendo o tubo rapidamente. Devido a essa forte corrosão passamos a trabalhar com aço inóx, que também foi atacado, mas a taxa de corrosão era muito menor que no quartzo. Para solucionar tal problema, o tubo de aço inóx foi revestido internamente com uma camada de grafite.

Com o uso de cadinho de grafite, tubo de aço inóx revestido com grafite e atmosfera protetora, conseguimos dopar os cristais de LiF, evitando o quanto possível os problemas de contaminação, como pode ser visto na figura 4, onde são apresentadas duas amostras, sendo a primeira fundida no ar, possuindo uma coloração leitosa-escura e a segunda fundida em atmosfera de argônio, sendo totalmente transparente à luz.

A seguir descreveremos o procedimento e os materiais empregados na obtenção dos cristais dopados por esse método.



(a) cristal opaco



(b) cristal transparente

FIGURA 4 - Cristais de LiF fundidos em atmosferas distintas e resfriados lentamente; (a) fusão no ar, (b) fusão em atmosfera de argônio.

4.1.3. Confecção das Pastilhas

Os cristais de LiF que utilizamos neste trabalho foram crescidos em nosso laboratório, utilizando-se a técnica de crescimento por solidificação.

O material empregado foi:

- LiF- "Merck para análise";
- Dopantes: NaF- "Merck para análise";
MgF₂- "Merck".

O motivo da escolha desse material foi devido ao fato de serem os únicos encontrados em nosso país, pois queríamos trabalhar também com titânio, como dopante, mas o mesmo não foi conseguido.

O LiF juntamente com os dopantes eram colocados em um cadinho de grafite, este era introduzido em um tubo de aço inóx revestido internamente por um cilindro oco de grafite. Em uma das extremidades do tubo foi adaptada uma bomba de vácuo e na outra introduzido argônio. O tubo de aço inóx, juntamente com o material para fusão era colocado dentro do forno de modo que o aquecimento ocorresse apenas na zona central onde estava a mistura para fundir, com isso evitava-se o aquecimento das conexões entre o tubo e a mangueira de gás e entre o tubo e a bomba de vácuo.

Para o controle de temperatura utilizamos dois termopares, um deles fica colocado dentro do forno e acoplado a ele esta um controlador de temperatura, o outro termopar estava colocado dentro do tubo de aço e media a temperatura do cilindro oco de grafite. O diagrama de bloco do sistema de fusão e o equipamento empregado pode ser visto na figura 5.

O fluoreto de lítio e os dopantes após serem cuidadosamente misturados eram colocados dentro do forno para fusão. De pois de obter-se uma fusão homogênea da mistura a uma temperatura aproximadamente de 1000°C, durante 3 horas, o produto era resfriado lentamente, pulverizado com tamanhos de grãos menor que 0,074 mm e fundido novamente, sofrendo um tratamento térmico idêntico ao inicial. Após esse tratamento térmico, o produto era pulverizado e os grãos graduados entre 0,177 mm a 0,074 mm, pois os cristais apresentavam melhor sensibilidade na forma de pó. Esse pó resultante era utilizado como material básico no processo de sinterização.

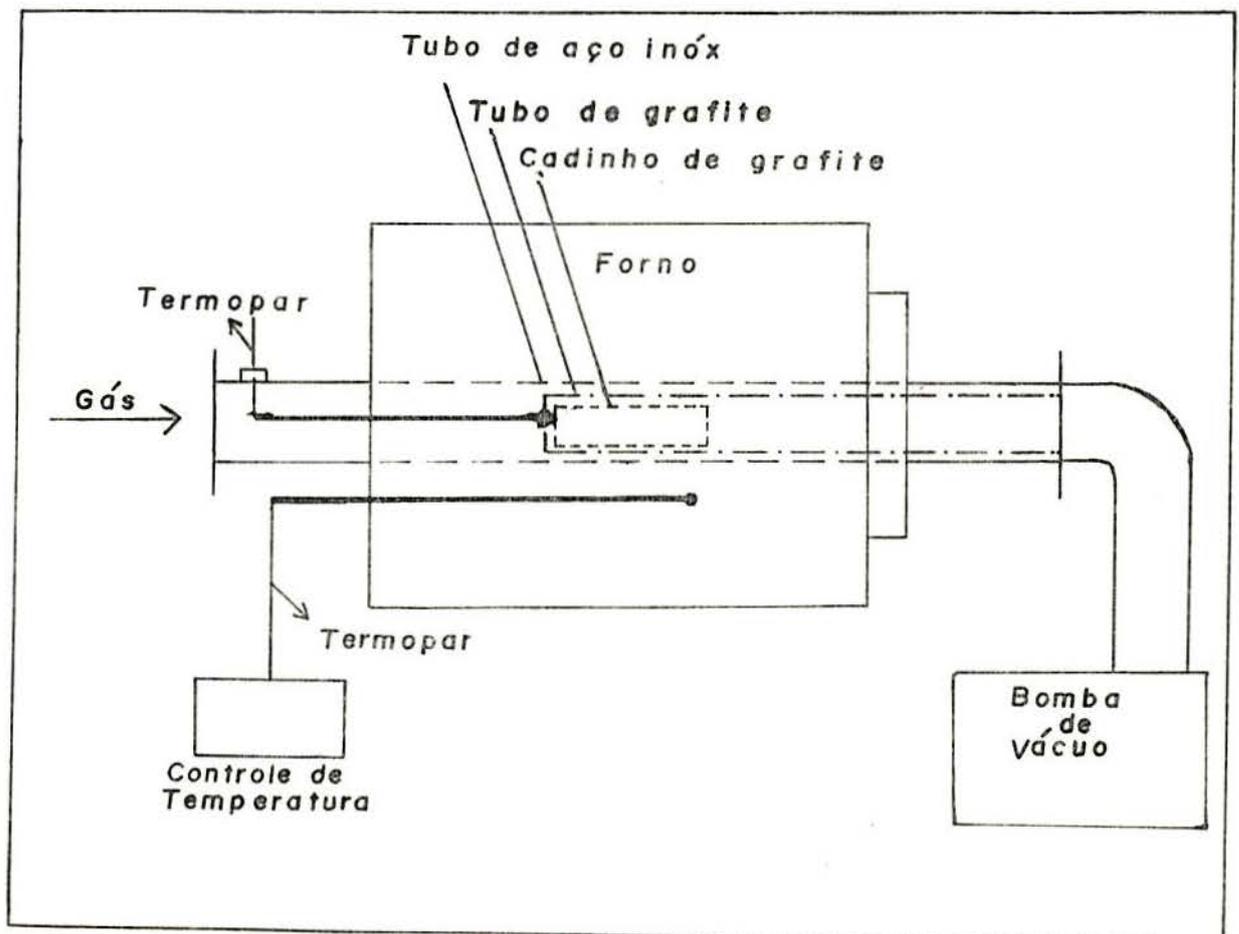
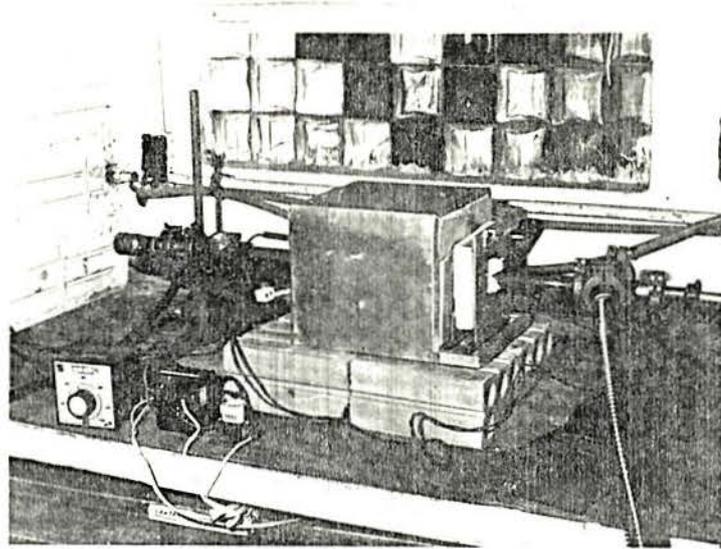


FIGURA 5 - Equipamento e diagrama de bloco do sistema empregado na fusão para obtenção de cristais dopados de LiF.

4.2. COMPACTAÇÃO E SINTERIZAÇÃO DO PÓ

Utilizamos a técnica de compactação com a finalidade de evitar a perda de pó, pois essa perda é muito inconveniente especialmente para o trabalho de rotina na dosimetria TL.

O pó proveniente da trituração dos cristais dopados, após ser graduado entre 0,177 a 0,074 mm (estudos realizados por diversos autores evidenciaram que este tamanho de grão é o que apresenta melhor sensibilidade), foi dividido em porções de 150 mg para serem compactadas individualmente em um compactador especialmente construído. Este permitia produzir uma pastilha de 10 mm de diâmetro aplicando-se uma pressão de aproximadamente 37000 N/cm^2 durante 1 (um) minuto. Para a compactação usou-se uma prensa hidráulica comum com capacidade de 15 toneladas, mostrada juntamente com o compactador, na figura 6.

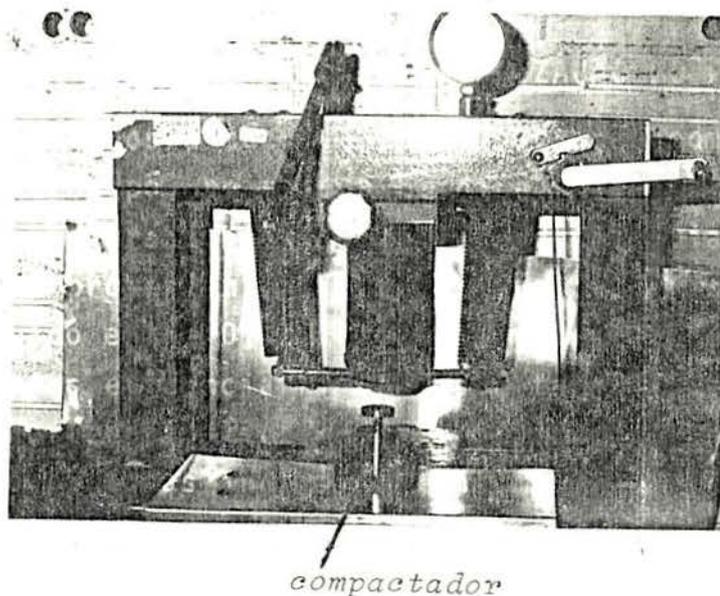


FIGURA 6 - Prensa hidráulica e compactador empregados na compactação das pastilhas de LiF.

Compactando o pó, obtivemos pastilhas que apresentavam uma pequena resistência, pois era preciso manuseá-las com cuidado para evitar a sua fragmentação. Devido a esse problema, optamos por sinterizar as pastilhas, pois com esse processo, elas se tornam mais resistentes ao manuseio e transparentes à luz.

Para a sinterização das pastilhas obtidas, utilizamos

praticamente o mesmo equipamento empregado na fusão para dopagem das amostras, substituindo o tubo de aço revestido com grafite e o cadinho por um único tubo de alumina, que pode ser visto na figura 7. A substituição fez-se necessária pelo fato de que o tubo de aço revestido internamente com grafite apresentava diâmetro útil muito pequeno. Como queríamos introduzir diversas pastilhas de cada vez para sinterizar, utilizamos um tubo de alumina disponível, com diâmetro maior, evitando o revestimento interno, pois o mesmo não é atacado pelo LiF. Deste modo a quantidade de pastilhas sinterizadas em cada fornada poderia ser maior. As pastilhas foram colocadas diretamente em contato com a superfície interna do tubo e aquecidas a 500°C e 800°C por tempos variáveis, e após eram resfriadas lentamente. Na figura 8 podemos ver o aspecto físico de algumas pastilhas obtidas com a utilização deste processo.

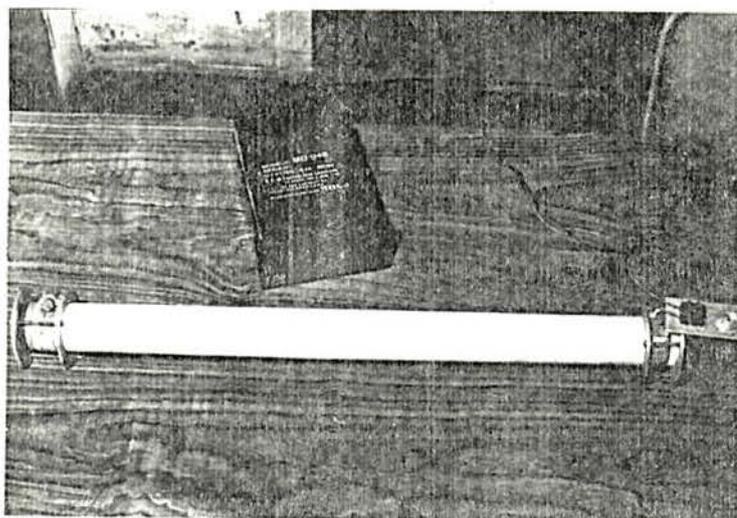


FIGURA 7 - Tubo de alumina empregado na sinterização das pastilhas de LiF.

Depois de obter-se diversas fornadas de pastilhas com concentração de material dopante e tempo de sinterização diferentes, estas foram irradiadas e algumas de suas características TL foram determinadas.

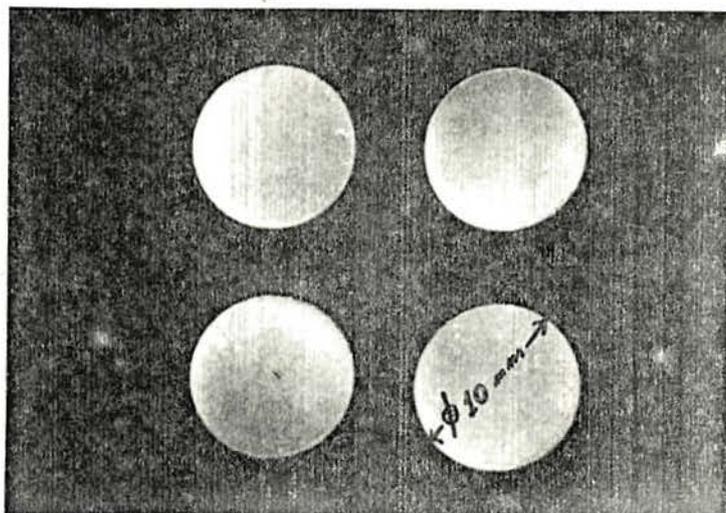


FIGURA 8 - Aspecto físico das pastilhas de LiF, após serem submetidas ao processo de sinterização.

4.3. IRRADIAÇÃO E LEITURA DAS PASTILHAS SINTERIZADAS

Irradiações onde a exposição recebida pelas pastilhas necessitavam ser bem conhecidas, foram feitas com o auxílio de uma fonte de ^{60}Co , do Departamento de Engenharia Nuclear da U.F.R.G.S., com aproximadamente 2 Ci de atividade.

Para as irradiações as pastilhas foram mantidas dentro de embalagens, as quais supriam o necessário build-up⁺, embalagens estas de acrílico cujas paredes possuíam aproximadamente 5 mm de espessura.

A distância fonte-amostra foi sempre mantida constante, para isto foi construído um suporte, e este adaptado ao carrinho que contém a fonte, de modo que ao retirar a fonte da blindagem esta ficava aproximadamente a 1 (um) metro da amostra. Para

⁺ Quando um feixe de radiação passa através de um meio absorvedor, ele interage com o meio, seguindo um processo de dois estágios característicos: o primeiro estágio ocorre quando a energia transportada pelo fóton, a partícula indiretamente ionizante, é transformada em energia cinética de elétrons de alta velocidade; o segundo estágio ocorre quando estes elétrons, as partículas diretamente ionizantes, movem-se e depositam suas energias no meio. Durante o percurso das partículas ionizantes, que possuem diversos alcances (dependendo de sua energia), a densidade de ionização crescerá, até atingir um valor máximo, no final da trajetória (alcance) da partícula no meio. A região entre a superfície irradiada e a profundidade onde se dá o máximo de ionização, local onde a dose é máxima, é chamada de região "Build-up".

aplicações de diferentes doses nas amostras utilizamos como variável o tempo de exposição.

Depois de irradiadas, as pastilhas eram lidas para determinarmos a intensidade de luz TL emitida em função da dose recebida.

O equipamento empregado para a leitura TL das pastilhas constava basicamente de quatro partes:

- (1) um sistema de aquecimento da amostra;
- (2) uma válvula fotomultiplicadora para detetar a luz emitida pela amostra quando aquecida;
- (3) um integrador capaz de computar a quantidade total de luz emitida;
- (4) um registrador para traçar a curva de emissão.

O diagrama de bloco do sistema de leitura e o equipamento utilizado é mostrado na figura 9. A amostra é colocada sobre uma placa que é aquecida por uma resistência elétrica, a uma taxa controlável e reproduzível. Com o aquecimento gradativo da amostra, aumenta a probabilidade de escape dos elétrons das armadilhas até que a energia térmica fornecida seja suficiente para liberar a maioria dos elétrons de uma determinada armadilha, quando tem-se o máximo na curva de emissão, ou seja, o pico de emissão TL. Sobre o sistema placa-amostra, está colocada uma fotomultiplicadora que deteta a luz emitida. Essa emissão provoca um sinal em corrente elétrica que é integrada e registrada em função do tempo de aquecimento ou da temperatura de aquecimento, obtendo-se, assim, todo o comportamento da luz emitida durante o aquecimento.

A emissão TL foi medida pelo seguinte sistema: aparelho leitor da Victoreen, TLD READER modelo 2800. Acoplado a esse aparelho foi colocado um registrador da ECB modelo RB 103 série 341.

A calibração do aparelho de leitura foi feita utilizando-se um lote composto de 20 dosímetros TL extrudados provenientes da Harshaw que foram irradiados com raios gama de uma fonte calibrada de ^{60}Co . Os dosímetros foram irradiados com diversas doses conhecidas. Com isso traçou-se o gráfico do sinal TL obtido integrado versus exposição, dentro do limite de interesse. A partir disso, obteve-se um fator de correção, que multiplicado pela leitura obtida, permitia determinar a exposição verdadeira.

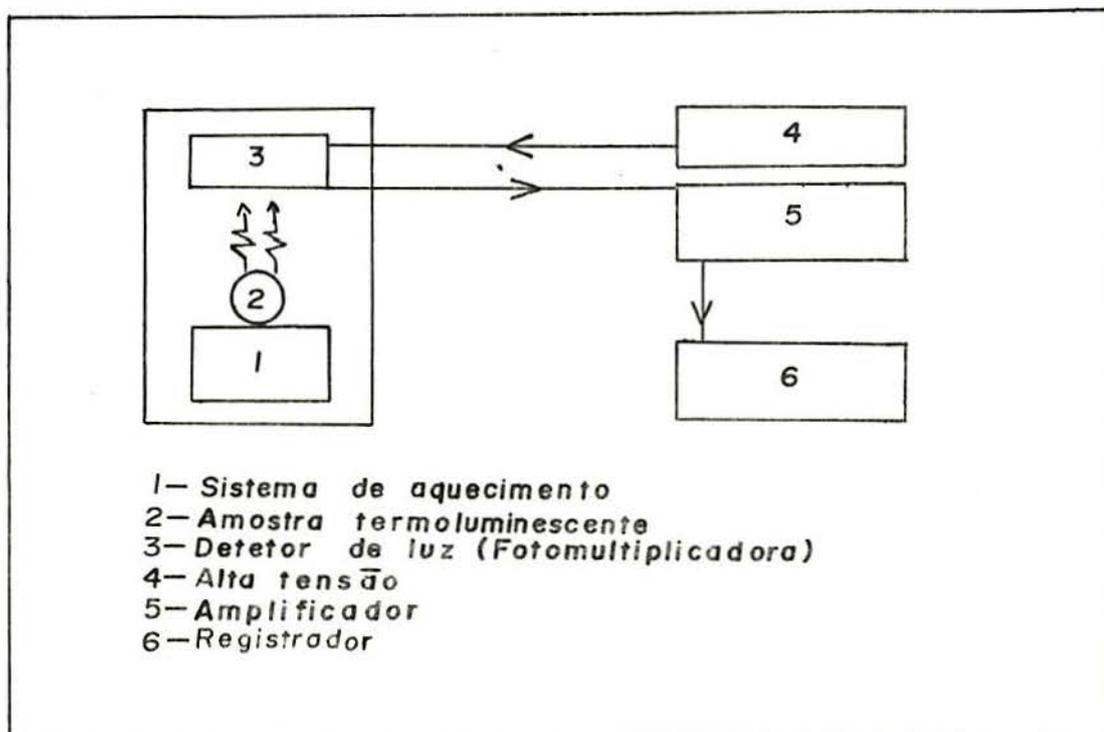
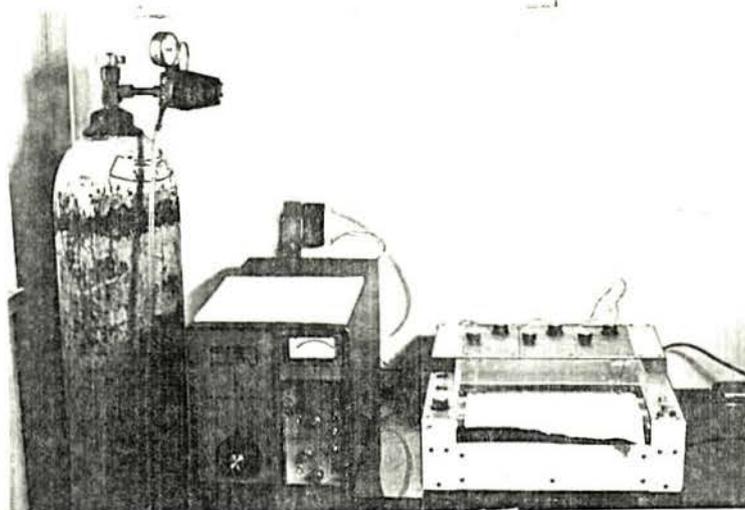


FIGURA 9 - Equipamento e diagrama de bloco do sistema de leitura termoluminescente utilizado na leitura das pastilhas sinterizadas de LiF.

O ciclo de temperaturas empregado na leitura das amostras foi o seguinte:

- (1) pré-aquecimento - da temperatura ambiente até 120°C, tempo total de 9 segundos;
- (2) integração do sinal - a partir de 120°C até 255°C a uma taxa de aquecimento de 10°C/s. O tempo total de leitura é de 23 a 24 segundos.

As leituras foram obtidas com fluxo de nitrogênio na câmara de aquecimento, para diminuir o sinal devido ao aquecimento da plancheta e evitar sinal de contaminação devido a queima de sujeiras. Após cada ciclo de leituras, as pastilhas foram colocadas em recipientes de alumina ou cadinhos de aço inóx e recozidas a 400°C durante 1 (uma) hora, em seguida, resfriadas à temperatura ambiente em aproximadamente 10 minutos, esse tratamento é feito com o objetivo de esvaziar as armadilhas que ainda restaram depois da leitura.

5. RESULTADOS E DISCUSSÃO

Neste capítulo apresentaremos os resultados obtidos com as nossas pastilhas sinterizadas de LiF. Para isso fez-se uma com paração entre diferentes lotes de pastilhas produzidas nas mesmas condições (tais como concentração de dopantes, tempo de sinterização, etc) e dosímetros extrudados, TLD-100 da Harshaw.

Foram estudados diversos lotes de amostras com concentração de material dopante distintos e sinterizados em tempos diferentes. O objetivo foi determinar a variação na curva de emissão e na sensibilidade da pastilha, em função do tempo de sinterização e da concentração do dopante.

Estudou-se três lotes de amostras que apresentavam tempos de sinterização e concentração de dopantes diferentes, e determinou-se algumas características TL que foram comparadas com as dos dosímetros produzidos pela Harshaw. O objetivo desse estudo foi determinar se as pastilhas produzidas por nós poderiam ser empregadas na dosimetria pessoal.

A seguir apresentaremos os resultados obtidos com os lotes de amostras produzidas em nosso laboratório. Todos os lotes foram produzidos como descrito no capítulo anterior, eles eram compostos de pastilhas sinterizadas onde variou-se as concentrações de Mg e Na e o tempo de sinterização.

Para verificar se realmente as amostras continham o material dopante, foi feito análise espectrográfica, utilizando-se o Espectrôgrafo JENA UVQ 24. A análise forneceu apenas dados qualitativos, os quais indicavam se a amostra continha maior ou menor concentração de determinada impureza.

As pastilhas sinterizadas utilizadas neste trabalho, para medidas de exposições, foram selecionadas de modo que, após irradiadas a-

presentassem resposta TL dentro de 15% do valor médio. Antes de cada irradiação as amostras foram recozidas a 400°C por 1 (uma) hora.

5.1. CURVA DE AQUECIMENTO DA PLANCHETA

Um dos erros que afetam a medida de uma emissão TL, é a variação da corrente de aquecimento da plancheta, pois a altura e posição do pico é uma função da taxa de aquecimento (que neste trabalho foi de 10°C/s), essa taxa foi confirmada pela medida da temperatura da plancheta como uma função do tempo.

A curva de aquecimento foi obtida acoplado-se um registrador ao aparelho leitor, a escala utilizada foi de 20 mV e velocidade do papel de 6 cm/min e 10 cm/min. O resultado dessa medida é dado na figura 10, mostrando que a taxa de aquecimento de 10°C/s foi mantida satisfatoriamente no intervalo de temperaturas de interesse, e que o pré-aquecimento, com o objetivo de eliminar os picos de baixa temperatura, foi feito a 120°C durante aproximadamente 7 segundos.

É interessante resaltar que, em determinado instante, durante todo o ciclo de aquecimento, tanto a plancheta como as amostras e os dosímetros extrudados possuem temperaturas diferentes, pois estas possuem menor massa e portanto aquecem-se mais rapidamente que as amostras. Outro fato a destacar é que as curvas de emissão foram obtidas a partir do décimo segundo de aquecimento, ou seja, a partir de 120°C, portanto os picos que existem a temperaturas inferiores a esta não apareceram no gráfico.

As curvas de emissão obtidas para os diversos lotes de pastilhas, são analisadas a seguir.

5.2. CURVAS DE EMISSÃO DAS PASTILHAS

Tendo como objetivo determinar qual a influência da concentração de dopantes e do tempo de sinterização na sensibilidade e na forma da curva de emissão das pastilhas, vários lotes de amostras foram irradiados com aproximadamente 1R de radiação gama de uma fonte de cobalto 60 e após foi feita a leitura e simultaneamente traçadas as curvas de emissão das pastilhas.

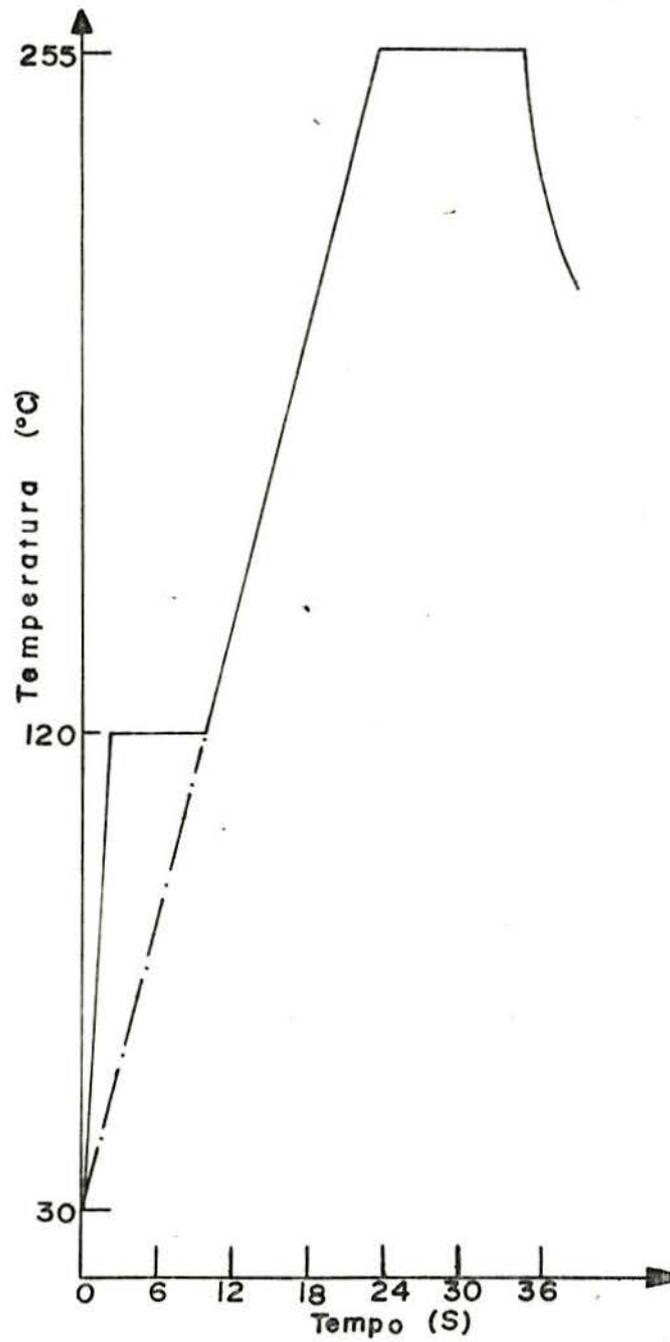


FIGURA 10 - Curva de aquecimento da plancheta do aparelho leitor Victoreen TLD READER 2800, obtida experimentalmente.

Inicialmente tomamos um conjunto de amostras de LiF dopado com 400 ppm de Mg e 50 ppm de Na, e variamos o tempo de sinterização. Esse conjunto foi irradiado e as amostras lidas e traçadas as curvas de emissão, que podem ser vistas na figura 11. Analisando as curvas, em relação a sua forma, podemos concluir que o tempo de sinterização não afeta o seu formato, pois os picos TL não são deslocados, aparecendo em uma mesma temperatura para as diferentes curvas. Porém influi na sensibilidade da amostra, que aumenta com o aumento do tempo de sinterização, atingindo a saturação após 6h, como pode ser visto na figura 16.

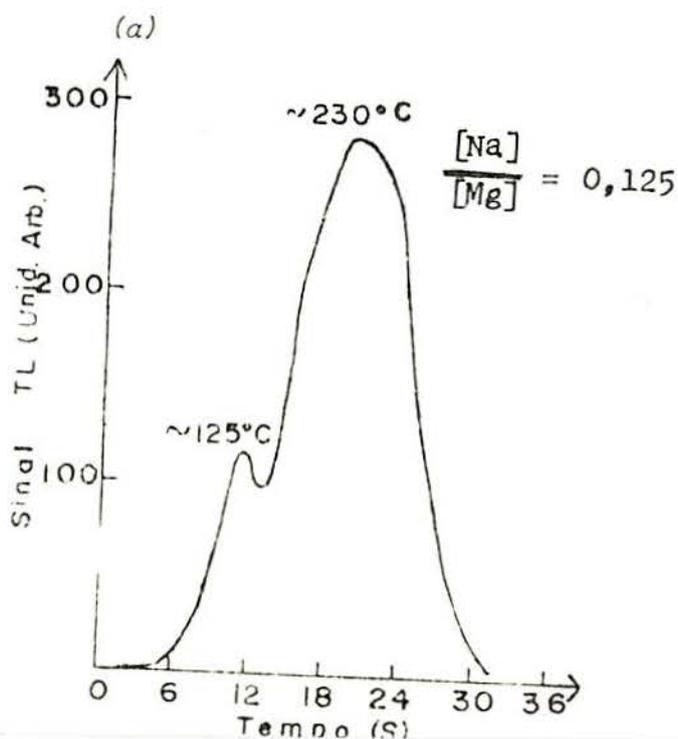
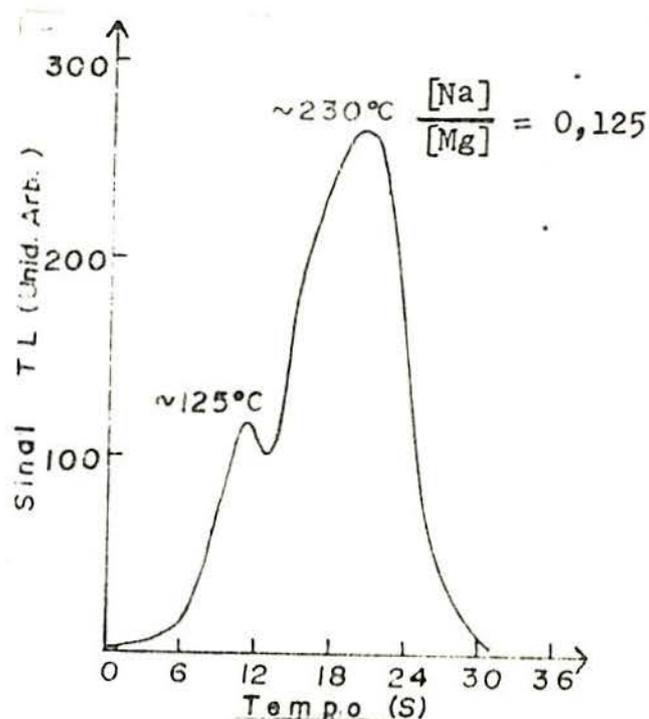
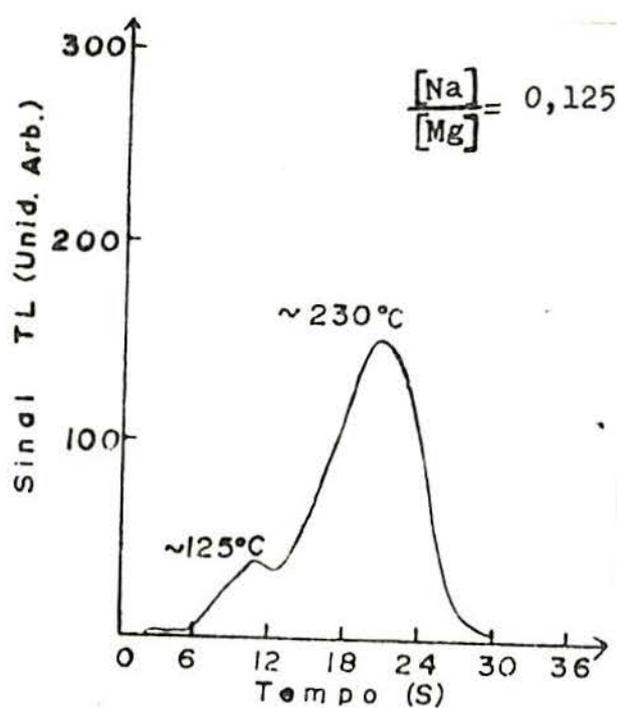
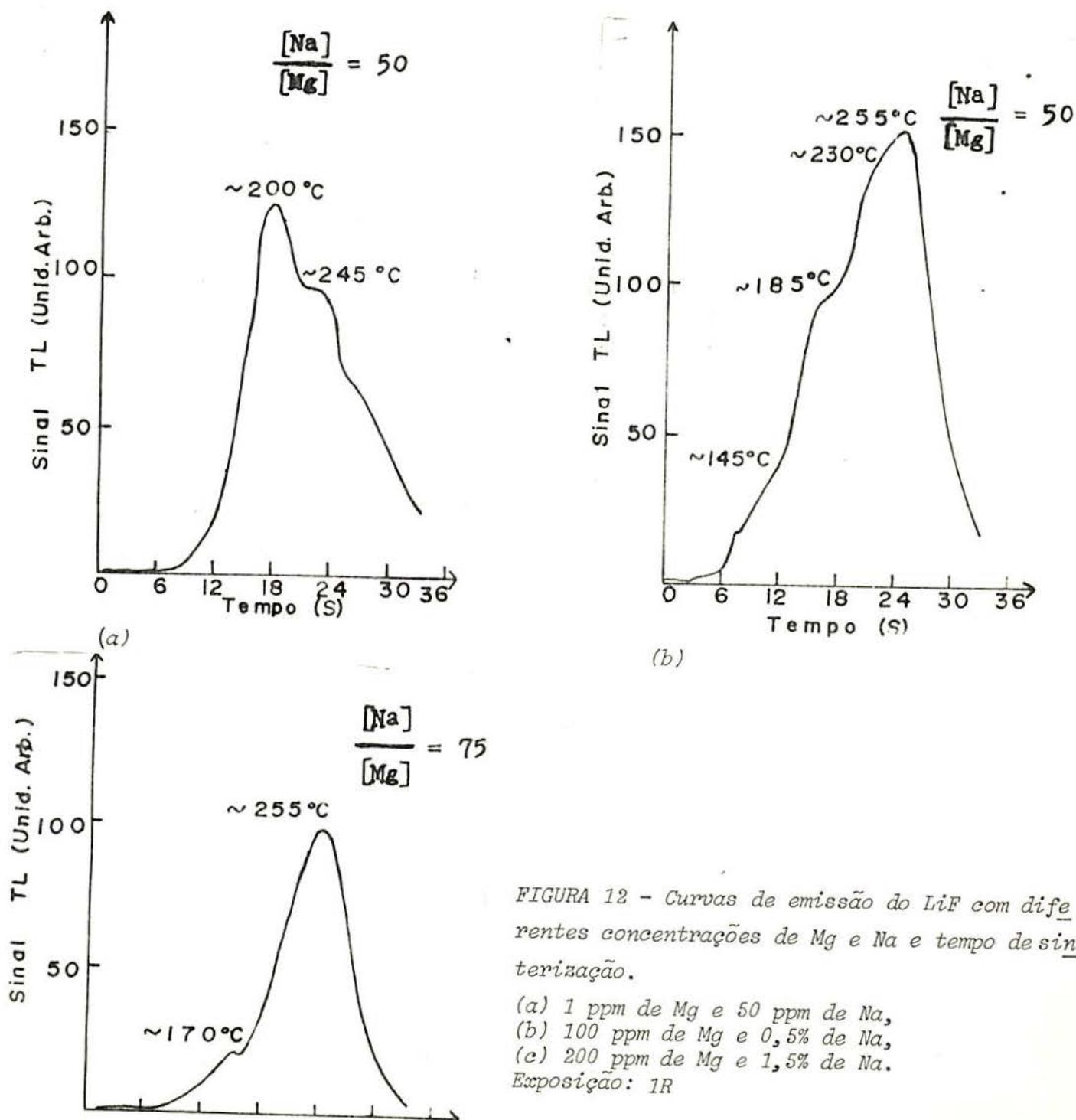


FIGURA 11 - Curvas de emissão do LiF do dapo com 400 ppm de Mg e 50 ppm de Na., as pastilhas foram sinterizadas em tempos diferentes; (a) 1h, (b) 3h e (c) 6h Exposição: 1R

Para determinarmos a influência da concentração do material dopante na forma da curva de emissão, produzimos diversos lotes de pastilhas, os quais diferiam entre si pela concentração do dopante. Tomamos três desses lotes, que apresentavam diferenças tanto na concentração de Mg como de Na, o primeiro deles continha LiF dopado com 1 ppm de Mg e 50 ppm de Na, o segundo era formado de LiF dopado com 100 ppm de Mg e 0,5% de Na e o último possuía LiF dopado com 200 ppm de Mg e 1,5% de Na. Um conjunto composto de 15 pastilhas, 5 de cada lote, foi irradiado com exposição de aproximadamente 1R e 24 horas após lidos e registrada as curvas de emissão, que podem ser vistas na figura 12.



Comparando as curvas entre si, que foram obtidas nas mesmas condições de trabalho, podemos concluir que a concentração do material dopante determina a sua forma, deslocando alguns de seus picos e inclusive aparecendo outros picos em temperaturas diferentes, bem como possui influência na sensibilidade das pastilhas.

Como estamos trabalhando com dois dopantes diferentes (Mg e Na), precisamos determinar qual deles é o responsável pela variação da curva de emissão. Para isso tomamos dois lotes de amostras, onde fixamos a concentração de Na e variamos a de Mg. Um conjunto composto de 10 pastilhas, 5 de cada lote, foi irradiado e lido, traçando simultaneamente as curvas de emissão, que podem ser vistas nas figuras 13 e 14.

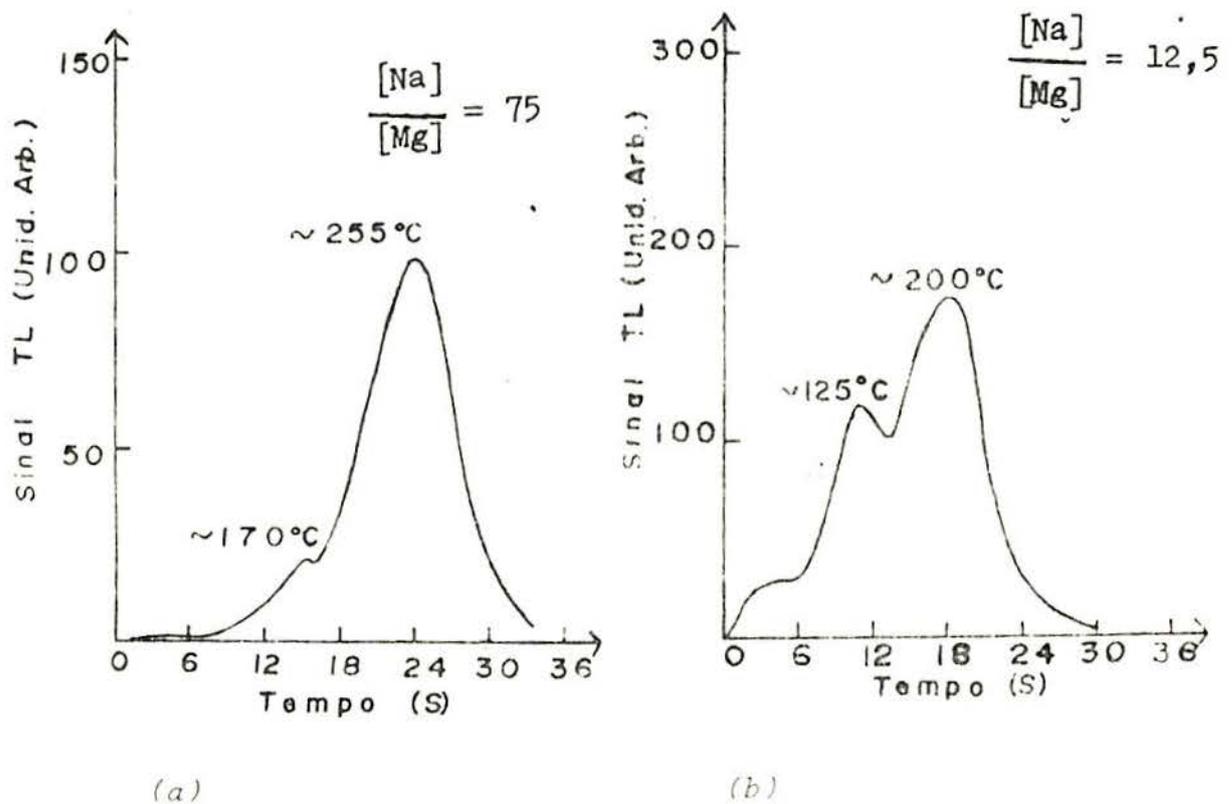


FIGURA 13 - Curvas de emissão do LiF dopado com mesma concentração de Na e diferentes concentrações de Mg;

(a) 200 ppm de Mg e 1,5% de Na,

(b) 400 ppm de Mg e 1,5% de Na.

Exposição: 1R

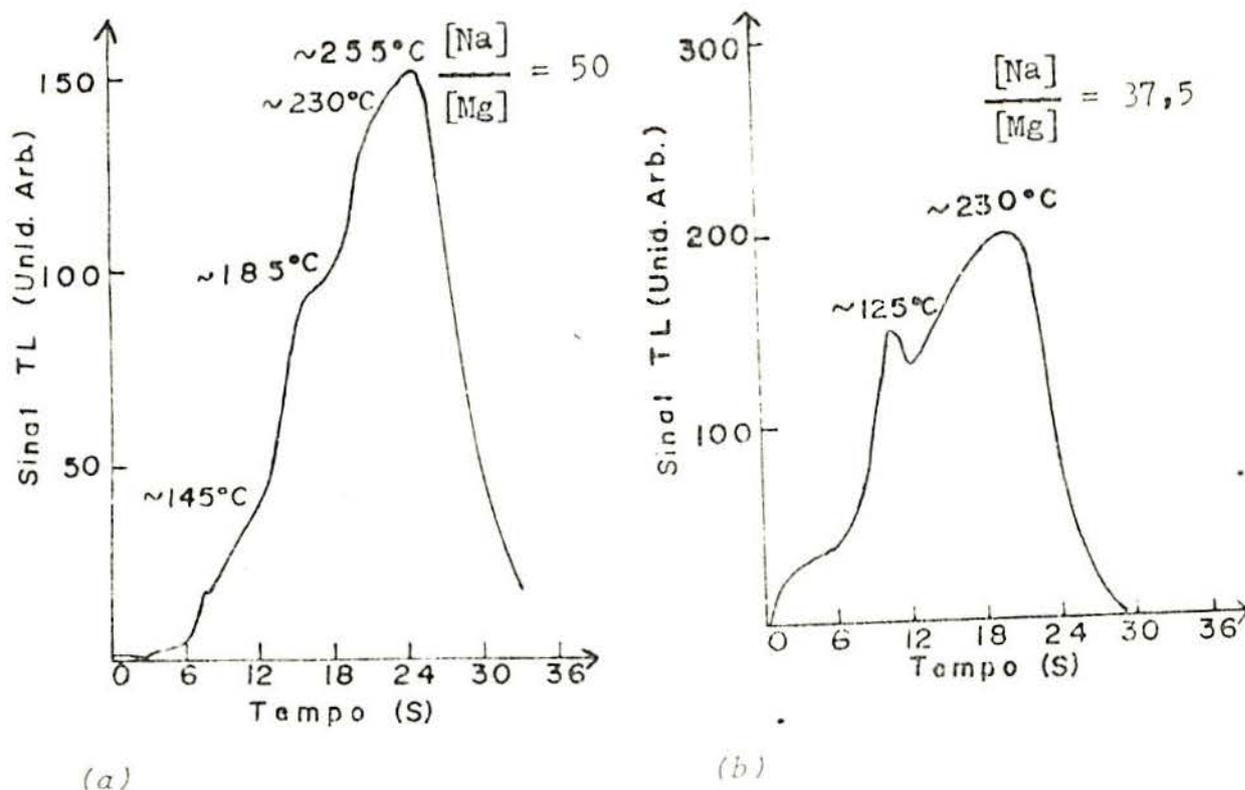


FIGURA 14 - Curvas de emissão do LiF dopado com mesma concentração de Na e diferentes concentrações de Mg;

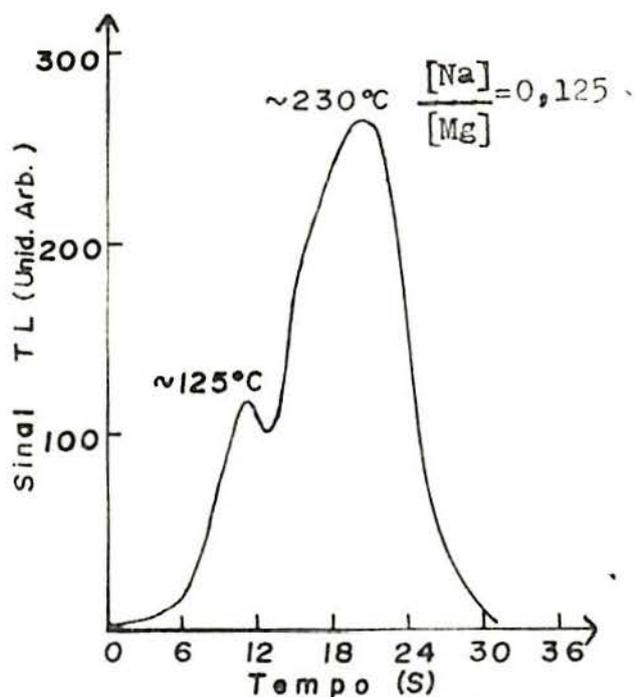
(a) 100 ppm de Mg e 0,5% de Na,

(b) 400 ppm de Mg e 0,5% de Na.

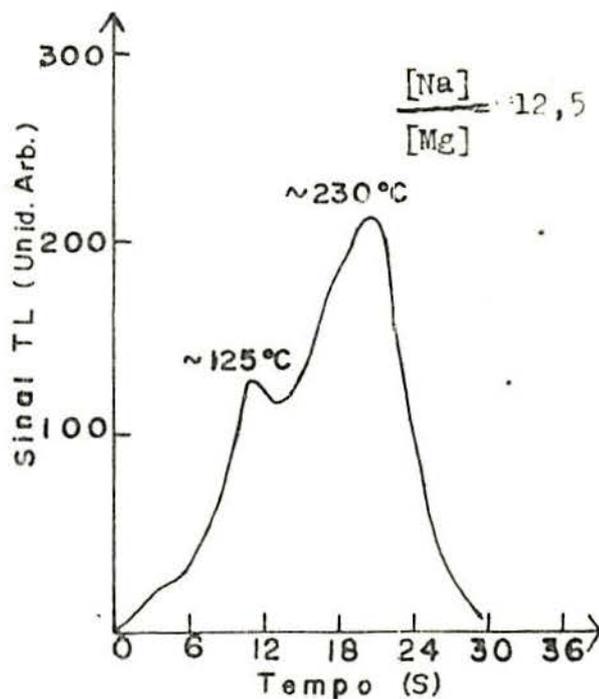
Exposição: 1R

Uma análise das curvas, em relação ao seu formato, nos mostra que sua forma é alterada, aparecendo picos a temperaturas diferentes de uma curva para outra, e a sensibilidade TL também é afetada, aumentando com o aumento da concentração de Mg. Com isso, podemos concluir que, apesar de fixa a concentração de Na, a curva de emissão é alterada em sua forma, sendo esta alteração devido a variação da concentração de Mg.

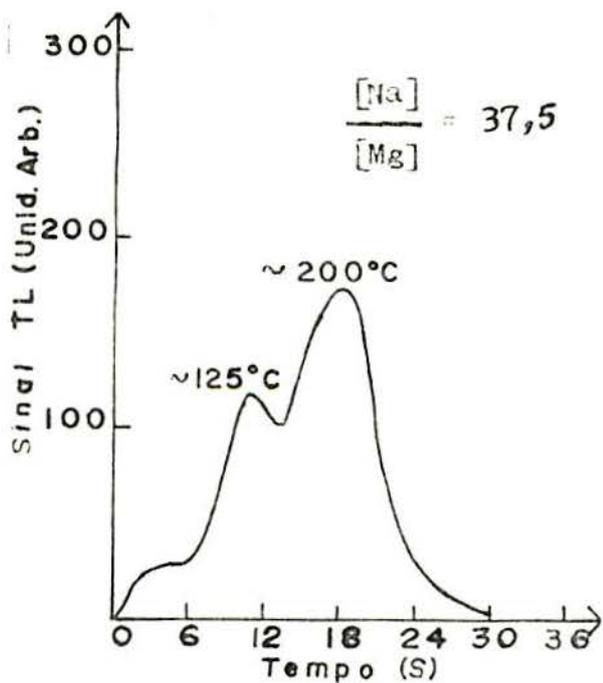
Para comprovar este fato, fizemos outro conjunto de pastilhas, no qual fixamos a concentração de Mg e variamos a de Na. O conjunto era composto de 15 pastilhas, 5 de cada lote, irradiamos e traçamos as curvas de emissão das pastilhas, as quais podem ser vistas na figura 15.



(a)



(b)



(c)

FIGURA 15 - Curvas de emissão para o LiF dopado com mesma concentração de Mg e diferentes concentrações de Na, e mesmo tempo de sinterização das pastilhas.

(a) 400 ppm de Mg e 50 ppm de Na,
 (b) 400 ppm de Mg e 0,5% de Na,
 (c) 400 ppm de Mg e 1,5% de Na.
 Exposição: 1R

Como podemos ver, a forma das curvas de emissão não foram alteradas, aparecendo picos de emissão nas mesmas temperaturas de uma curva para outra. Com isso podemos chegar a conclusão que o dopante responsável pelo formato da curva é o Mg.

Analisando as curvas de emissão (figuras 11, 12, 13, 14 e 15), em relação à concentração de dopantes e tempos de sinterização, podemos concluir que a concentração de Mg determina a sensibilidade e forma das mesmas. Aquelas em que a concentração de Mg foi mantida constante, e houve variação da concentração de Na, bem como do tempo de sinterização, apresentaram comportamentos semelhantes. Com a variação da concentração de Mg, a curva de emissão se altera deslocando alguns de seus picos, mostrando que a presença de Na afeta a sensibilidade, não interferindo porém na temperatura dos picos. O mesmo ocorre com o tempo de sinterização.

5.3. SENSIBILIDADE TL EM FUNÇÃO DO TEMPO DE SINTERIZAÇÃO

Para determinarmos a influência do tempo de sinterização na sensibilidade das pastilhas, utilizamos quatro lotes de amostras, as quais apresentavam as mesmas concentrações de Mg e Na, diferindo porém no tempo de sinterização.

Os lotes eram compostos de LiF dopado com 400 ppm de Mg e 50 ppm de Na, e foram sinterizados durante 1h, 2h, 3h e 6h. As curvas de emissão para três desses lotes podem ser vistas na figura 11 e, analisando-as em relação à intensidade do pico principal, podemos ver que as mesmas variam com o tempo de sinterização. Com base nos dados fornecidos por estas curvas e utilizando outros dados obtidos experimentalmente, em relação ao tempo de sinterização, podemos construir o gráfico da figura 16, e analisando este gráfico em relação a sensibilidade TL e ao tempo de sinterização, podemos concluir que o tempo de sinterização possui grande influência na sensibilidade das pastilhas, no intervalo de 1h a 3h. Para tem-

pos superiores a 3h a influência diminui consideravelmente, pois as pastilhas sinterizadas durante 6h apresentam um aumento de sensibilidade em torno de 10% em relação as sinterizadas durante 3h. Para tempos superiores a 6h, pode inclusive haver uma diminuição na sensibilidade TL das pastilhas.

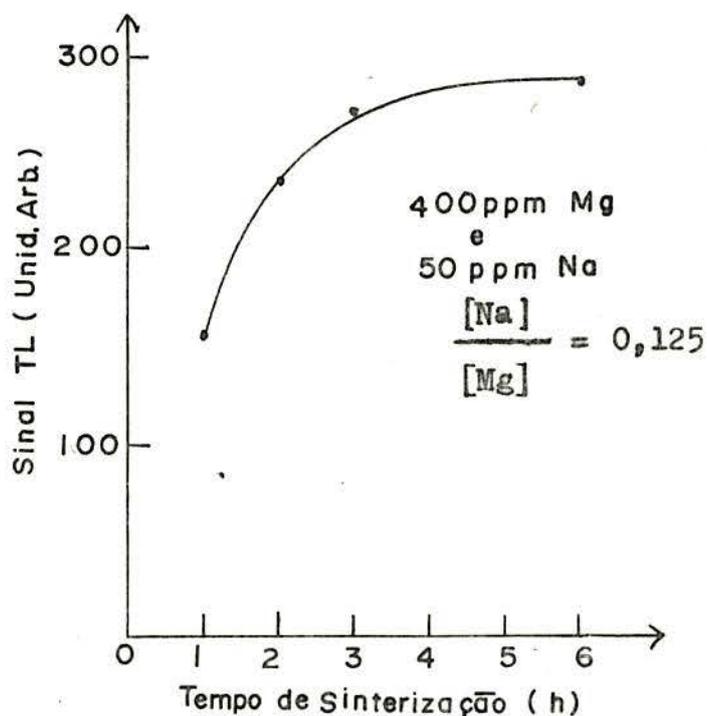


FIGURA 16 - Sensibilidade TL em função do tempo de sinterização para pastilhas de LiF dopadas com 400 ppm de Mg e 50 ppm de Na e irradiadas com 1R de radiação gama.

5.4. SENSIBILIDADE TL EM FUNÇÃO DA CONCENTRAÇÃO DE MATERIAL DOPANTE

Como vimos anteriormente, a concentração de Mg influencia na forma e sensibilidade da curva de emissão das pastilhas, ao passo que a concentração de Na somente tem influência na sensibilidade delas. Com base nestas conclusões e analisando as curvas de emissão das pastilhas, em relação à intensidade dos picos

principais e a concentração de material dopante, podemos construir o gráfico de sensibilidade TL em função da relação entre a concentração de Na pela concentração de Mg, mostrado na figura 17.

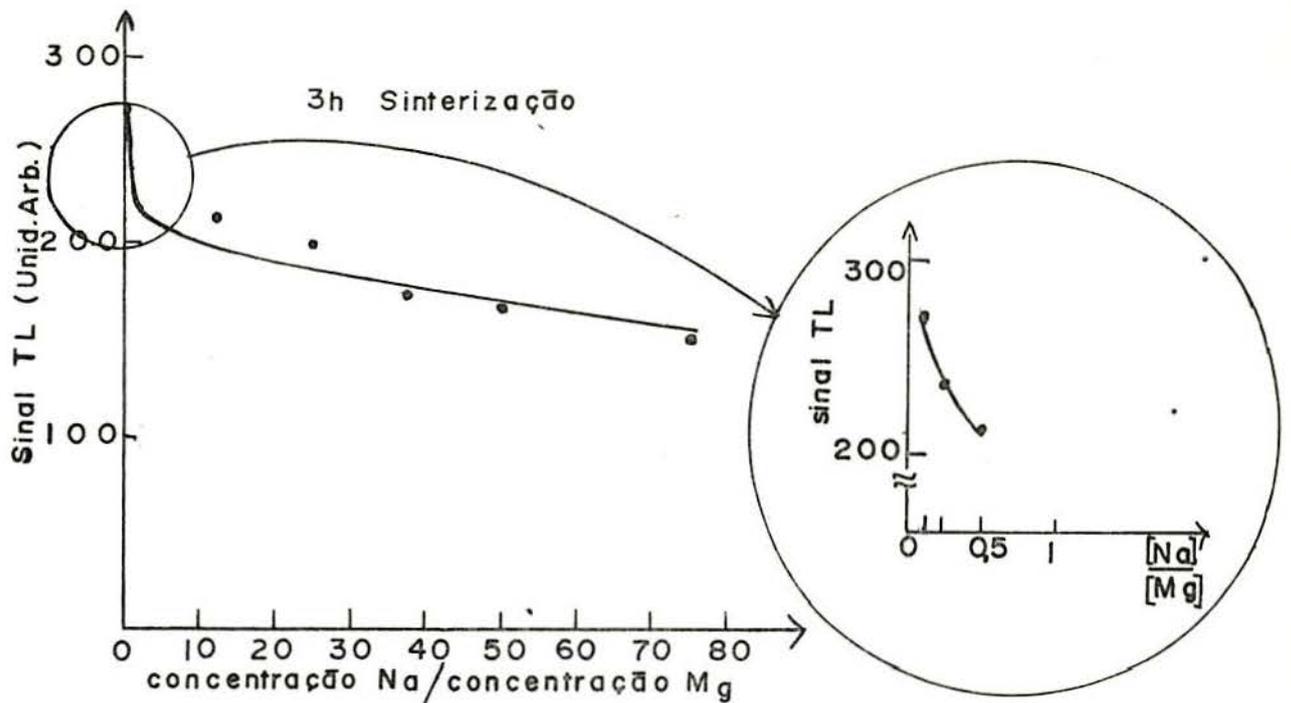


FIGURA 17 - Sensibilidade TL em função da relação entre a concentração de Na pela concentração de Mg para pastilhas de LiF sinterizadas durante 3h e irradiadas com 1R de radiação gama.

Analisando o gráfico da figura 17, em relação à sensibilidade, podemos ver que a mesma diminui ao aumentar a relação entre a concentração de Na pela concentração de Mg ($\frac{[Na]}{[Mg]}$), ou seja, quanto menor a relação $\frac{[Na]}{[Mg]}$ maior será a sensibilidade das pastilhas. Deste modo, um aumento na concentração de Na acarreta uma diminuição na sensibilidade, ao passo que um aumento na concentração de Mg determina um aumento na sensibilidade TL. Com base neste fato, e analisando os dados fornecidos pela figura 15, em relação a intensidade dos picos principais e a concentração de Na, construímos o gráfico de sensibilidade TL em função da concentração de Na, mostrado na figura 18. Uma análise deste gráfi-

co, confirma os resultados obtidos anteriormente, pois um aumento na concentração de Na acarreta uma diminuição na sensibilidade das pastilhas.

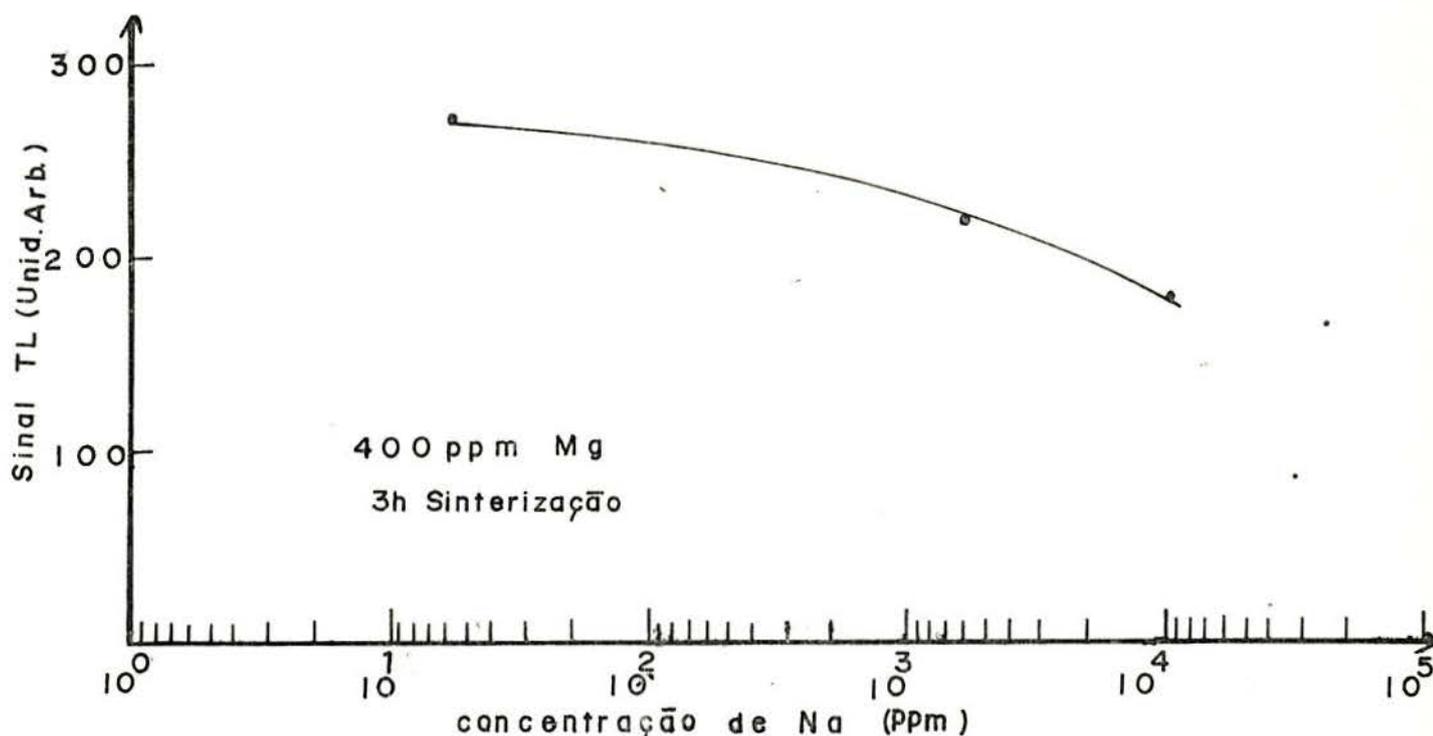


FIGURA 18 - Sensibilidade TL em função da concentração de Na, para pastilhas de LiF dopadas com 400 ppm de Mg e concentrações variadas de Na, sinterizadas durante 3h e irradiadas com 1R de radiação gama.

O gráfico da figura 17 evidencia o fato de que um aumento na concentração de Mg ocasiona uma diminuição na relação $[Na]/[Mg]$ e em consequência aumenta a sensibilidade TL. Para comprovar este fato, traçamos os gráficos de sensibilidade TL em função da concentração de Mg, para concentrações fixas de Na e tempo de sinterização das pastilhas de 3h, as quais são mostradas na figura 19.

Analisando os gráficos da figura 19, em relação à sensibilidade TL, podemos ver que a mesma aumenta com o aumento da concentração de Mg, obtendo-se máxima sensibilidade com o aumento da concentração de Mg e diminuição da concentração de Na. Este resultado confirma os obtidos anteriormente.

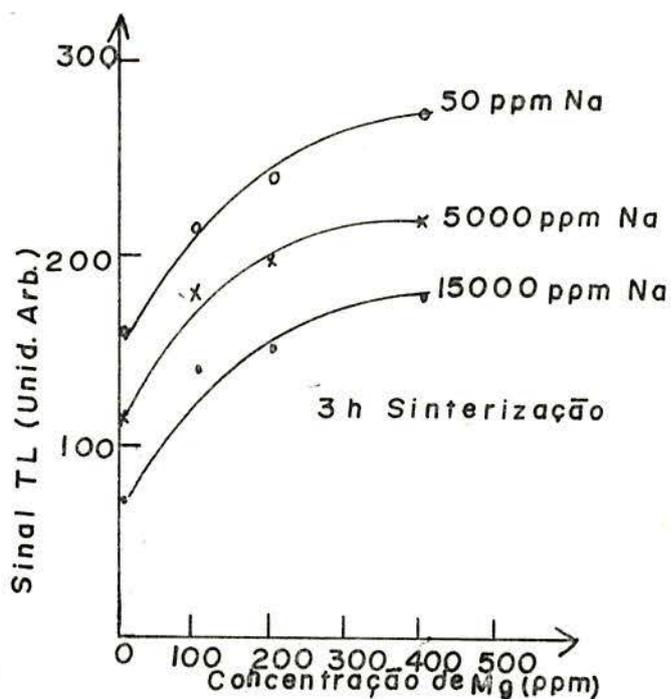


FIGURA 19 - Sensibilidade TL em função da concentração de Mg, para pastilhas de LiF dopadas com 50 ppm, 5000 ppm e 15000 ppm de Na e concentrações variadas de Mg, sinterizadas durante 3h e irradiadas com 1R de radiação gama.

A utilização de Na, como material dopante do LiF, faz com que a sensibilidade dos dosímetros diminua, mas proporciona uma melhor estabilidade dos picos TL, diminuindo com isso o desvanecimento do fósforo, conforme pode ser visto na figura 26, a pên-dice 9.1.

A seguir apresentamos os resultados obtidos com nossas pastilhas, comparados com as características dos dosímetros extrudados, TLD-100.

5.5. CARACTERÍSTICAS TL DOS DOSÍMETROS EXTRUDADOS

Com o objetivo de comparar as características TL das amostras produzidas com as dos dosímetros extrudados, determinamos algumas propriedades desses dosímetros, as quais são aqui apresentadas.

Os dosímetros TL extrudados utilizados no trabalho possuem as dimensões 1/8" x 1/8" x 0,035" e foram produzidos pela Harshaw Chemical Co, sendo comercializado sob a denominação de TLD-100.

Inicialmente obtivemos a curva de emissão para os TLD-100, submetidos a uma exposição de aproximadamente 1R de uma fonte de ^{60}Co , que pode ser vista na figura 20.

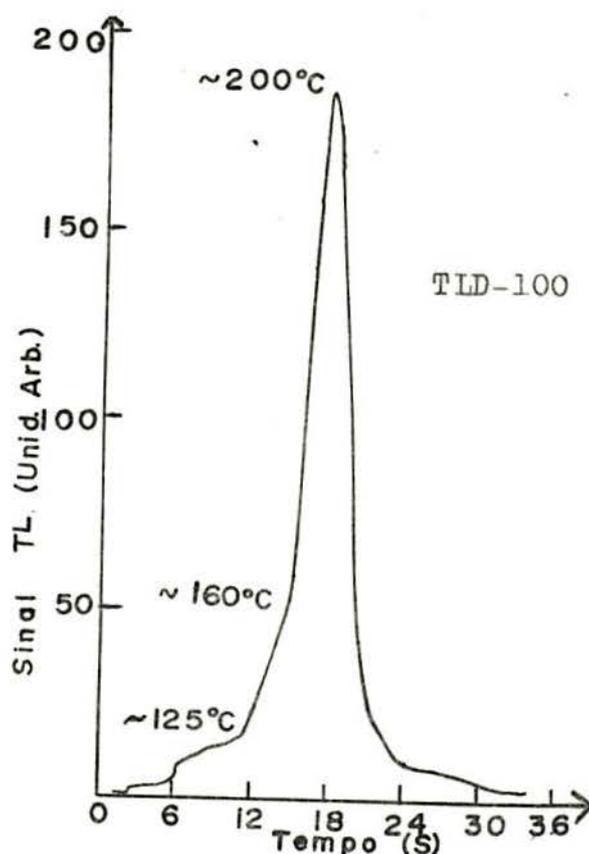


FIGURA 20 - Curva de emissão obtida para o TLD-100 extrudado, após ter sido irradiado com aproximadamente 1 R de radiação gama de uma fonte de Cobalto 60.

Na curva de emissão do TLD-100, observamos a presença de três picos TL, dois de baixas temperaturas (entre 120°C e 160°C) e outro numa temperatura mais elevada (em torno de 200°C). Obtida a curva de emissão, procuramos determinar a curva da resposta TL em função da exposição à radiação gama.

Para obtenção da curva da resposta TL em função da exposição recebida, utilizamos um conjunto composto de 48 dosímetros que foram divididos em 12 lotes de 4 dosímetros cada e irradiados a diferentes exposições. A curva obtida pode ser vista na figura 21 onde cada ponto corresponde a uma média de leitura de 4 dosímetros. A resposta TL varia linearmente no intervalo de exposições que foi submetida (50 mR a 400 R). Para a medida da resposta TL utilizamos a integral sob a curva, pois a leitora fornece esse dado e não a altura de pico.

Os resultados encontrados, tanto para as temperaturas dos picos de emissão como para a linearidade da resposta TL em função da exposição, coincidem com os encontrados na literatura (2, 13,16).

Após determinadas estas duas características, procuramos investigar a uniformidade de produção e o limite inferior de detecção dos TLD-100.

Para testar a uniformidade dos dosímetros extrudados foram utilizados 12 dosímetros, estes foram submetidos a uma exposição de aproximadamente 1R e em seguida lidos. O desvio padrão do valor médio encontrado foi de 14% para o lote em questão.

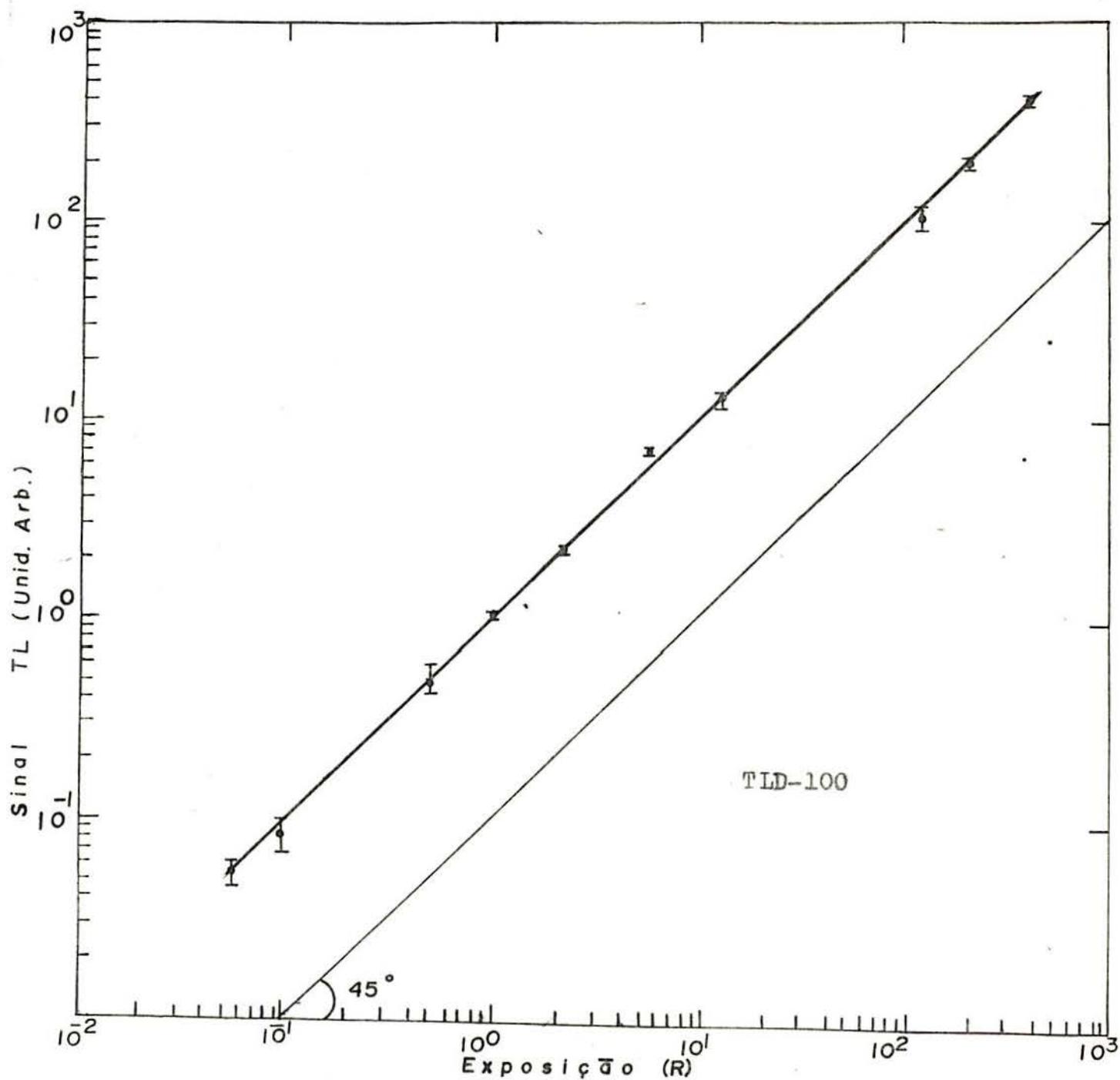


FIGURA 21 - Curva da resposta TL em função da exposição à radiação gama da fonte de Co^{60} para o LiF (TLD-100).

Com o objetivo de determinar o limite inferior de detecção, os dosímetros, após serem submetidos ao tratamento térmico de 400°C por 1 hora, foram lidos. O valor médio encontrado, para a leitura de dose nula, foi de 5 mR.

5.6. CARACTERÍSTICAS TL DAS PASTILHAS PRODUZIDAS

Para este estudo tomamos três lotes de amostras, provenientes de diferentes banhos (fornadas), com concentração de material dopante e tempos de sinterização distintos.

(1) lote número 1 - este lote de amostras era formado por pastilhas de LiF dopado com 200 ppm de Mg e 1,5% de Na, sinterizadas a 800°C durante 24 horas ininterruptas, sendo resfriadas lentamente. Algumas características TL dessas amostras foram determinadas, e os resultados obtidos são mostrados a seguir.

As amostras foram expostas a aproximadamente 1R de radiação gama, sendo lidas e simultaneamente registrada a curva de emissão, que é mostrada na figura 13.a. Analisando esta curva em relação à temperatura dos picos, observamos a presença de um pico de baixa temperatura (em torno de 170°C), e outro numa temperatura mais elevada (aproximadamente a 250°C).

Com o objetivo de obter informações para a utilização dessas amostras na dosimetria pessoal, foi obtida experimentalmente a curva de resposta TL às exposições a radiação gama. Para isso foram utilizados cerca de 50 pastilhas divididas em lotes de 5 dosímetros cada, foram previamente tratadas a 400°C por 1 hora e após irradiadas a diferentes exposições. Para a medida da resposta TL utilizou-se a integral da luz emitida. A figura 22 mostra os resultados obtidos, cada ponto no gráfico corresponde a uma média de 5 leituras. A resposta TL varia linearmente no intervalo de exposições a que as pastilhas foram submetidas (50 mR a 400 R).

Após determinadas estas características, procuramos investigar a uniformidade de produção, o limite inferior de detecção e a resistência das pastilhas provenientes desse lote.

Para testar a uniformidade das pastilhas produzidas foram utilizados 20 dosímetros provenientes de diferentes banhos (

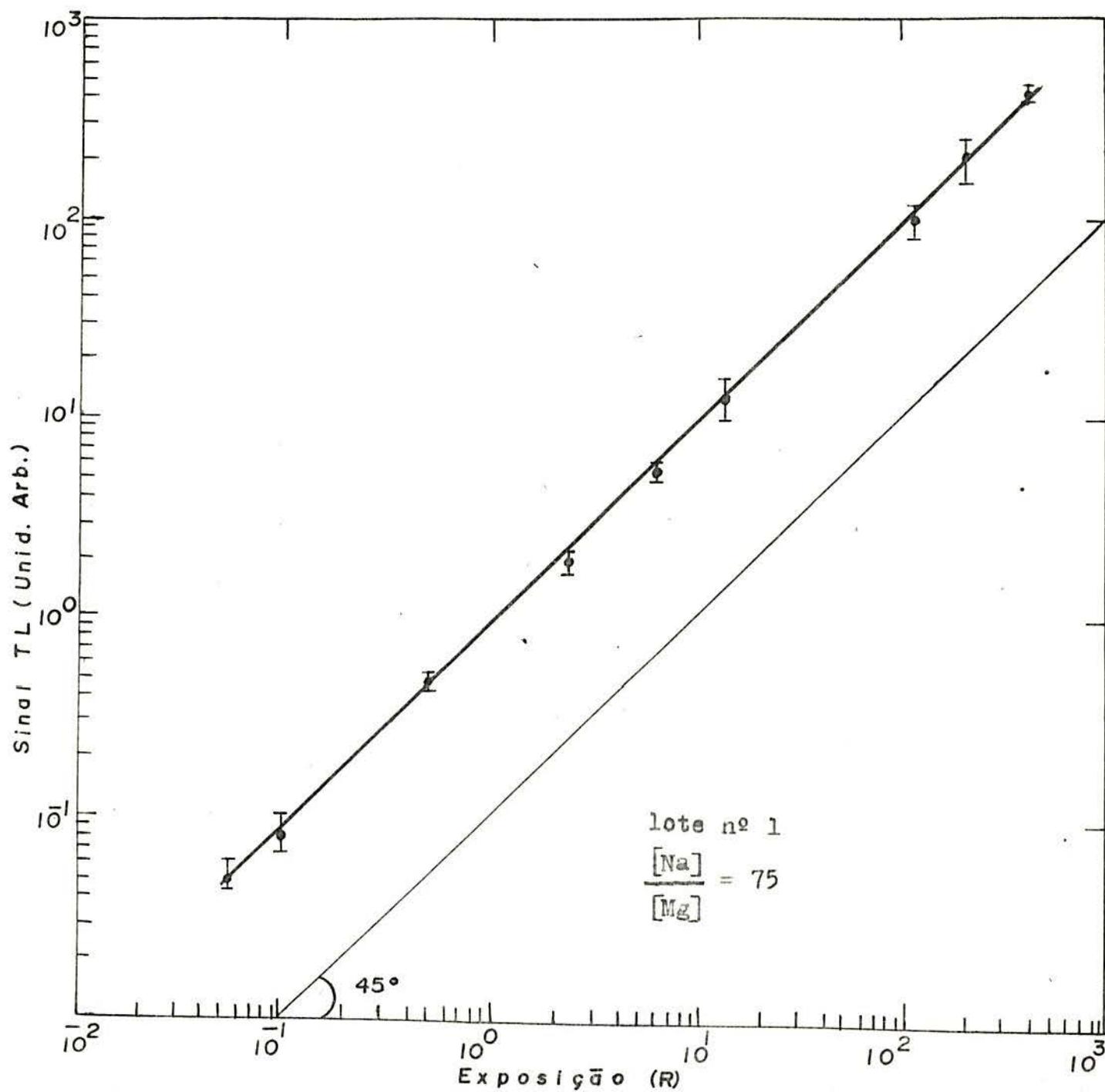


FIGURA 22 - Curva da resposta TL em função da exposição à radiação gama da fonte de Co^{60} para as pastilhas sinterizadas de LiF dopado com 200 ppm de Mg e 1,5% de Na, sinterizadas a 800°C durante 24 horas ininterruptas.

fornadas). As pastilhas foram irradiadas com uma exposição de aproximadamente 1R e em seguida lidas. O desvio padrão do valor médio encontrado, para os diferentes banhos, foi de 8%.

A fim de determinar se os dosímetros poderiam ser utilizados para medidas de pequenas doses (menores que 10 mR), alguns deles foram recozidos a 400°C por 1 hora, e a seguir lidos para encontrar a leitura de dose nula. O valor médio encontrado foi de 15 mR.

Quanto à resistência ao manuseio, o pó de LiF dopado, quando compactado, apresentava uma grande fragilidade (a pastilha rompia facilmente), por isso foi sinterizada a 800°C durante 24h ininterruptas. O produto obtido após esse tratamento térmico possuía uma boa resistência mecânica (a pastilha não rompia facilmente), de modo que podia ser manipulada sem qualquer perda de pó.

(2) lote número 2 - este lote de amostras era formado por pastilhas de LiF dopado com 100 ppm de Mg e 0,5% de Na, sinterizadas a 800°C durante 2 horas. Algumas características TL foram determinadas, e os resultados obtidos são a seguir apresentados.

Inicialmente obtivemos a curva de emissão para esse lote de pastilhas, submetidas a uma exposição de aproximadamente 1 R de radiação gama, que pode ser vista na figura 12.b. Nela observa-se a presença de quatro picos TL, sendo dois de baixa temperatura (entre 140 a 180°C) e dois picos a temperaturas mais elevadas (entre 220 a 255°C). Obtida a curva de emissão, procuramos de terminar a curva de resposta TL em função da exposição à radiação gama.

A curva da resposta TL em função da exposição recebida, apresenta linearidade no intervalo de exposições em que as pastilhas foram submetidas (50 mR a 400 R), conforme pode ser visto na figura 23, onde cada ponto corresponde a uma média de 4 leituras.

Obtidas estas duas características, passamos a determinar a uniformidade de produção, o limite inferior de detecção e a resistência das pastilhas provenientes desse lote.

No teste de uniformidade de produção, as pastilhas foram irradiadas com uma exposição de aproximadamente 1R e após li

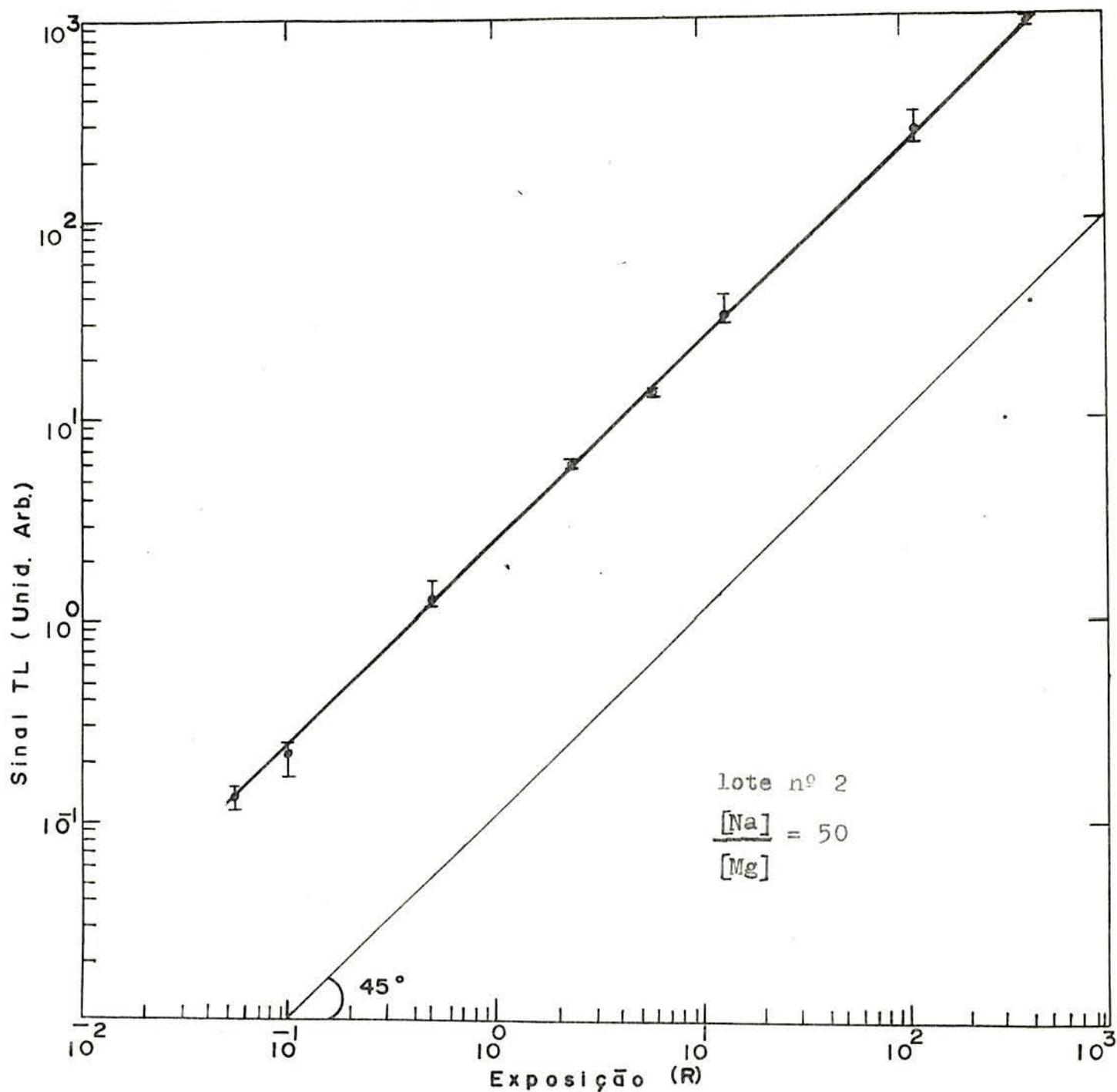


FIGURA 23 - Curva da resposta TL em função da exposição à radiação gama da fonte de Co^{60} para as pastilhas sinterizadas de LiF dopado com 100 ppm de Mg e 0,5% de Na, sinterizadas a 800°C durante 2 horas.

das. O desvio padrão do valor médio encontrado, para os diferentes banhos, foi em torno de 10%.

Na determinação do limite inferior de detecção, as amostras, após sofrerem o tratamento térmico de 400°C por uma (1) hora, foram lidas para determinar-se a leitura de dose nula, o valor médio encontrado foi em torno de 40 mR.

Quanto à resistência, o produto após compactado e sinterizado apresenta grande resistência ao manuseio, podendo ser manipulado sem qualquer problema de perda de pó.

(3) lote número 3 - este lote de amostras era composto de LiF do pado com 1 ppm de Mg e 50 ppm de Na, as pastilhas foram sinterizadas a 500°C durante 2 (duas) horas. As características TL determinadas para esse lote de pastilhas são apresentadas a seguir.

As amostras foram submetidas a uma exposição de aproximadamente 1R, após foram lidas e simultaneamente traçada a curva de emissão, que pode ser vista na figura 12.a. Analisando essa curva em relação à temperatura dos picos, observamos a presença de dois picos TL, ambos a temperaturas elevadas, um em torno de 200°C e outro aproximadamente a 245°C, sendo este de menor intensidade.

Obtida a curva de emissão, passamos a investigar a curva de resposta TL à exposição, a uniformidade de produção, o limite inferior de detecção e a resistência das pastilhas desse lote.

A curva de resposta TL em função da exposição recebida, apresenta linearidade no intervalo de exposições em que as pastilhas foram submetidas (50 mR a 400R). O gráfico pode ser visto na figura 24, onde cada ponto do gráfico corresponde a uma média de 4 leituras.

No teste de uniformidade de produção, as pastilhas foram irradiadas com aproximadamente 1R de exposição a radiação gama e em seguida lidas. O desvio padrão do valor médio encontrado, para os diferentes banhos, foi em torno de 3%.

A fim de determinar se os dosímetros poderiam ser utilizados para medidas de pequenas doses (menor que 10 mR), as amostras foram submetidas a um tratamento térmico de 400°C por u-

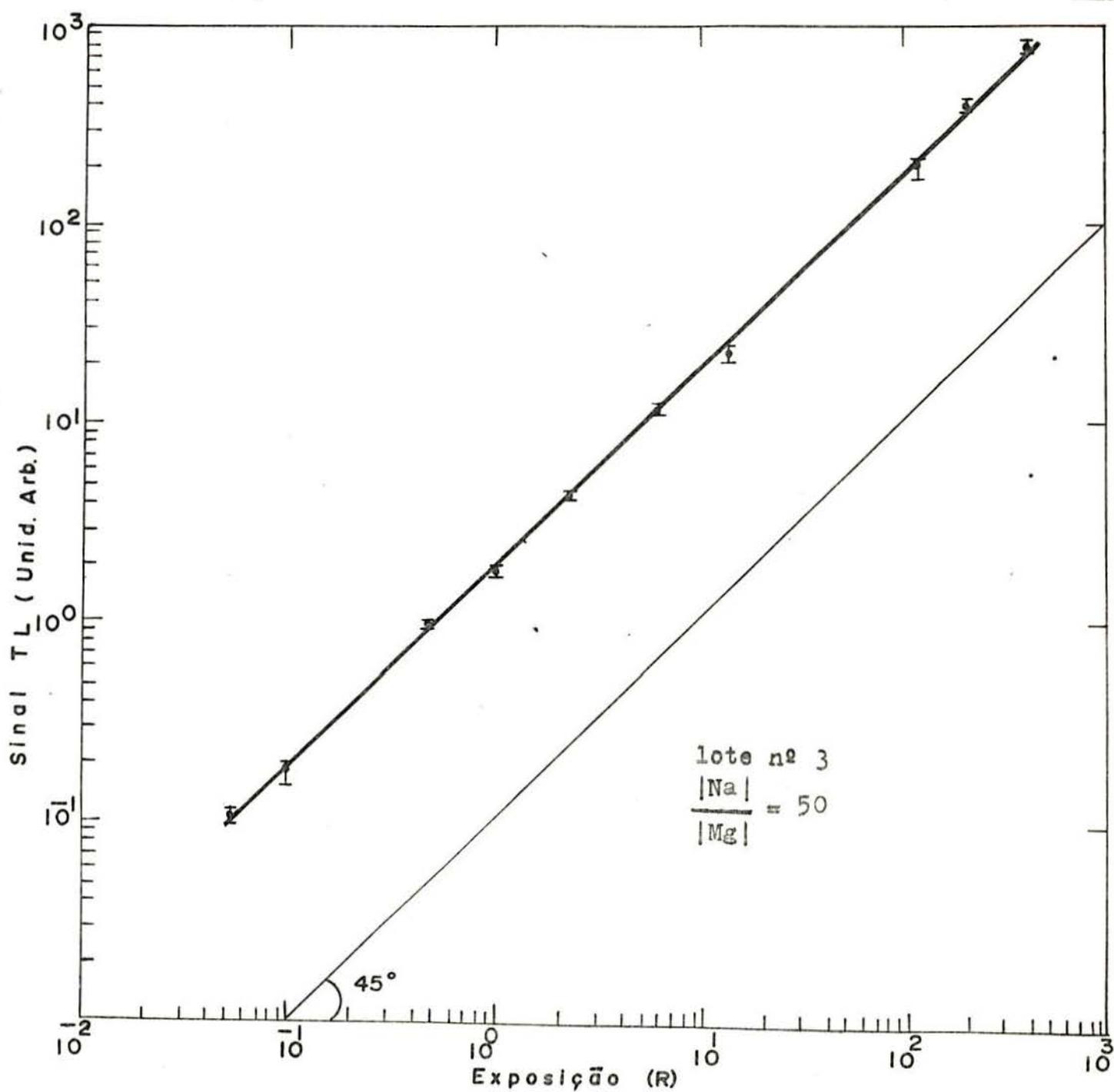


FIGURA 24 - Curva da resposta TL em função da exposição à radiação gama da fonte de Co^{60} para as pastilhas sinterizadas de LiF dopado com 1 ppm de Mg e 50 ppm de Na, sinterizadas a 500°C durante 2 horas

ma hora e após lidas para determinar-se a leitura de dose nula. O valor médio encontrado foi em torno de 40 mR.

Quanto à resistência ao manuseio, o pó após compactado e sinterizado a 500°C durante 2 horas, apresentava pequena resistência, o produto tinha de ser manipulado com cuidado para não haver ruptura da pastilha e conseqüente perda de pó.

5.7. COMPARAÇÃO ENTRE AS SENSIBILIDADES TL DAS PASTILHAS PRODUZIDAS E DOS TLD-100 EXTRUDADOS.

Com o objetivo de comparar a sensibilidade entre os lotes estudados e destes com os dosímetros extrudados (TLD-100), tomou-se cinco amostras de cada lote, cada amostra com 150 mg de massa, e cinco dosímetros extrudados, cada um com 30 mg, procedeu-se o tratamento térmico padrão. Após o conjunto de dosímetros foi irradiado com aproximadamente 1R e 24 horas depois foram lidos. Uma comparação mais geral pode ser vista na tabela 5.1, onde a resposta TL foi normalizada para o dosímetro extrudado que apresentou melhor sensibilidade. Os valores ali apresentados é uma média de 5 leituras.

TABELA 5.1

Comparação entre as sensibilidades dos lotes de pastilhas sinterizadas e dos TLD-100 extrudados.

AMOSTRA	RESPOSTA TL/mg.EXPOSIÇÃO
1 - TLD-100	1
2 - lote nº1	0,18
3 - lote nº2	0,39
4 - lote nº3	0,35

O lote de pastilhas que apresentou melhor sensibilidade foi o nº 2, possuindo 39% da sensibilidade do TLD-100. Se compararmos a curva de emissão deste lote, figura 12.b, com a curva de emissão das pastilhas que possuem maior concentração de Mg e menor concentração de Na de que este lote, figura 15, podemos ver que a

sensibilidade destas pastilhas tiveram um aumento de 73%, este aumento deve-se a diferença nas concentrações dos dopantes e no tempo de sinterização.

As curvas de resposta TL em função da exposição recebida, para todos os lotes, apresentam linearidade no intervalo de 50 mR a 400 R, acreditando-se que para exposições inferiores a 50 mR esta linearidade seja também válida. Estes resultados concordam com o obtido para o TLD-100 que apresentou linearidade neste mesmo intervalo de exposições.

No teste de uniformidade de produção, os banhos apresentaram desvio padrão do valor médio menor ou igual a 10%, enquanto os TLD-100 apresentaram igual a 14%, isto mostra que a uniformidade de produção das pastilhas foi boa em relação a dos TLD-100, de modo que o método utilizado no crescimento dos cristais proporciona a obtenção de pastilhas homogêneas.

Em relação a leitura de dose nula, os lotes, em geral, apresentaram um valor médio relativamente alto em comparação com o valor médio encontrado para o TLD-100.

Quanto à resistência ao manuseio, os lotes 1 e 2, que foram sinterizados a 800°C, apresentaram resistência equivalente a dos TLD-100 extrudados. Enquanto que o lote nº 3, que foi sinterizado a 500°C, apresentou pequena resistência ao manuseio, pois tinha de ser manipulado com cuidado para não haver ruptura da pastilha.

Devido ao fato de não termos equipamentos disponíveis para realizar medidas de resposta TL em função da energia do fóton, não foi possível obter tal gráfico, mas podemos ter uma idéia geral dessa dependência, analisando as curvas do gráfico mostrado na figura 27, apêndice 9.1. Para energias abaixo de 100 KeV, o LiF apresenta uma acentuada dependência com a energia do fóton, sendo que o fósforo dopado com Na e Mg possui maior dependência do que o dopado somente com Mg. Isto deve-se a presença de Na, que possui número atômico alto e com isto aumenta o número atômico efetivo do fósforo dopado.

5.8. REUTILIZAÇÃO DAS PASTILHAS SINTERIZADAS

As amostras provenientes de diferentes lotes foram submetidas a repetidos ciclos de irradiação-leitura. A exposição variou de 1 a 10R para cada ciclo. Nenhuma mudança na sensibilidade foi observada para 10 ciclos repetidos.

6. CONCLUSÕES

(1) A experiência mostrou que os dosímetros TL de LiF sinterizados podem perfeitamente serem produzidos no Brasil, necessitando, para isto, de LiF o mais puro possível e equipamentos adequados.

(2) Esse estudo inicial mostrou que as pastilhas sinterizadas de LiF são baratas, suficientemente sensíveis à radiação ionizante, fáceis de serem produzidas e, por isso, podem ser empregadas na dosimetria pessoal.

(3) A uniformidade de produção foi boa, de modo que o método utilizado no crescimento dos cristais proporciona a obtenção de pastilhas homogêneas, provenientes de diferentes fornadas.

(4) O tempo de sinterização, após 3h, não possui grande influência nem na sensibilidade e nem na resistência da amostra para o uso a que se destina.

(5) A sensibilidade TL dos dosímetros produzidos é determinada essencialmente pelo teor de Mg no mesmo.

(6) Os dosímetros sinterizados produzidos em nosso laboratório apresentam linearidade no intervalo de exposição a que foram submetidos (50 mR a 400 R), sendo essa linearidade igual a dos dosímetros extrudados (TLD-100).

(7) A principal desvantagem, neste método de produção de dosímetros, está no tempo consumido para confeccionar os lotes, que devido ao equipamento disponível, é relativamente longo.

7. SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS

A interpretação dos fatos observados neste trabalho levaram a conclusão que as pastilhas sinterizadas produzidas em nosso laboratório, podem ser empregadas como dosímetros termoluminescentes. Entretanto outros parâmetros podem ser variados com o objetivo de obter-se uma melhora na sua sensibilidade.

Para trabalhos futuros, referentes ao estudo das pastilhas sinterizadas de LiF como dosímetro termoluminescente, é sugerido:

- (1) investigar os efeitos da adição de Ti no cristal;
- (2) estudar os efeitos de diversas concentrações de Na e Mg na sensibilidade das pastilhas, determinando a "concentration quenching";
- (3) determinar a resposta do dosímetro com a energia da radiação;
- (4) estudar o desvanecimento à temperatura ambiente para as pastilhas sinterizadas, durante pelo menos 6 (seis) meses;
- (5) efetuar medidas de absorção ótica para estabelecer a relação entre os centros de cor e os de termoluminescência.

8. BIBLIOGRAFIA

1. BJARNGARD, B. E. - "Proc. 1st. Int. Conf. on Medical Physics"; Harrogate - (1965).
2. CAMERON, J. R.; SUNTHARALINGAN, N. and KENNEY, G. N. - "Thermoluminescent Dosimetry"; The University of Wisconsin Press - (1968).
3. COX, F. M. - "New Solid Lithium Thermoluminescent Dosimeters"; For Presentation at the Health Physics Society Annual Meeting, Denver, Colorado 16-20 June - (1968).
4. DANIELS, F. - "Thermoluminescence and Related Properties of Crystals"; Presented at the Symp. on Chemical and Physics of Radiat. Dosimetry, Technical Command, Army Chemical Center, Maryland - (1950).
5. DANIELS, F. and RIEMAN, W. P. - "Thermoluminescent Dosimeter"; Final Rept. Proj. 4-12-80-001, Chemical Procurement Agency - (1954).
6. FERREIRA, M. M. - "CaSO₄:Dy e/ou Tm, Estudo de Suas Propriedades Para Aplicação em Dosimetria"; Tese de Mestrado, IEA-DT-106 - (1979).
7. GRANT, R. M. and CAMERON, R. J. - Journal Appl. Physics 37, 3791 - (1966).
8. HARRIS, A. M. and JACKSON, J. H. - "On Low Temperature Annealing of TLD LiF"; Health Physics, 18(1), 162-164 - (1970).
9. JOHNS, H. E. and CUNNINGHAM, J. R. - "The Physics of Radiology"; Charles C. Thomas, Springfield, Illinois - (1978).
10. MCKINLAY, A. F. - "Thermoluminescence Dosimetry"; Medical Physics Handbook, vol. 5 - (1981).

11. NIEWIADOMSKI, T.; JASINSKA, M. and RYBA, E. - "Sintered TL Dosimeters"; Proceeding of The Third International Conference on Luminescence Dosimetry, Riso Report n^o 249 - (1971).
12. NIEWIADOMSKI, T. - "Pressure Deformation and Recovery of Thermoluminescence in LiF"; Health Physics Pergamon Press, vol. 31(oct) pp 373-376 - (1976).
13. OBERHOFER, M. and SCHARMANN, A. - "Applied Thermoluminescence Dosimetry"; Published For The Commission Of The European Communities, EUR 6990 EN - (1981).
14. OKUNO, E. - "Propriedades Termoluminescente do Fluoreto de Cálcio Natural"; Universidade de São Paulo, Tese de Doutorado - (1971).
15. STOEBE, T. G. and WATANABE, S. - "Thermoluminescence and Lattice Defect in LiF"; Phys. Stat. Sol. (a) 29, 11 - (1975).
16. "Technical Recommendations For The Use Of Thermoluminescence For Dosimetry in Individual Monitoring For Photons and Electrons From External Sources"; Commission of the European Communities, EUR 5358e, Luxembourg - (1975).
17. WALD, J.; DeWERD, L. A. and STOEBE, T. G. - "Long Term Recycling Characteristics of LiF (TLD-100) Dosimeter Material"; Health Physics vol. 33, pp 303-310 - (1977).
18. WATANABE, S. - "Pre-and-post Annealing Properties of Low Temperature Glow Peaks 2 and 3 in LiF:Mg"; Publicação IEA n^o 233 - (1971).
19. ZIMMERMAN, D. W.; RHYNER, C. R. and CAMERON, J. R. - "Thermal Annealing effects on the Thermoluminescence of LiF"; Health Physics, 12, 526 - (1966).

20. "Radiation Quantities and Units" - ICRU Report 33 - (1980).
21. SCAFF, Luiz A. M. - "Bases Físicas da Radiologia: Diagnóstico e Terapia" - São Paulo, Sarvier, (1979).
22. "Personnel Dosimetry Systems for External Radiation Exposures" IAEA, Viena, (1970).

9. APÊNDICE

9.1. COMPARAÇÃO ENTRE AS CARACTERÍSTICAS TERMOLUMI-
NESCENTES DO LiF-TLD E LiF-PTL.

O fluoreto de lítio como dosímetro TL é comercializado sob duas formas distintas em sua composição. A Harshaw produz os chamados TLD que possui como elementos constituintes (13):

- fluoreto de lítio 1.000.000 partes em peso;
- fluoreto de magnésio 400 partes em peso;
- crioleto de lítio 200 partes em peso;
- fluoreto de lítio titânio 55 partes em peso.

A Desmarquest & CECSA, francesa, produz os chamados PTL, estabilizados com sódio (Na), cujos elementos constituintes são (13):

- fluoreto de lítio 1.000.000 partes em peso;
- fluoreto de magnésio 200 partes em peso;
- fluoreto de sódio 10.000 a 20.000 partes em peso.

A curva de emissão do LiF PTL é diferente da curva do TLD, pois não apresenta o pico 3, como pode ser visto na figura 25.

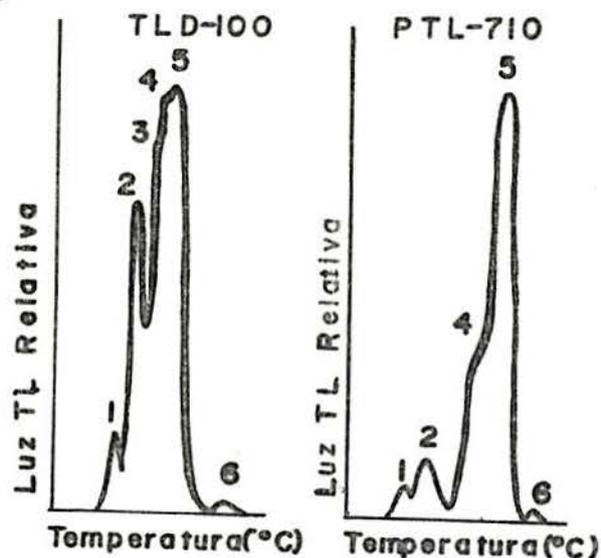


FIGURA 25 - Curvas de emissão do LiF TLD-100 e LiF PTL-710, não submetidos a nenhum recozimen-
to particular. (Oberhofer, 1981) (13).

O pico principal normalmente usado para os fins dosimétricos, é o pico 5, cuja temperatura está em torno de 225°C. A correspondente armadilha é muito estável. O LiF-TLD apresenta picos a baixas temperaturas, picos 1, 2 e 3 que são relativamente instáveis e devem ser eliminados por tratamentos térmicos, sendo que o pré-aquecimento padrão é 400°C por 1 hora e 80°C por 24 horas. O LiF-PTL possui os picos 1 e 2 muito fracos e o pico 3 praticamente não existe, dessa forma o dosímetro pode ser reutilizado repetidamente sem regeneração. Todavia, a regeneração faz-se necessária quando o dosímetro é fortemente irradiado, e consiste de um pré-aquecimento a 500°C por 30 minutos seguido de um resfriamento rápido (13).

O efeito estabilizante do sódio no LiF-PTL é notadamente marcante, ao analisarmos as curvas de emissão do TLD e PTL, ambas sofrendo tratamento térmico a 210°C. A altura do pico 2 aumenta rapidamente com o tempo de aquecimento, após 30 segundos de aquecimento chega a alcançar o pico 5 que decresce com o tempo. No LiF-PTL, os picos 2 e 5 mostram-se praticamente constantes com o tempo de aquecimento, como pode ser visto na figura 26.

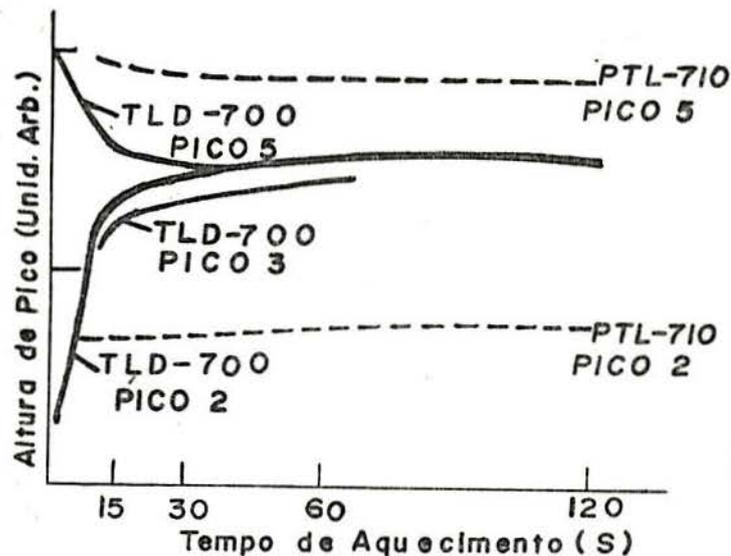


FIGURA 26 - Efeito do tratamento térmico a 210°C na altura de picos do LiF TLD-100 e LiF PTL-710. (Oberhofer, 1981) (13).

Para baixas energias, abaixo de 100 KeV, o LiF-PTL mostrou ser mais dependente da energia que o LiF-TLD, isso deve-se a presença de sódio, que possui número atômico alto, e está presente com uma concentração relativamente alta (1 a 2% em peso) e com isso aumenta o número atômico efetivo. As curvas de dependência de energia para esses dois fósforos podem ser vistas na figura 27 (16).

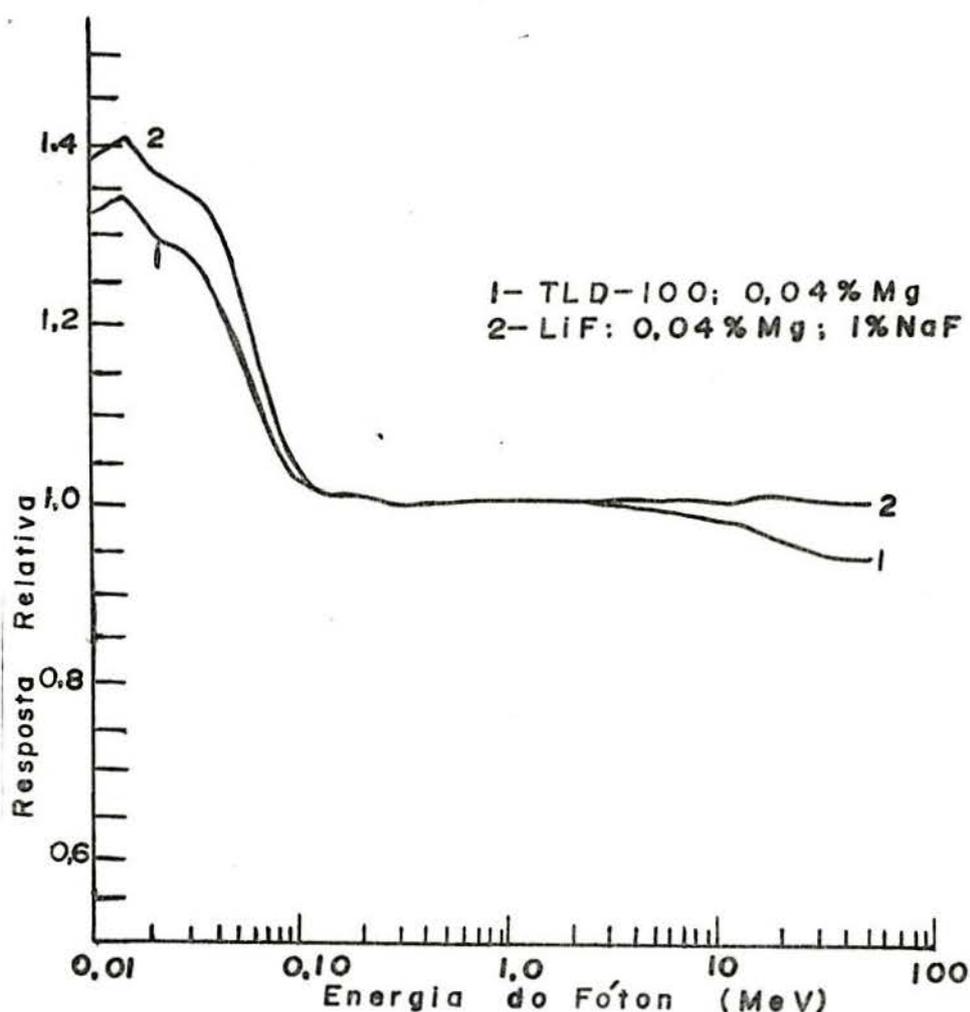


FIGURA 27 - Resposta de dois dosímetros TL de LiF com dopagem diferente, para doses absorvidas no ar normalizadas para fótons de 1 MeV. (EUR 5853e). (16).

As temperaturas máximas de emissão, bem como as meia-vidas das correspondentes armadilhas a 200°C são diferentes para ambos os dosímetros e estão sumarizadas na tabela 9.1 (13).

TABELA 9.1

Temperaturas de picos e meia-vidas das armadilhas correspondentes, para o LiF-TLD, PTL.

Tipo de fósforo	Número do pico	Temperatura máxima do pico (°C)	Meia-vida
LiF-TLD	1	65	5 min
	2	120	10 h
	3	160	0,5 anos
	4	195	7,0 anos
	5	210	80,0 anos
	6	275	não medida
LiF-PTL	1	80	20 min
	2	130	80 h
	5	220	$1,3 \times 10^7$ anos
	6	280	não medida

9.2. DOSÍMETROS SINTERIZADOS DE LiF

Niewiadomski e seus colaboradores (11) descreveram um novo método de preparação de LiF na forma sólida, baseando-se na compactação a frio do pó e posterior sinterização. Um estudo das propriedades TL mostraram que devido a compactação ocorre uma perda de sensibilidade e uma mudança na forma da curva de emissão. O dosímetro quando sinterizado torna-se semi-transparente e suas propriedades TL e mecânicas são melhoradas.

O estudo mostrou que o fósforo de LiF dopado com Mg quando compactado a 100 atm, apresenta uma perda de sensibilidade por um fator de 10 a 16, mudando a forma da curva de emissão. Mas as mudanças induzidas pela pressão são termicamente instáveis, pois a curva é restaurada quando aquecida a temperaturas maiores, que 200°C mesmo por um curto intervalo de tempo. O LiF dopado com Cu, Ag não altera a forma da curva quando compactado, após sinterizado a sensibilidade diminui, pois a alta sensibilidade TL desse fósforo é obtida por meio de "freezing" de defeitos cristalinos obtidos pelo rápido resfriamento.

Em geral as pastilhas quando prensadas e aquecidas apresentam boas propriedades dosimétricas, elas podem ser usadas com um cuidado especial devido a sua pouca resistência mecânica. Mas a não-radiação induzida é alta e a perda de pó também, com isto é difícil utilizar para medidas de pequenas doses. Após sinterizadas estes problemas diminuem consideravelmente. As propriedades básicas, tais como a dose, fadiga, dependência com a energia da radiação e procedimentos de recozimentos não são alterados pelo processo de sinterização.

Em outro trabalho, Niewiadomski (12) testando LiF com vários ativadores e procedentes de diferentes produtores notou que há uma considerável perda na TL e uma mudança drástica na forma da curva de emissão quando o fósforo é submetido a pressão, porém quando aquecido a temperaturas superiores a 350°C a TL é restaurada. Foi observado também que ocorre uma grande redução na termoluminescência quando o fósforo é primeiramente exposto à radiação e então prensado e que a TL diminui quando aumenta a pressão sobre o fósforo.

9.3. ALGUMAS APLICAÇÕES DOS DOSÍMETROS DE LiF

Muitos dos problemas dosimétricos relacionados ao emprego da radiação com fins terapêuticos podem ser solucionados com o uso de TLD. As principais vantagens dos dosímetros termoluminescentes residem nas suas dimensões reduzidas e extensa faixa de medida de doses, permitindo realizar medidas diretas sob condições impraticáveis para outras formas de dosímetros.

9.3.1. Aplicações Clínicas

Na medicina há duas áreas onde a aplicação dos TLD são importantes para medidas de doses (10,13):

- (1) radioterapias e
- (2) radiodiagnósticos.

9.3.1.1. Medidas de doses em radioterapias.

No passado, as dificuldades de prever precisamente as doses absorvidas em radioterapias através de cálculos, levaram ao desenvolvimento de técnicas de medidas "in vivo". As doses de entrada e saída podiam ser medidas com o uso de filmes e câmaras de ionização convencional, enquanto que medidas intracavitárias eram limitadas pelo tamanho mínimo das câmaras de ionização disponíveis (20 mm x 5 mm de diâmetro) (9,13).

A dosimetria termoluminescente mostrou ser uma técnica útil para uma série de propósitos, incluindo: a monitoração da dose do paciente, as medidas do rendimento do equipamento de terapia, controle da uniformidade do feixe de radiação, a medida do percentual de dose em profundidade com o uso de materiais equivalentes ao tecido humano, medidas de dose de entrada e saída, etc.

O LiF:Mg,Ti mostrou ser útil para tais propósitos, devido a pequena dependência da sua resposta com a energia das radiações, com isso minimiza o erro produzido pela radiação espalhada de baixa energia no organismo.

9.3.1.2. Medidas de doses em diagnósticos radiológicos.

Na área médica, a maior contribuição à exposição à radi

ações provêm dos radiodiagnósticos, estimados em 10 (dez) vezes a soma das contribuições da medicina nuclear e radioterapias. Por isso, novas técnicas de radiodiagnósticos foram introduzidas, envolvendo equipamentos complexos, e a dosimetria termoluminescente mostrou ser um método útil na comparação de doses absorvidas por pacientes que fazem uso dessas novas técnicas bem como por aqueles que utilizam as técnicas convencionais. Essas medidas de doses são importantes, pois procura-se aperfeiçoar os projetos de equipamentos a fim de reduzir a dose absorvida pelo paciente, e fornece dados para análises epidemiológicos da dose de radiação absorvida pela população.

O LiF:Mg,Ti é um dos fósforos TL utilizados para tais medidas, devido a sua quase equivalência ao tecido humano.

9.3.2. Dosimetria Pessoal

Os detetores TL, em contraste com os dosímetros fotográficos, são aproximadamente equivalentes ao tecido humano, possuem pequeno tamanho e alta precisão nas medidas, servem como dosímetros básicos para estimar doses provenientes de fótons no intervalo de energia de interesse bem como para detetar raios Beta e Neutrons.

A importância da dosimetria TL na monitoração pessoal esta baseada numa série de fatores:

- (1) os fósforos TL estão disponíveis em diversas formas sólidas, como: discos, cilindros, fitas extrudadas ou em matriz de teflon, pó, etc. Alguns materiais são quase equivalentes ao tecido humano e são amplamente independentes do ângulo da radiação incidente;
- (2) a leitura de dose é praticamente independente da taxa de dose até 10^{11} Rads/s;
- (3) em alguns materiais TL o desvanecimento a temperatura ambiente é muito pequena, sendo possível utilizá-los com exito por períodos superiores a 1 ano;
- (4) possuem suficiente sensibilidade, boa reprodutibilidade e podem ser reutilizáveis;
- (5) são passíveis de automatização.

Os sistemas que fazem uso da TLD satisfazem muitos dos requisitos exigidos para um dosímetro pessoal ideal. O LiF tem vantagens consideráveis sobre outros fósforos TL, já que ele é quase equivalente ao tecido humano e apresenta boa estabilidade, contudo a sua sensibilidade é ainda pequena.

9.3.3. Monitoração Ambiental

Os sistemas de detetores TL para a monitoração ambiental tem de cumprir certas exigências, tais como:

- (1) boa precisão e reprodutibilidade de medidas sobre o intervalo de exposição de interesse (10 a 100 mR);
- (2) baixo desvanecimento durante o período de exposição (3 a 12 meses);
- (3) insensível aos parâmetros ambientais, como temperatura, umidade, luz, etc;
- (4) aproximadamente equivalente ao tecido humano;
- (5) baixa auto-irradiação devido a radionuclídeos naturais;
- (6) possíveis de encapsular em suporte plástico a fim de prover o equilíbrio eletrônico secundário, blindagem contra raios-beta e luz bem como vedar à água;
- (7) técnicas de calibração para cada ciclo a fim de garantir alta precisão na conversão para exposições e para corrigir a fadiga, exposições transientes e leitura de dose nula.

Para aplicações ambientais, os principais dosímetros utilizados são discos ou bulbos de alta sensibilidade de LiF, CaF₂:Dy e CaSO₄:Dy,Mn devido a sua baixa fadiga e pequena sensibilidade à luz, sendo possível utilizá-los para monitoração por um longo intervalo de tempo.

9.3.4. Dosimetria de Neutrons

O lítio aparece na natureza sob duas formas de isótopos estáveis, ⁶Li e ⁷Li, e o fluoreto de lítio esta disponível com três composições isotópicas diferentes (2):

LiF natural (TLD-100, 7,4% de ⁶Li)

^6LiF enriquecido (TLD-600, 95,6% de ^6Li)

^7LiF enriquecido (TLD-700, aprox. 0,01 a 0,04% de ^6Li)

A principal contribuição para a TL após irradiado com neutrons térmicos provém das partículas alfa e trítio produzidos segundo a reação $^6\text{Li}(n,\alpha)^3\text{H}$. Devido a sua alta seção de choque de captura para neutrons térmicos, o ^6LiF é o fósforo TL que apresenta maior sensibilidade para neutrons térmicos (945 barns comparado com 0,033 barns para ^7LiF).

Devido as diferentes composições isotópicas, e em consequência as diferentes sensibilidades a neutrons térmicos e a raios gama, um campo misto de radiações gama e neutrons térmicos pode ser medido por uma combinação de dosímetros TLD-600 e TLD-700 ou mesmo TLD-100. O TLD-700 fornece a componente gama, o TLD-600 fornece a leitura de gamas mais neutrons, de modo que a diferença entre as leituras do TLD-600 e do TLD-700 nos dá a exposição aos neutrons térmicos. Em suma temos:

TLD-700: gama

TLD-600: gama + neutrons

TLD-600 - TLD-700: gama + neutrons - gama = neutrons.

Entretanto, uma série de fatores devem ser considerados ao se usar LiF na medida de neutrons térmicos(2):

- (1) o TLD-700 não possui ^7Li completamente puro, assim a quantidade de ^6Li existente pode ocasionar erros;
- (2) a curva de emissão para neutrons térmicos é um pouco diferente daquela devida aos raios gama;
- (3) a supralinearidade é muito menor para neutrons térmicos do que para raios gama;
- (4) tanto o TLD-600 como o TLD-100 possuem seções de choque muito alta para neutrons térmicos e, a menos que a amostra possua uma espessura bastante pequena, a auto-absorção pode introduzir erros consideráveis.

Para os TLD-100, 600 e 700, a sensibilidade aos neutrons rápidos é pequena. Contudo, a resposta do LiF aos neutrons rápidos pode ser aumentada se ele for intimamente misturado com materiais hidrogenosos, pois os neutrons rápidos sofrem rápida perda de energia ao colidir elasticamente com substâncias de bai

xo número atômico.

9.3.5. Medida de Doses nos Ossos

O LiF, na forma de pó, pode ser usado para medidas de radiações inacessíveis aos outros métodos. Por exemplo, colocando-se pó bastante fino de LiF nos interstícios de um osso irradiado é possível medir a dose de radiação por este recebida.

A TLD pode ser aplicada com sucesso para problemas de dosimetria em interfaces. Usando discos de LiF-Teflon de 5 a 10 microns de espessura pode-se estudar as variações na dose absorvida nas proximidades da interface tecido-osso.

9.3.6. Medida da Qualidade da Radiação

Em um grande número de experimentos na radiobiologia, variações no espectro de raios-X com a profundidade no tecido ou osso, por exemplo, pode influenciar consideravelmente nos resultados. Esta é a razão pela qual se verifica a composição espectral do campo de radiações em vários pontos. Para a determinação da energia efetiva do raio-X, dois TLD com diferentes respostas à energia podem ser usados: LiF, com uma fraca dependência com a energia da radiação e $\text{CaF}_2:\text{Mn}$ ou $\text{CaSO}_4:\text{Dy}(\text{Sm};\text{Tm})$ com uma acentuada dependência com a energia dos fótons na região entre 45 a 150 KeV.

Se uma amostra de cada fósforo é exposta simultaneamente a mesma radiação, de qualidade desconhecida, então a razão de suas respostas TL determinam essa qualidade. A técnica tem como vantagens principais permitir a realização de medidas em locais inacessíveis para outros métodos e o fato dos dosímetros não perturbarem o campo de radiação.

9.4. ALGUMAS DEFINIÇÕES BÁSICAS, UNIDADES E NORMAS EMPREGADAS NA DOSIMETRIA DE RADIAÇÕES

Esta parte do apêndice fez-se necessária pelo fato do pessoal da engenharia não estar familiarizado com as normas, de definições e unidades empregadas na dosimetria de radiações.

As definições, unidades e normas foram obtidas do ICRU 33 (20), do Scaff (21), do IAEA (22) e do Oberhofer (13).

9.4.1. Exposição

A exposição, X , é definida como o quociente entre o valor absoluto de carga total, dQ , de íons de mesmo sinal produzidos no ar e a massa, dm , de um certo volume, onde todos os elétrons, ou íons, secundários formados pelos fótons são completamente freados e coletados.

$$X = dQ/dm$$

A unidade especial desta quantidade é o Roentgen (R).

$$1R = 2,58 \cdot 10^{-4} \text{ C/Kg}$$

O Roentgen é a quantidade de radiação X ou gama tal que a emissão corpuscular em ar a ela associada, produz a liberação de 1 u.e.s. (unidade eletrostática de carga elétrica) de cada sinal em 1 cm^3 de ar nas CNTP (0°C e 760 mm Hg). O Roentgen é apenas definido para a radiação X ou gama, não sendo definido para outros tipos de radiação.

9.4.2. Dose Absorvida

A dose absorvida, D , é definida como o quociente $d\bar{E}$ por dm ;

$$D = d\bar{E}/dm$$

onde $d\bar{E}$ é a energia média cedida pela radiação ionizante para a matéria num elemento de volume de massa dm . A unidade, no sistema SI, é o Joule por quilograma (J/Kg), esta unidade recebe o

nome de gray (Gy).

$$1 \text{ Gy} = 1 \text{ J/Kg}$$

A unidade especial para dose absorvida é o Rad,

$$1 \text{ Rad} = 10^{-2} \text{ J/Kg} = 10^{-2} \text{ Gy}$$

O Rad é definido para qualquer tipo de radiação (alfa, beta, gama, raios-X, etc) e depende fundamentalmente do material irradiado.

9.4.3. Unidade de Dose Equivalente (REM)

Para fins de proteção radiológica, é necessário levar em conta as diferenças entre os efeitos biológicos produzidos sob várias condições de irradiação, por exemplo: o tipo de radiação e qualidade espectral (distribuição em energia), distribuição espacial da dose no tecido irradiado, a taxa de dose e o tipo de dose (aguda ou crônica).

Fez-se a devida ponderação por meio de um fator modificador da dose absorvida cujos valores numéricos são recomendados pela "International Commission on Radiological Protection" (ICRP).

A dose equivalente, é assim, numericamente igual a dose absorvida em Rad multiplicada pelo fator modificador apropriado. A unidade de dose equivalente é o REM (Roentgen - Equivalent- Man).

Para dosimetria de radiações externas o único fator modificador recomendado pela ICRP é o fator de Qualidade, QF, que depende do tipo de radiação bem como de sua energia.

9.4.4. Novo Sistema Internacional de Unidades usado no Campo da Dosimetria de Radiações

O Sistema Internacional (SI) de unidades são um conjunto consistente de unidades para uso em todos os ramos da ciência. A Conferência Geral em Pesos e Medidas atuando sob recomendação da Comissão Internacional em Unidades e Medidas em Radiações, adotou nomes especiais de unidades para o Sistema Internacional, usado em conexão com radioatividade.

A unidade de atividade, no sistema SI, é o Becquerel (Bq) igual a uma transformação nuclear por segundo.

$3,7 \cdot 10^{10}$ Bq é igual a 1 Curie (Ci) exatamente.

A unidade de dose absorvida, no sistema SI, é o gray (Gy) igual a um Joule/Kilograma (J/Kg).

1 Gy é igual a 100 Rads exatamente.

A unidade de dose equivalente, no sistema SI, é o Joule/Kilograma (J/Kg). Foi proposto pelo ICRP que esta unidade fosse chamada de Sievert (Sv).

1 Sv é igual a 100 Rems exatamente.

A unidade de exposição, no sistema SI, é o Coulomb/Kilograma (C/Kg).

1 C/Kg = 3876 Roentgens.

Relação entre as unidades antigas e atuais:

$$1 \text{ Ci} = 3,7 \cdot 10^{10} \text{ Bq}$$

$$1 \text{ Rad} = 10^{-2} \text{ Gy}$$

$$1 \text{ Rem} = 10^{-2} \text{ Sv}$$

$$1 \text{ R} = 2,58 \cdot 10^{-4} \text{ C/Kg}$$

9.4.5. Normas em Proteção Radiológica

Em 1958 a ICRP modificou as normas de proteção radiológica até então vigentes. Estas modificações foram introduzidas, principalmente devido à possibilidade de Leucemia, envelhecimento prematuro e defeitos genéticos originados pelas irradiações crônicas.

Estas normas se aplicam à produção, processamento, manuseio, uso, armazenamento, transporte e eliminação de material radioativo natural, artificial e outras fontes de radiação. Estas normas não se aplicam a radiação proveniente de armas nucleares, doses ministradas a pacientes de exame ou tratamento médico e doses resultantes de radiação natural.

A ICRP divide as pessoas sujeitas à exposição a radiação ionizante em três grupos principais:

(1) Grupo ocupacional - qualquer adulto que pode ser irradiado de maneira regular ou ocasional, durante ou em consequência do

seu trabalho.

- (2) Grupos especiais - a) adultos que trabalham nas vizinhanças de áreas radioativas controladas;
- b) adultos que entram ocasionalmente em áreas controladas;
- c) pessoas que moram nas vizinhanças de áreas controladas.
- (3) População em geral.

Vejamos agora algumas normas de proteção para cada um dos grupos:

(1) Grupo ocupacional- para exposições externas de órgãos críticos aplicável nas exposições de corpo inteiro com radiações penetrantes que atinjam a cabeça, tronco, órgãos formadores de sangue, órgãos genitais ou os olhos. A dose máxima permitida (DMP), acumulada em qualquer idade, para o órgão mais crítico, não deve exceder 5 Rem multiplicado pelo número de anos que exceda a idade de 18 anos. Além disso, a dose não deve exceder 3 Rem em nenhum período de 13 semanas consecutivas.

Dessa forma, tem-se:

$$DMP = 5(N-18) \text{ Rem}$$

onde N é a idade da pessoa, maior de 18 anos.

O que existe na prática, apenas para orientação de trabalhadores com radiação ionizante, são valores derivados dos máximos permissíveis para períodos de 1 mês, 1 semana ou 1 hora e são: 400 mRem por mês ou 100 mRem por semana ou 2,5 mRem por hora.

(2) Grupos especiais- pessoas que trabalham nas vizinhanças de áreas controladas ou que nelas penetrem ocasionalmente: um trabalhador pertencente a este grupo de população não deverá receber, em qualquer ano, uma dose de corpo inteiro que exceda 1,5 Rem/ano.

- pessoas que moram nas vizinhanças de áreas controladas: pessoas dessa categoria não deverão receber em qualquer ano uma dose de corpo inteiro que exceda 0,5 Rem/ano.

(3) População em geral- a dose máxima permitida é de 5 Rem em 30 (trinta) anos.