



**DOSIMETRIA DE NÉUTRONS USANDO MATERIAL
TERMOLUMINESCENTE E KBr**

Adelia Sahyun

**DISSERTAÇÃO E TESE - IEA 126
IEA - DT - 126**

MAIO/1979

CONSELHO DELIBERATIVO

MEMBROS

Klaus Reinach – Presidente
Roberto D'Utra Vaz
Helcio Modesto da Costa
Ivano Humbert Marchesi
Admar Cervellini

PARTICIPANTES

Regina Elisabete Azevedo Baretta
Flávio Gori

SUPERINTENDENTE

Rômulo Ribeiro Pieroni

**DOSIMETRIA DE NÉUTRONS USANDO MATERIAL
TERMOLUMINESCENTE E KBr**

Adelia Sahyun

**Dissertação para obtenção do Título de "Mestre em Ciências
e Tecnologia Nuclear" – Orientador Prof. Dr. Shiguo
Watanabe. Apresentada e defendida em 20 de setembro de
1978, na Escola Politécnica da Universidade de São Paulo.**

**INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA
SÃO PAULO – BRASIL**

Série DISSERTAÇÃO E TESE IEA

INIS Categories and Descriptors

E41

B25

Thermoluminescent dosimetry

Fluorite

Neutron detection

Thermoluminescence

Nota: A redação, ortografia e conceitos são de responsabilidade dos autores.

SUMÁRIO

Página

CAPÍTULO I

INTRODUÇÃO	1
1.1 – Considerações Gerais	1
1.2 – Definição da Termoluminescência	3
1.3 – Modelo Simples de Termoluminescência	3
1.4 – Principais Características da Termoluminescência	4
1.4.1 – Curva de Emissão	4
1.4.2 – Estabilidade	5
1.4.3 – Sensibilidade	5
1.4.4 – Curva de Resposta TL à Exposição	5
1.4.5 – Dependência com a Energia da Radiação	5
1.5 – Dosimetria de Nêutrons	5
1.6 – Descrição do Método de Autoativação	6
1.7 – Objetivos desse Trabalho	6

CAPÍTULO II

PARTE EXPERIMENTAL	7
2.1 – Materiais Utilizados	7
2.2 – Mistura Usada, Tamanho dos Grãos e Tratamento Térmico	7
2.3 – Irradiação das Amostras e Fontes de Irradiação	8
2.3.1 – Irradiação das Amostras	8
2.3.2 – Fontes de Irradiação	8
2.4 – Sistema Leitor Utilizado	10
2.5 – Recozimento Depois da Irradiação	10

CAPÍTULO III

MEDIDAS E RESULTADOS EXPERIMENTAIS	11
3.1 – Determinação da Melhor Proporção da Mistura	11
3.2 – Irradiação da Amostra na Fonte de Cobalto 60	11
3.3 – Determinação Experimental dos Isótopos Responsáveis pela Ativação da Amostra	15
3.4 – Determinação do Intervalo de Tempo que Deve Ser Observado entre a Irradiação e a Leitura TL dos Dosímetros	18
3.5 – Irradiação nas Várias Fontes de Nêutrons e Respostas Obtidas	18
3.6 – Resposta TL à Dose de Nêutrons	21
3.7 – Determinação da Mínima Fluência Detetável	21

CAPÍTULO IV	
CONCLUSÕES FINAIS	25
APÊNDICE A	
INTERAÇÃO DE NÊUTRONS COM A MATÉRIA	27
APÊNDICE B	
CARACTERÍSTICAS DA FONTE DE CALIFÓRNIO 252	31
LOCAIS DE IRRADIAÇÃO	33
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	38

DOSIMETRIA DE NÉUTRONS USANDO MATERIAL TERMOLUMINESCENTE E KBr*

Adelia Sahyun

RESUMO

O CaF_2 natural ou artificialmente impurificado por causa da presença do isótopo ^{44}Ca captura nêutrons térmicos, utivando-se, podendo, então, ser usado como dosímetro de nêutrons térmicos. A meia-vida relativamente longa do ^{45}Ca , torna o material pouco útil como dosímetro de nêutrons térmicos. ^{41}K , ^{79}Br e ^{81}Br são também ativáveis por captura de nêutrons térmicos. Além de serem encontrados em maior abundância natural, possuem secção de choque de captura maior e meias-vidas bem mais curtas que o ^{44}Ca .

No presente trabalho foi investigada ^{sc} a mistura de CaF_2 natural e KBr como dosímetro de nêutrons térmicos comparada com a fluorita sem material adicional. Em primeiro lugar, verificou-se que uma mistura dessas substâncias na proporção de cerca de 50% - 50% em peso é a que apresenta maior sensibilidade à detecção de nêutrons térmicos. Em segundo lugar foi mostrado que, para leituras dentro de 30 a 40 horas após a irradiação neutrônica, os elementos ativados ^{42}K , ^{80}Br e ^{80m}Br são os que contribuem predominantemente, mas para um tempo bem maior, superior a 4 a 5 dias, o ^{82}Br também passa a contribuir. Em terceiro lugar, verificou-se que a mistura responde cerca de 13 vezes mais do que a fluorita sem KBr a nêutrons térmicos. Para a mistura em estudo, a menor fluência detectável foi da ordem de 10^9 n/cm^2 .

1 - INTRODUÇÃO

1.1 - Considerações Gerais

O objetivo da dosimetria da radiação consiste em medir a exposição da radiação X ou γ bem como a energia absorvida dos raios X, γ e das partículas carregadas ou nêutrons.

A necessidade de medir a quantidade total de radiação a que o organismo é submetido, deve-se ao fato de que experiências realizadas revelaram que a radiação ionizante tem efeitos danosos sobre o corpo humano, além disso seu campo de aplicação estende-se à Física, Biologia, Medicina, Oceanografia e Agricultura.

A dosimetria da radiação baseia-se na medida dos efeitos da radiação sobre um material. Assim, na medida da exposição dos raios X ou γ pode-se usar a ionização por eles produzidas num gás, em dadas condições de pressão e temperatura. A mudança de coloração em certas tintas ou cristais, o enegrecimento produzido numa emulsão fotográfica, a variação de condutividade provocada em certos semicondutores, e outros efeitos nos materiais, provocados pela radiação podem ser usados na detecção e na dosimetria da radiação.

A medida em que foram alcançados progressos significativos no campo da dosimetria, definiram-se grandezas físicas, unidades radiológicas adequadas e diferentes métodos de medidas experimentais.

(*) Financiado em parte pela Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA).
Aprova para publicação em Setembro/1978.

As principais grandezas físicas ligadas à dosimetria da radiação são^(6,7,17):

Exposição (X) – é o quociente de ΔQ por Δm , sendo ΔQ a soma das cargas elétricas dos íons de um mesmo sinal que são produzidos no ar quando todos os elétrons (negativos e positivos) liberados pelos fótons num volume elementar de ar, de massa Δm , são completamente freados no ar.

$$X = \Delta Q / \Delta m$$

cuja unidade é o Röentgen (R), que é a exposição da radiação X ou γ necessária para produzir no ar $2,58 \times 10^{-4}$ C/Kg de ar.

Dose Absorvida (D) – é o quociente da energia transferida pela radiação ionizante à matéria, num volume elementar, pela massa da matéria nesse volume. A sua unidade é o rad que equivale a 100 ergs/g.

Dose Equivalente (H) – é o produto da dose absorvida pelos fatores da qualidade, da distribuição da dose absorvida, e por outros fatores modificadores necessários, que denotam modificações de efetividade, na produção de efeitos biológicos, de uma dada dose absorvida. A unidade de dose equivalente é o rem.

Segundo a última resolução do Bureau International des Poids et Mesures, o rad, o Roentgen e o rem foram substituídos pelo gray ($1 \text{ Gy} = 1 \text{ J.Kg}^{-1}$), Coulomb por Kilograma (e.Kg^{-1}) e pelo Sievert ($1 \text{ Sv} = 1 \text{ J.Kg}^{-1}$).

Porém, o próprio Bureau Internacional des Poids et Mesures estabeleceu que nos próximos dez anos, pode-se usar uma ou outra unidade do mesmo tipo.

Vários métodos experimentais foram desenvolvidos. Dentre eles salienta-se, no presente trabalho a "dosimetria do estado sólido". Como o próprio nome indica, os dosímetros de estado sólido funcionam baseados nos efeitos da radiação num material sólido. Dentre esses efeitos, salientam-se:

- a) coloração ou descoloração
- b) radiofotoluminescência
- c) degradação da luminescência
- d) ressonância do spin do elétron
- e) termoluminescência
- f) outros (com variação de condutividade, emissão exoeletrônica, etc.)

De todos estes, o que maior atenção recebeu pelas múltiplas vantagens que apresenta, foi o "dosímetro termoluminescente" (DTL ou TLD), que possui as seguintes propriedades:

- a) o TLD cobre um intervalo entre 10^{-2} e 10^6 R de exposição.
- b) sensibilidade à radiação γ , β , α , η , p .
- c) o dosímetro é diminuto, de fácil uso.
- d) a leitura de dose é feita rapidamente.

e) baixo custo.

1.2 – Definição da Termoluminescência

A maioria dos cristais iônicos encontrados na natureza emitem luz durante o aquecimento realizado após terem sido submetidos à radiação ionizante. É o que se chama Termoluminescência (TL).

Sabe-se que Boyle⁽²⁷⁾ em 1663, observou a emissão de luz pelo diamante, quando o mesmo era aquecido. O mesmo fenômeno também foi observado por outros pesquisadores^(5,27).

Apenas em 1895 a Termoluminescência (TL) começou a ser utilizada para dosimetria e quem o fez foi Wiederman⁽³³⁾ que observou a emissão da luz TL pelo $\text{CaSO}_4 \cdot \text{Mn}$ quando esse material era exposto à luz ultravioleta (UV) e aquecido até uma temperatura de cerca de 200°C.

O grande desenvolvimento no estudo da TL como um fenômeno de estado sólido e sua aplicação em dosimetria da radiação é recente e esse desenvolvimento se deve a dois grupos de estudos; o do Naval Research Laboratory^(24,31) e o da Universidade de Wisconsin⁽⁹⁾. Paralelamente a esses dois grupos outro grupo chefiado por Anatov-Romanovsky⁽¹⁾ desenvolveu e usou pela primeira vez, dosímetros TL para monitoração pessoal, usando $\text{SrS}:\text{Eu}$ e $\text{SrS}:\text{Sm}$.

Schulman⁽¹¹⁾ e seus colaboradores do Naval Research Laboratory produziram com sucesso, dosímetros termoluminescentes (TL) baseados em $\text{CaF}_2 \cdot \text{Mn}$ e posteriormente $\text{CaF}_2 \cdot \text{Dy}$, enquanto isso Cameron⁽⁴⁾ e seus colaboradores, adeptos do trabalho de Daniels, especializaram-se em $\text{LiF}:\text{Mg}$ realizando um amplo estudo sobre a TL desse material.

A fluorita, CaF_2 natural, é um cristal iônico termoluminescente (TL). Schayàs⁽²⁶⁾ e seus colaboradores estudaram as propriedades TL do CaF_2 natural e seu uso como dosímetro da radiação.

A fluorita (CaF_2) é encontrada em grande quantidade e variedade no Brasil e foi bastante estudada pelo grupo chefiado pelo Dr. Watanabe, S.^(20,8), nos laboratórios do Instituto de Energia Atômica. Essa fluorita é proveniente de Criciúma, Santa Catarina, se apresentando em várias tonalidades, que variam de acordo com as suas impurezas. Dos estudos realizados, observou-se que a de coloração verde é a de maior sensibilidade⁽²⁰⁾.

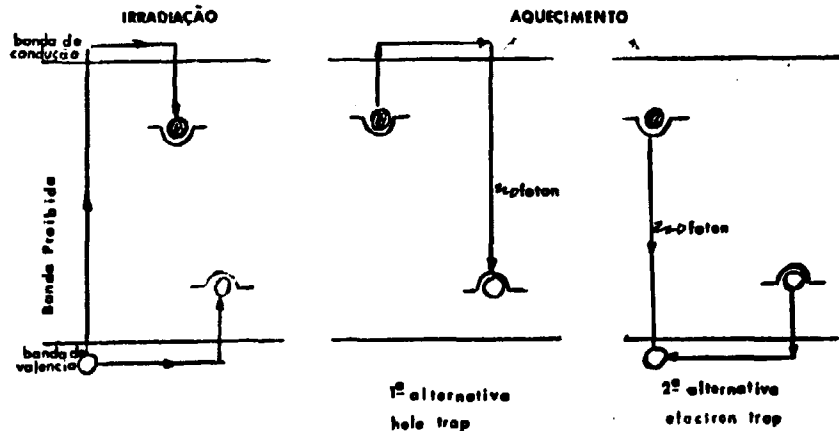
1.3 – Modelo Simples da Termoluminescência

Quando um cristal iônico é exposto a uma radiação ionizante, parte dessa energia é armazenada no cristal. Essa energia pode ser liberada sob a forma de luz aquecendo-se o cristal (após a irradiação) desde a temperatura de irradiação, que no caso é a temperatura ambiente, até uma temperatura conveniente. O material que emite fótons através de um aquecimento, é chamado de fósforo termoluminescente ou simplesmente fósforo.

O fenômeno da termoluminescência, ainda não é completamente explicado pela teoria, porém ele pode ser explicado qualitativamente, por meio de um modelo simples onde se leva em conta que nos cristais iônicos existem defeitos e impurezas.

A Figura a seguir (Pág. 4) dá uma idéia do que ocorre no cristal:

À exposição de um fósforo TL à radiação ionizante liberam-se elétrons da banda de valência (B.V) para a banda de condução (B.C.), fazendo com que fiquem lacunas na banda de valência^(28,25,19,16). Quando isso ocorre, os elétrons e as lacunas são livres e portanto vagam pelo cristal, até que se recombinem ou então acabem sendo capturados em armadilhas provocadas por



impurezas que dão origem a níveis de energia localizados na banda proibida do cristal, isto é, na região entre a banda de valência e a banda de condução. Esses elétrons capturados ficam em estados meta-estáveis de energia, aí permanecendo até que consigam uma energia igual ou superior à profundidade das armadilhas. Chama-se profundidade da armadilha, a energia necessária que deve ser fornecida ao elétron para recolocá-lo na banda de condução. A meia-vida ($T_{1/2}$) dos elétrons nas armadilhas é proporcional à profundidade das armadilhas. Uma vez que os elétrons voltaram para a banda de condução podem novamente: ser recapturados, sofrer recombinações ou cair em um centro de luminescência emitindo luz. O mesmo processo é válido, para lacunas que foram capturadas por armadilhas e posteriormente libertadas.

Na termoluminescência essa energia é fornecida através de uma estimulação térmica que é provocada pelo aquecimento do cristal.

Após a irradiação, podemos fazer com que o cristal retorne à sua condição inicial, desde que ele sofra um tratamento térmico adequado à temperaturas elevadas.

1.4 – Principais Características da Termoluminescência

1.4.1 – Curva de Emissão

Chama-se curva de emissão à curva que representa a intensidade de luz emitida em função da temperatura ou tempo durante o qual o fósforo é aquecido. Todo fósforo tem uma curva de emissão característica, portanto depende das armadilhas existentes no fósforo, que são função das impurezas e do tratamento térmico pré e pós irradiação a que o fósforo foi submetido. A temperatura do pico de emissão^(*) é função da impureza e da armadilha.

Os picos que se apresentam em uma curva de emissão, são referentes às armadilhas que são esvaziadas nas várias profundidades, e a sua altura é proporcional à população dos elétrons capturados nas diversas armadilhas.

A área da curva é proporcional à luz que é emitida pelo fósforo. Na medida da TL podem ser usadas tanto a altura dos picos^(**) como a área integrada.

(*) Pico de emissão: é a temperatura onde a intensidade de luz é maior.

(**) Altura do pico: é a quantidade da intensidade de luz no pico de emissão, expressa em termos da corrente elétrica.

É conveniente para dosimetria, utilizar-se os picos de temperaturas mais elevadas e que portanto são representativos de energias de ativação maiores e assim sendo, mais estáveis à temperatura ambiente.

1.4.2 – Estabilidade

A estabilidade é medida pela meia-vida de um pico TL em temperatura ambiente. Como se sabe, quanto maior a energia de ativação, maior será a meia-vida das armadilhas correspondentes. Para dosimetria somente interessam os picos estáveis.

1.4.3 – Sensibilidade

A quantidade de luz emitida por um fósforo por unidade de exposição da radiação à qual ele esteve exposto, é chamada de sensibilidade TL.

1.4.4 – Curva de Respost. TL à Exposição

Para a maioria dos fósforos ela é linear desde 10 mrad até 1000 rads, depois fica supralinear ou seja, cresce mais rapidamente que a linear até mais ou menos 10^5 rads onde tende a saturar.

1.4.5 – Dependência com a Energia da Radiação

Para fótons com energias inferiores à 100 KeV, o processo predominante de ionização é o efeito fotoelétrico (que ocorre com os elétrons das camadas mais internas do átomo) e portanto depende de sua carga nuclear. Essa dependência aumenta, quanto maior for o número atômico efetivo (Z_{ef}) do material, pois para o efeito fotoelétrico a secção de choque é fortemente dependente do número atômico (Z). Para medida da unidade de exposição, toma-se como padrão o ar, assim sendo, todo o material que tiver Z_{ef} próximo ao Z_{ar} apresentará uma menor dependência com a energia do fóton. No caso do LiF, por exemplo, temos $Z_{ef} \sim 8,2$ comparado com o $Z_{ar} \sim 7,64$ e a sua resposta TL para uma dada exposição, tem $\sim 30\%$ de variação máxima em relação à resposta TL para cerca de 1,25 MeV (energia média dos raios γ do ^{60}Co), onde não exista dependência com a energia.

O CaF_2 tem $Z_{ef} \sim 16,3$, apresenta na região de 40 KeV, uma resposta TL cerca de 16 vezes à da região de 1 MeV, para uma dada exposição.

Quando se usa material termoluminescente em dosimetria da radiação, esse fator deve ser levado em consideração. O LiF tem fraca dependência com a energia do fóton, mas não é dos fósforos mais sensíveis.

1.5 – Dosimetria de Nêutrons

Pelo fato dos nêutrons serem partículas sem carga, sua detecção é muito difícil.

O uso da termoluminescência na detecção de nêutrons, principalmente de nêutrons térmicos, data de aproximadamente 10 anos⁽¹²⁾.

Os nêutrons induzem TL através de partículas secundárias resultantes das reações nucleares dos tipos (n,α) , (n,p) , (n,d) , etc.

Um fósforo TL será considerado um bom dosímetro de nêutrons, se tiver em grande abundância, isótopos com grande secção de choque para uma das possíveis reações com nêutrons.

No caso do $\text{LiF}^{(32)}$, cerca de 7,4% do Li que entra no cristal é do isótopo $A = 6$ que possui uma alta seção de choque para nêutrons térmicos, da ordem de 945 barns, dando assim, origem ao trítio e partícula alfa (α), que sendo partículas carregadas, vão induzir TL no cristal. O efeito dos raios gama (γ) que acompanham os nêutrons, pode ser subtraído, colocando-se um material TL insensível a nêutrons. No LiF , a seção de choque de captura para nêutrons térmicos do ^7Li (99,9%) é desprezível, assim sendo ele é usado para a detecção da dose γ do campo misto $n - \gamma$.

Foram usados outros materiais com a finalidade de detecção de nêutrons térmicos, baseados no mesmo princípio, a saber, $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$, enriquecido com ^{10}B , que possui uma elevada seção de choque para a captura de nêutrons térmicos.

Foi desenvolvida no Instituto de Energia Atômica, por Muccillo e Watanabe^(18,32,15), uma dosimetria de nêutrons térmicos, baseada na ativação do ^{44}Ca do CaF_2 natural, que não depende do efeito da radiação gama que acompanha os nêutrons. Ela consiste em: ^{44}Ca do CaF_2 natural com uma abundância de cerca de 2,07%, captura nêutrons térmicos com uma seção de choque de 0,7 barns, tornando-se beta-ativo com uma meia-vida de 165 dias. Após a exposição a um campo misto nêutron + gama, o dosímetro TL é recozido a 400°C por 10 a 15 minutos, que é o tempo necessário e suficiente para eliminar a TL induzida no CaF_2 durante a irradiação primária direta. A partir daí, as partículas beta provenientes do ^{45}Ca , auto induzem TL no CaF_2 . A leitura da TL auto-induzida fornece o fluxo de nêutrons térmicos ao qual foi exposto o fósforo.

Métodos semelhantes foram propostos para a dosimetria de nêutrons rápidos⁽¹⁴⁾, baseados em reações nucleares.

Para detecção de nêutrons rápidos, foi proposto por Sunta et al.⁽³⁰⁾, um outro método. Esse método se baseia na mistura do material TL, com um material hidrogenado. A incidência dos nêutrons sobre esta mistura, produz prótons de recuo, que vão induzir TL no fósforo. Separando-se o material TL do material hidrogenado, pode-se fazer a leitura TL para a determinação do fluxo neutrônico.

1.6 – Descrição do Método de Auto-Ativação

Fósforos TL são detetores de radiação bastante sensíveis e podem ser usados para medir níveis de radiação baixos. Mayhugh⁽¹⁵⁾ e seus colaboradores usaram fósforo TL para medir a radioatividade induzida por nêutrons térmicos. A TL produzida diretamente pelos nêutrons e outras radiações, isso é, dose direta, é removida, aquecendo o fósforo – dosímetro – e armazenando em um local onde o núcleo radioativo produzido pelo nêutron, decai. O sinal TL subsequente, dá a dose total recebida, do decaimento desse núcleo. Como o dosímetro deve ser lido depois de decair a atividade induzida, o momento exato da leitura não precisa ser crítico.

Quanto menor a meia-vida do isótopo ativado, menor será o tempo de armazenamento, portanto a leitura poderá ser feita mais rapidamente.

Este método foi estudado por Muccillo, R, Watanabe, S, Mayhugh, M. R.⁽¹⁵⁾, em cristais de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$; $\text{CaF}_2:\text{Dy}$; CaF_2 natural, para nêutrons térmicos.

Pearson, D. W. e Moran, P. R.^(21,22), estudaram o método de auto-ativação para cristais de LiF ; $\text{CaF}_2:\text{Dy}$; $\text{CaF}_2:\text{Mn}$; $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$; ZnO:Tm ; $\text{Mg}_2\text{SiO}_4:\text{Tb}$.

1.7 – Objetivos desse Trabalho

Preende-se construir um dosímetro para nêutrons térmicos utilizando-se o CaF_2 natural e o KBr , e o método de auto-ativação TL.

O trabalho compreende o seguinte:

- a) Determinação da Melhor Proporção da Mistura
- b) Medida da Fluência Mínima Detetável
- c) Cálculo da Dose Equivalente, a uma dada fluência.

2 -- PARTE EXPERIMENTAL

2.1 – Materiais Utilizados

Os materiais utilizados no presente trabalho foram:

- a) Fluoreto de Cálcio natural (CaF₂ natural) de coloração verde, procedente de Criciúma, Santa Catarina. O CaF₂ natural ocorre na natureza como mineral fluorita. Desde sua formação há acúmulo de radiação no decorrer de milhares de anos, e por isso ele apresenta uma TL natural colossal. Após um tratamento térmico especial, a fluorita pode ser utilizada em: dosimetria da radiação, proteção radiológica, arqueologia, etc... Quando a fluorita é exposta a um campo de nêutrons os isótopos ⁴⁰Ca, ⁴⁴Ca, ⁴⁸Ca e ¹⁹F, ficam ativados passando a ⁴¹Ca, ⁴⁵Ca, ⁴⁹Ca e ²⁰F, que têm uma abundância isotópica de 96,97%; 2,08%; 0,185% e 100% respectivamente e suas secções de choque de ativação para nêutrons térmicos são respectivamente; 0,23 barns; 0,7 barns; 1,1 barns e 0,010 barns.
- b) Brometo de Potássio (KBr) pré-análise, produzido pela Merck. O KBr quando é exposto a um campo de nêutrons fica com os isótopos ³⁹K, ⁴¹K, ⁷⁹Br e ⁸¹Br ativados. As abundâncias isotópicas desses isótopos são respectivamente; 93,22%; 6,77%; 50,5% e 49,5%. Quando ativados, o ³⁹K passa a ⁴⁰K com uma meia-vida de 1,26 x 10⁹ anos e uma secção de choque para nêutrons térmicos de 2,0 barns; o ⁴¹K passa a ⁴²K com uma meia-vida de 12,36 horas e uma secção de choque para nêutrons térmicos de 1,2 barns; o ⁷⁹Br passa a ⁸⁰Br com meia-vida de 18 minutos e secção de choque para nêutrons térmicos de 2,9 barns e ao ^{80m}Br com uma meia-vida de 4,5 horas e uma secção de choque para nêutrons térmicos de 13,5 barns e o ⁸¹Br passa ao ⁸²Br com uma meia-vida de 36 horas e secção de choque para nêutrons térmicos de 3,3 barns.

2.2 – Mistura Usada, Tamanho dos Grãos e Tratamento Térmico

O dosímetro TL utilizado consiste de uma mistura de CaF₂ natural de coloração verde e KBr em forma de pó.

O CaF₂ e o KBr foram triturados separadamente em um almofariz de porcelana e posteriormente foram peneirados de modo que se obtivesse uma granulação entre 80 e 200 mesh Tyler (85 e 185 μ).

O CaF₂ após ter sido triturado e peneirado, foi submetido a um tratamento térmico a 600°C durante o tempo de uma hora, para eliminar a TL induzida pela radiação natural.

A mistura é exposta a um feixe de nêutrons térmicos a serem detetados conforme descrito na secção seguinte. Posteriormente é submetida a um tratamento térmico à temperatura de 600°C por 30

minutos em um forno da Indústria Forlabo Ltda acoplado a um controlador de temperatura IEA modelo 141/74 e a partir daí se faz a leitura TL periodicamente ou após a saturação (≈ 24 horas).

2.3 – Irradiação das Amostras e Fontes de Irradiação

2.3.1 – Irradiação das Amostras

As amostras a serem irradiadas foram acondicionadas dentro de uma cápsula de polistileno com as seguintes dimensões: 3 mm de diâmetro interno, 1 mm de parede e 10 mm de altura.

Para o presente trabalho interessa somente a detecção de nêutrons térmicos, portanto nêutrons cuja energia E seja inferior a 1 eV. Como as fontes utilizadas são: fontes de nêutrons rápidos $E > 100$ KeV que são termalizados como no caso da fonte de ^{252}Cf ou então temos campo misto $n - \gamma$ como no caso do reator, então numa irradiação sempre se tem nêutrons térmicos, nêutrons epitérmicos ($1 \text{ eV} < E < 100 \text{ KeV}$), raios γ , ... , para que se pudesse discriminar qual a dose referente a nêutrons térmicos, foi feito o seguinte: nos diferentes locais de irradiação foi colocada uma amostra de Au envolta em Cádmiio (Cd) e outra sem estar envolta em Cd. Como se sabe o Cd serve para absorver os nêutrons térmicos; assim sendo, a diferença de leitura entre as duas amostras de Au, daria apenas o efeito produzido pelos nêutrons térmicos.

Para que se pudesse obter a atividade produzida apenas pelos nêutrons térmicos nas amostras de Au, determinou-se a "Razão de Cádmiio" (R_{Cd}) que é a razão entre as duas atividades sem Cádmiio e com Cádmiio conforme expressão que segue:

$$R_{\text{Cd}} = \frac{A_{\text{s/Cd}}}{A_{\text{c/Cd}}}$$

onde:

R_{Cd} – Razão de Cádmiio

$A_{\text{s/Cd}}$ – Atividade da amostra sem cádmiio

$A_{\text{c/Cd}}$ – Atividade da amostra com cádmiio

As razões de Cádmiio foram medidas pelo Laboratório de Técnicas e Medidas Nucleares do IEA.

2.3.2 – Fontes de Irradiação

As fontes de irradiação utilizadas foram:

a) IEAR-1 – Estação 1 – Posição 3

A estação nº 1 – posição 3 é um local de irradiação que se situa próximo ao carpo do reator, a aproximadamente 22 cm do mesmo. Nessa posição as amostras não têm contacto com a água da piscina, sua irradiação é automatizada com relógio de controle de tempo de irradiação; e a entrada e saída das amostras é feita por intermédio de sucção pneumática da cápsula que as contém.

Nesse local temos:

$$\psi_{th}^* \text{ (fluxo térmico)} = 6,66 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{seg}$$

$$R_{Cd} = 17,39$$

b) IEAR-1 – Tubo de Irradiação nº 8

O Tubo de Irradiação nº 8 é um conduto metálico que começa no caroço do reator. Tem colimadores que permitem obter um feixe de nêutrons praticamente colimado e estreito. Nesta posição, a distância que existe entre o caroço do reator e a saída do tubo é de 3,40 m, fazendo com que o fluxo diminua bastante do caroço até a saída do Tubo de Irradiação.

Nesse local temos:

$$\psi_{th} = 3,23 \times 10^7 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{seg}$$

$$R_{Cd} = 12,49$$

c) Fonte de Califórnio 252

Nesse local de irradiação entre as amostras e a fonte existiu 2,5 cm de água para obtenção de nêutrons térmicos.

A fonte de Califórnio 252 que pertence à Área de Radioquímica do IEA está montada em uma blindagem e as irradiações foram feitas em um tanque de lucite cheio de água deionizada que serve como moderador de nêutrons. Esse tanque de lucite é quadrado e tem no centro do mesmo um tubo de lucite, dentro do qual corre a fonte para se fazer as irradiações. O tanque tem ao redor como blindagem uma parede de 10 cm de chumbo e outra parede de parafina com boro.

A fonte de ^{252}Cf que está na forma de trióxido de califórnio está dentro de uma cápsula que é constituída de 90% de platina e 10% de irídio e está recoberta por aço inoxidável.

As amostras a serem irradiadas foram colocadas dentro de um irradiador de lucite, para que quando o irradiado fosse imerso na água, não entrasse água nas amostras, pois o KBr é higroscópico.

Nesse local de irradiação, temos:

$$\psi_{th} = 1,66 \times 10^6 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{seg}$$

$$R_{Cd} = 6,43$$

d) Fonte de Cobalto 60

A fonte de ^{60}Co é uma fonte γ tendo uma meia-vida ($T_{1/2}$) de aproximadamente 5 anos; emite radiação γ com energia média ($E_{\gamma} = 1,25 \text{ MeV}$). Essa fonte pertence ao Centro de Proteção Radiológica e Dosimetria do IEA.

(*) Os valores do fluxo térmico e R_{Cd} foram determinados pelo Laboratório de Técnicas e Medidas Nucleares do IEA.

A fonte utilizada já estava calibrada permitindo uma posterior equivalência em dose das emissões TL das amostras irradiadas com γ e das amostras irradiadas com nêutrons térmicos.

Características da fonte durante o uso:

$$A \text{ (atividade)} = 37,67 \text{ mCi (15/03/77)}$$

$$\Gamma \text{ (} ^{60}\text{Co)} = 13,3 \text{ R.h}^{-1} \cdot \text{cm}^2 \cdot \text{mCi}^{-1}$$

onde:

Γ – é a constante específica da radiação gama.

2.4 – Sistema Leitor Utilizado

O modelo utilizado para leitura é Harshaw denominado "Model 2000 Thermoluminescence Analyser" que possui integrador. Foi acoplado a esse aparelho um registrador Varian-G-2500.

O modelo 2000 consta de um detector TL, modelo 2000A e de um integrador automático do picoamperímetro modelo 2000B.

O instrumento consiste de: uma plancheta na qual a amostra foi colocada (sempre a mesma quantidade – 13 mg) e aquecida,

- fotomultiplicadora com controle de temperatura assegurando uma constante e baixa corrente de fundo e estabilidade de ganho;
- termopar cromel-alumel junto à plancheta e controle com realimentação da temperatura de aquecimento, assegurando taxa de aquecimento linear e reproduzível para a amostra;
- integrador de corrente automático com mudança automática de escala.

2.5 – Recozimento Depois da Irradiação

As amostras passam por um tratamento térmico após a irradiação, que tem a finalidade de eliminar a TL induzida durante a irradiação.

Esse tratamento varia de acordo com o material que se está utilizando.

Para determinação do melhor tratamento térmico, irradia-se uma certa quantidade de mistura, após o que se faz um tratamento térmico; retira-se uma certa quantidade do mesmo e faz-se a leitura. Se o tratamento for suficiente não deve ser observado nenhum sinal, caso contrário varia-se a temperatura e o tempo até que se chegue no tratamento ideal.

O melhor tratamento térmico para o material utilizado nesse trabalho, que é o $\text{CaF}_2 + \text{KBr}$, é $600^\circ\text{C}/30 \text{ min}$.

O tempo entre o final da irradiação e o início do tratamento térmico deve ser mantido constante para que se possa comparar os resultados obtidos.

3 – MEDIDAS E RESULTADOS EXPERIMENTAIS

A seguir será feita a descrição detalhada de cada experiência realizada.

3.1 – Determinação da Melhor Proporção da Mistura

Misturou-se o CaF_2 e KBr em diferentes proporções conforme tabela que segue, para que fosse verificado em qual proporção a mistura apresentava maior sensibilidade.

KBr	100	90	80	70	60	50	40	30	20	10	–
CaF_2	–	10	20	30	40	50	60	70	80	90	100

Os valores acima são dados em porcentagem de peso.

Para essa experiência as amostras foram irradiadas no IEAR-1, Estação 1 Posição 3. Após a irradiação, as amostras passaram por um tratamento térmico pós irradiação a 600°C durante 30 minutos, foram armazenadas durante 24 horas e lidas em seguida. O armazenamento da amostra durante 24 horas deve-se ao fato de que após esse intervalo de tempo a mesma já atingiu aproximadamente 80% da sua saturação.

Os resultados obtidos nas leituras das amostras foram colocadas na Figura 1 onde se pode verificar claramente que a proporção que possui uma maior sensibilidade e portanto uma leitura TL maior é 50% de CaF_2 e 50% de KBr . Cada um dos pontos encontrados é uma média de cinco leituras (Figura 1).

A Figura 2, mostra que a maior sensibilidade da mistura de CaF_2 e KBr nas proporções de 50%, 50% em relação à sensibilidade de CaF_2 puro independe do tempo de armazenamento anterior à leitura TL.

Foi construído à partir dos resultados, várias leituras TL efetuadas em diferentes amostras de CaF_2 puro e da mistura $\text{CaF}_2 + \text{KBr}$ (50%, 50%) que foram armazenadas durante vários intervalos de tempo após o recozimento a 600°C durante 30 min realizado após a irradiação com nêutrons durante 60 segundos no IEAR-1, Estação 1 Posição 3.

3.2 – Irradiação da Amostra na Fonte de Cobalto 60

Foi feita a irradiação da amostra em várias proporções da mistura para verificar a resposta da mistura aos raios gama (Figura 3). As amostras foram expostas à exposição de 1 Roentgen (1R).

O cálculo para a determinação de uma exposição (X), equivalente a 1R foi:

$$X(R) = \frac{A \text{ (mCi)} \times \Gamma \text{ (R.h}^{-1} \cdot \text{cm}^2 \cdot \text{mCi}^{-1}) \times t \text{ (h)}}{d^2 \text{ (cm)}}$$

sendo:

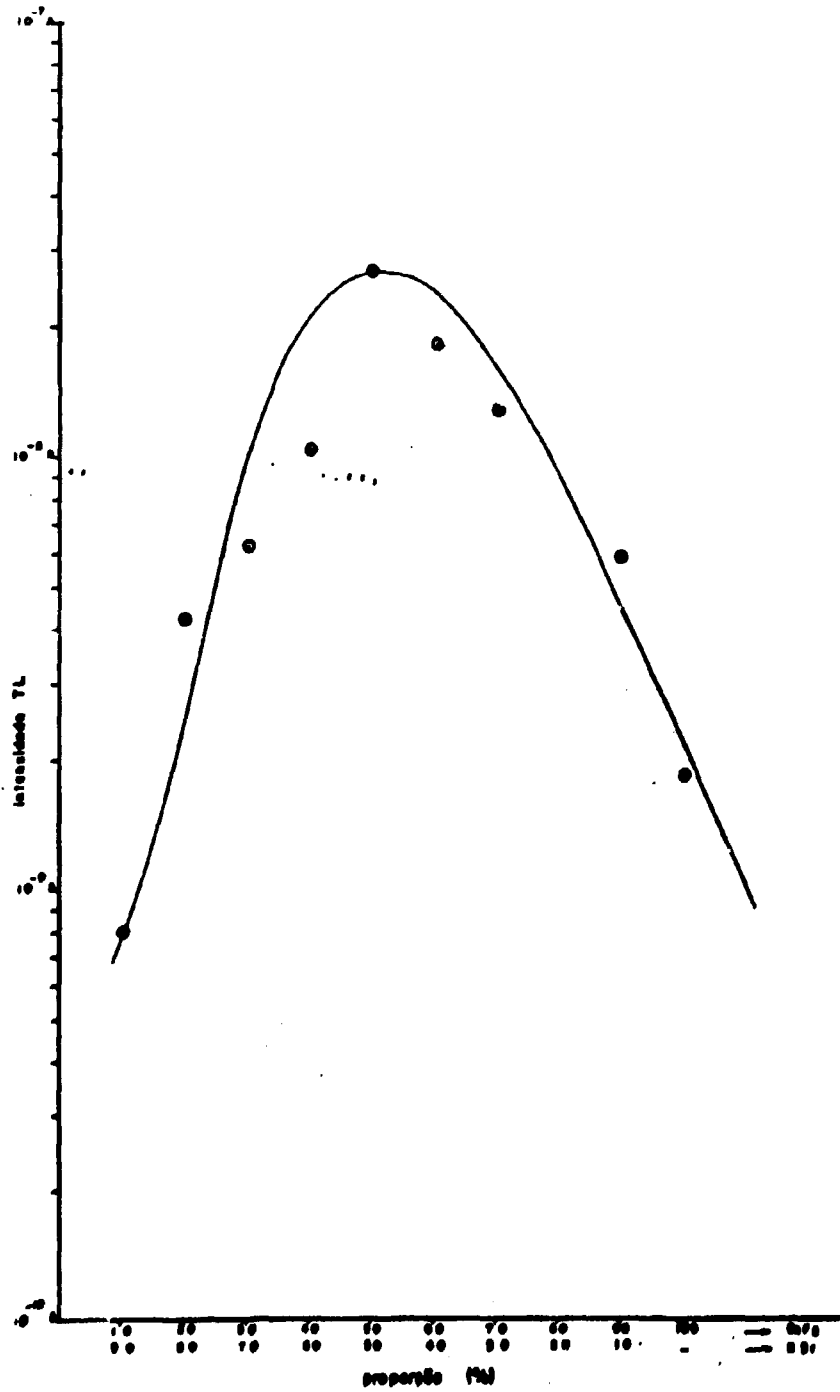


Figura 1 - Melhor Propu.-ão de Mistura

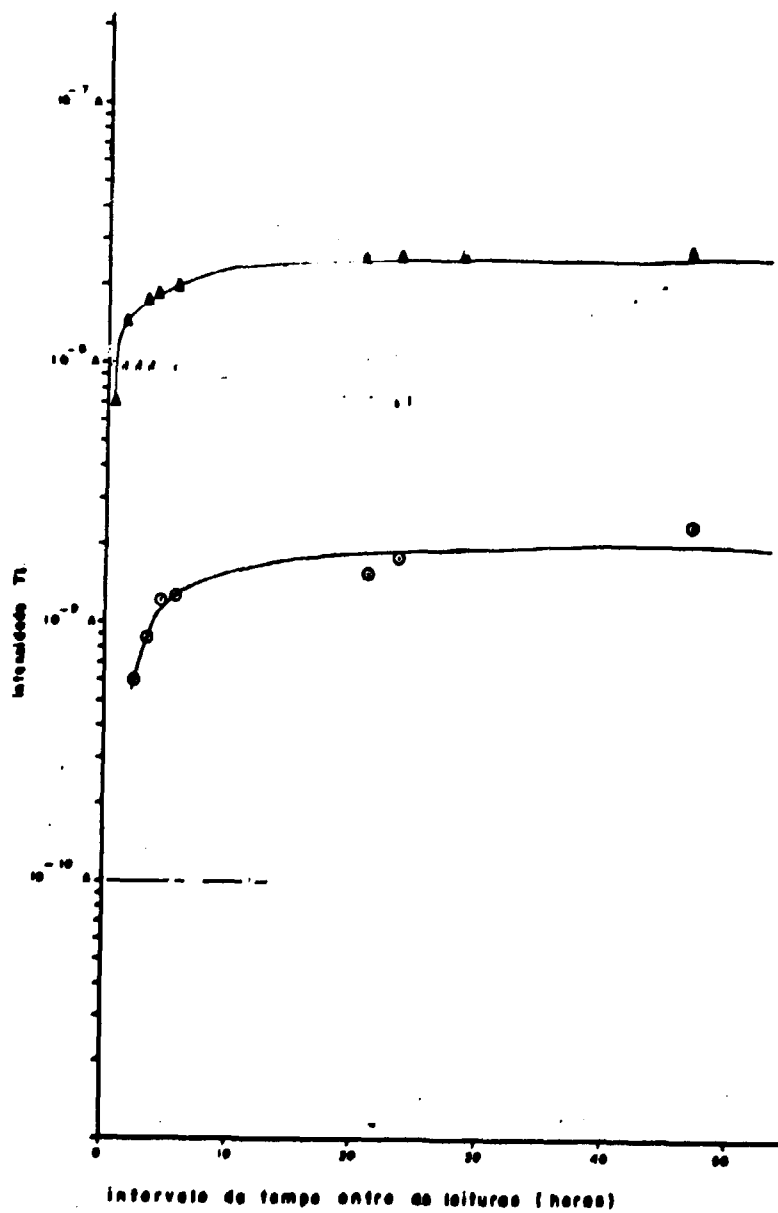


Figura 2 - Sensibilidade da Medida
 Amostras Irradiadas no IEAR-1 - Estação 1 - Posição 3
 ▲ = amostra CaF₂ + KBr (50%/50%)
 ○ = amostra CaF₂ natural (100%)

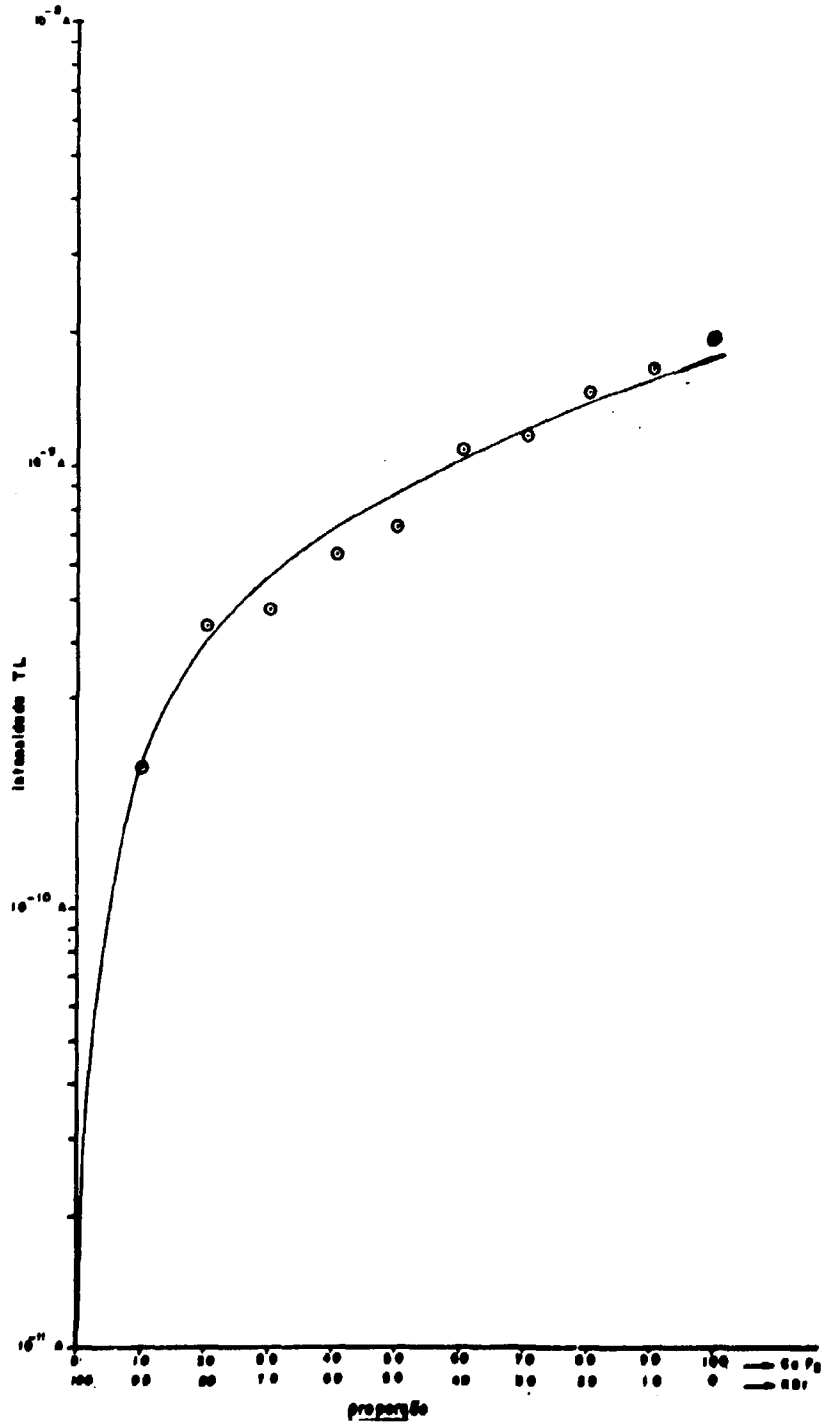


Figura 3 - Amostras Expostas a Fonte de Co-60 (Emissor Gama)

$$A = 37,67 \text{ mCi (15/03/77)}$$

$$\Gamma (^{60}\text{Co}) = 13,2 \text{ R} \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{cm}^2 \cdot \text{mCi}^{-1}$$

$$d = 40 \text{ cm}$$

$$X = 1 \text{ R}$$

$$t = 3 \text{ h } 13 \text{ min } 13 \text{ seg}$$

Verifica-se como esperado que a resposta TL cresce com o aumento do CaF_2 na mistura.

Cumpra salientar que no caso da irradiação com nêutrons (item 3.1) a maior sensibilidade deu-se com a mistura de 50% KBr + 50% CaF_2 pois nesse caso é o KBr que fica ativado durante a irradiação com nêutrons e é juntamente com o CaF_2 o responsável pela sensibilidade TL.

3.3 – Determinação Experimental dos Isótopos Responsáveis pela Ativação da Amostra

Sabe-se que a amostra em estudo contém os seguintes isótopos ativáveis: ^{40}Ca , ^{44}Ca , ^{48}Ca , ^{19}F , ^{39}K , ^{41}K , ^{79}Br e ^{81}Br . É claro que, em princípio, todos eles contribuem na auto-indução da TL, uma vez irradiados no feixe de nêutrons térmicos. A tabela abaixo mostra as características desses isótopos:

Tabela I

Isótopo	A.I. (%)	σ_c (barns)	Isótopo	$T_{1/2}$
Estável			Ativado	
^{40}Ca	96,970	0,230	^{41}Ca	$8 \times 10^6 \text{ a}$
^{44}Ca	2,080	0,700	^{45}Ca	165 d
^{48}Ca	0,185	1,100	^{49}Ca	8,8 m
^{19}F	100,000	0,010	^{20}F	11,56 s
^{39}K	93,820	2,000	^{40}K	$1,26 \times 10^9 \text{ a}$
^{41}K	6,770	1,200	^{42}K	12,36 h
^{79}Br	50,500	13,500	^{80}mBr	4,5 h
		2,900	^{80}Br	18 m
^{81}Br	49,500	3,300	^{82}Br	36 h

Não se espera que os elementos ativados com meia-vida muito longa ou curta demais contribuam, como ^{41}Ca , ^{45}Ca , ^{49}Ca , ^{20}F e ^{40}K . Quanto a outros, para se ver até que ponto cada um pode participar na auto-indução de TL na amostra, efetuou-se um cálculo e uma medida experimental.

A amostra em estudo contém 50 mg de CaF_2 mais KBr, na proporção 50/50 em peso, isto é, 25 mg de CaF_2 e 25 mg de KBr. Um cálculo simples nos dá então $\sim 1,265 \times 10^{20}$ moléculas de KBr e $\sim 1,928 \times 10^{20}$ moléculas de CaF_2 em cada amostra. Usando os valores da Tabela I para cada elemento e levando em conta que a amostra é armazenada por 20 minutos após a irradiação e depois é mantida durante 30 minutos em 600°C , o número inicial de átomos ativados que induzem TL útil é dado por:

$$N(t_0) = N_0 \times \text{Abundância natural} \times \sigma \times \text{fluência} \times e^{-\lambda t}$$

onde: N_0 é o número total de átomos da espécie presentes em 50 mg da amostra e t_0 o tempo entre final da irradiação e início da leitura que nesse caso é de 50 minutos. A fluência usada nessa experiência foi de $\sim 3,96 \times 10^{13}$ n/cm². O cálculo nos fornece os seguintes dados:

Tabela II

Radioisótopo	Nº de átomos ativados
⁴⁹ Ca	$2,98 \times 10^4$
⁴² K	$4,01 \times 10^8$
⁸⁰ Br	$1,01 \times 10^9$
^{80m} Br	$3,02 \times 10^{10}$
⁸² Br	$7,97 \times 10^9$

É importante lembrar que o ^{80m}Br decai por várias emissões γ e ⁸⁰Br.

O ⁴⁹Ca, além de apresentar um número relativamente reduzido de átomos ativados, possui uma meia-vida muito curta de 8,8 minutos, comparada com 50 minutos já mencionados, por isso, não se espera uma contribuição significativa sua.

A parte experimental foi efetuada na Estação 1 do reator IEAR-1, na posição 3. Após a irradiação a amostra foi submetida a um tratamento térmico de 600°C durante 30 minutos; a seguir a amostra foi lida e relida após diversos intervalos de tempo.

Os resultados obtidos foram colocados na Figura 4, onde no eixo y, vê-se a TL induzida por minuto de auto-irradiação e no eixo x, o tempo decorrido entre o fim do recozimento e o momento de cada leitura. Na Figura 4 pode-se ver a curva teórica de decaimento do ⁸⁰Br, ^{80m}Br e ⁴²K e os pontos experimentais. Nesse gráfico, a última leitura foi feita aproximadamente 38 horas após o término do tratamento térmico. Nesse intervalo de tempo, o ⁸²Br contribuiu muito pouco e seu efeito não foi detectado.

Na realidade, a TL induzida por raios β e raios γ é diferente, portanto, não podemos usar o valor do número de átomos ativados da Tabela II para obter a curva teórica.

Por esse motivo, foi feito um ajuste da curva experimental com a expressão:

$$y = \sum_{i=1}^3 A_i e^{-\lambda_i t}$$

usando o método de mínimos quadrados não linear Gauss Newton⁹, obtendo-se os seguintes valores:

(⁹) Os cálculos para esse experimento foram efetuados no Centro de Processamento de Dados do IEA empregando-se o S.A.S. (Statistical Analysis System) através do sistema IBM/370 modelo 156.

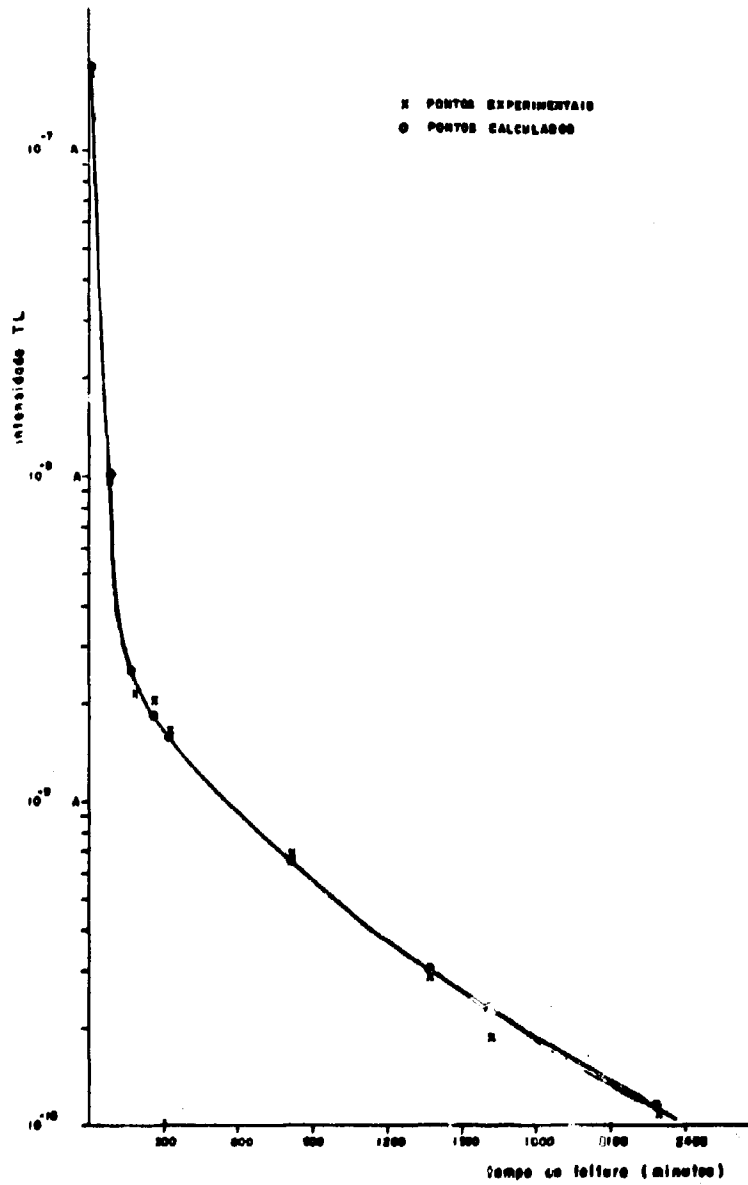


Figura 4

Tabela III

i	Isótopo	A_i	λ_i
1	^{80}Br	$173,0 \times 10^{-9}$	$3,51 \times 10^{-2} \pm 0,04 \times 10^{-2}$
2	^{80m}Br	$2,2 \times 10^{-9}$	$2,97 \times 10^{-3} \pm 0,64 \times 10^{-3}$
3	^{42}K	$1,0 \times 10^{-9}$	$9,66 \times 10^{-4} \pm 3,93 \times 10^{-4}$

O elevado valor de A (^{80}Br) deve-se ao decaimento do ^{80m}Br que dá origem a ^{80}Br e se soma ao número de ^{80}Br diretamente formados.

Pode-se concluir que, para leituras feitas dentro de cerca de 36 horas, a principal contribuição provém dos radioisótopos ^{80}Br , ^{80m}Br e ^{42}K . Para intervalos bem maiores, é claro que o ^{82}Br passa a ter contribuição considerável.

3.4 – Determinação do Intervalo de Tempo que Deve Ser Observado entre a Irradiação e a Leitura TL dos Dosímetros

As amostras foram colocadas em cápsulas de polietileno e irradiadas no IEAR-1, Estação 1 Posição 3, durante 1 minuto. Após a irradiação foram recozidas a 600°C durante 30 minutos. Cada amostra foi então armazenada durante intervalos de tempo que variaram de 3 horas até 48 horas. Os resultados obtidos são mostrados na Figura 5 onde se pode observar que após aproximadamente 24 horas a resposta TL tende a se manter constante.

De um modo geral foi mostrado no item anterior que a resposta TL da amostra pode ser considerada como variando com a meia-vida do ^{80m}Br para tempos de irradiação superiores a 100 minutos e inferiores a 26 horas.

Foi então construída uma curva de $\sum_{i=1}^5 (1 - e^{-\lambda_i t})$ onde $i = ^{80}\text{Br}$, ^{80m}Br , ^{82}Br , ^{42}K , ^{49}Ca e colocada sobre a curva experimental, levando em conta que somente após 50 minutos do término da irradiação, tem-se o acúmulo da TL da amostra.

Como era de se esperar, o ^{49}Ca contribui de maneira desprezível. Observa-se que a TL auto-induzida continua crescendo além de 50 horas, devido aos átomos de ^{82}Br .

3.5 – Irradiação nas Várias Fontes de Nêutrons e Respostas Obtidas

Foram feitas irradiações nas várias fontes de nêutrons já citadas no item 2.3.2.

- a) no IEAR-1, Estação 1, Posição 3, foram feitas irradiações desde 2 seg até 60 seg. Em seguida as amostras foram recozidas a 600°C durante 30 minutos, armazenadas durante 24 horas e depois lidas e o resultado vê-se na Figura 6.

Nesta posição o fluxo de nêutrons térmicos é elevado e as irradiações foram feitas durante curtos intervalos de tempo. Nota-se como esperado que a resposta TL é proporcional ao tempo de irradiação ou seja à fluência de nêutrons térmicos incidentes.

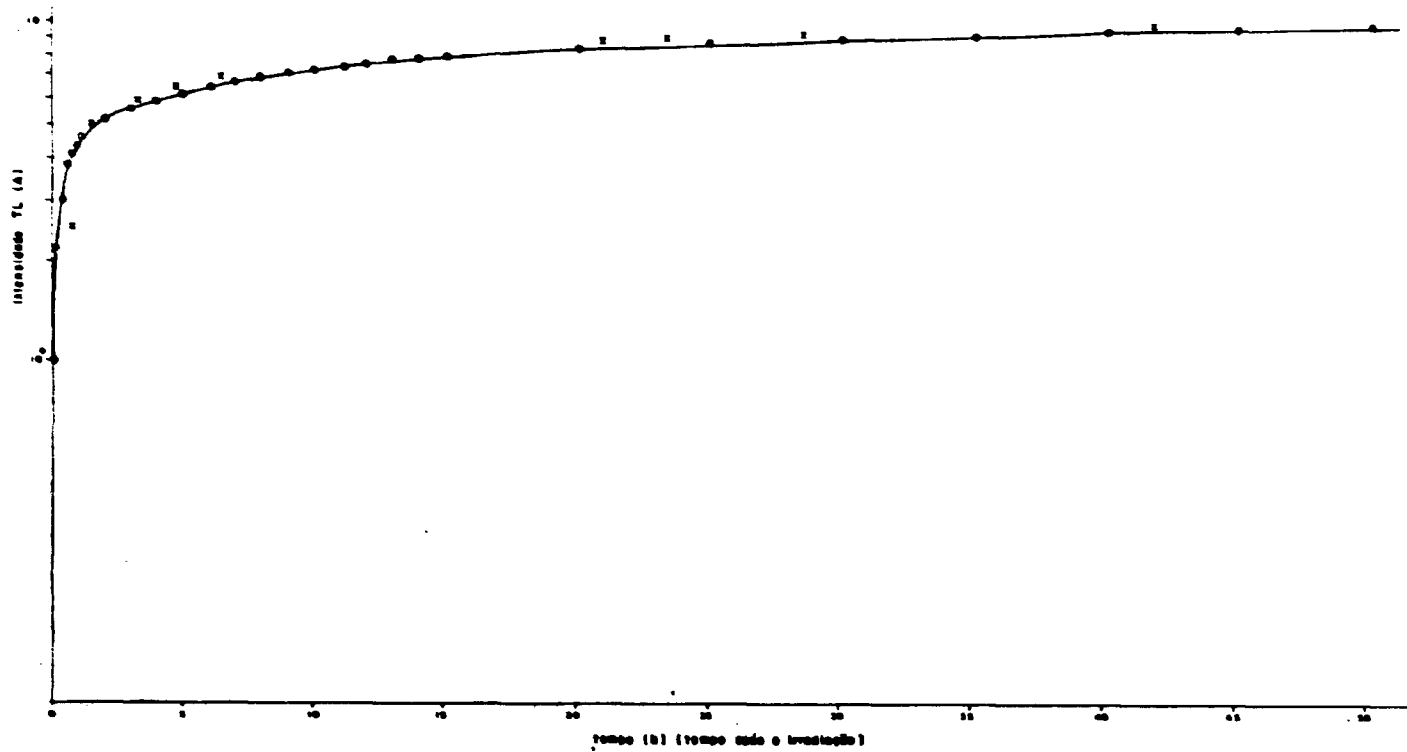


Figure 5 - o = Pontos Teóricos - x = Pontos Experimentais

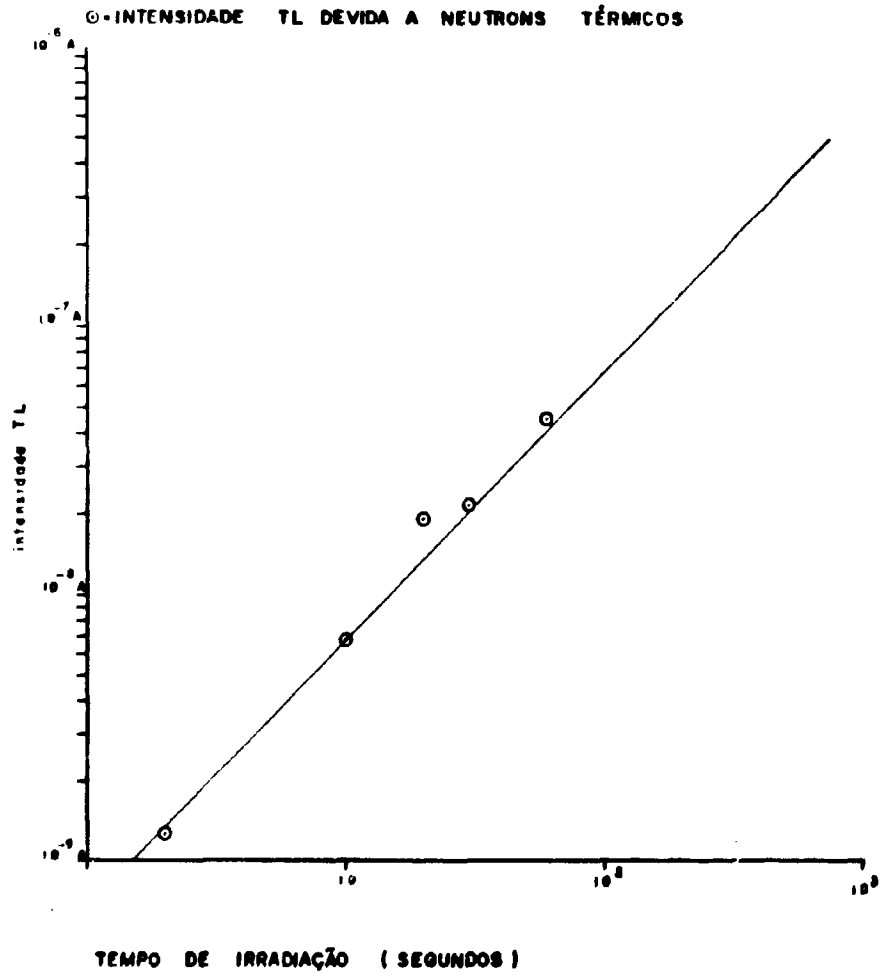


Figura 6 - Irradiações Feitas no IEAR-1 - Estação 1 - Posição 3

- b) no IEAR-1, Tubo de Irradiação ("beam-hole") nº 8, foram feitas irradiações desde 15 minutos até 460 minutos e o procedimento pós irradiação foi o mesmo do item a). O resultado vê-se na Figura 7, onde verifica-se que para tempos superiores a 90 minutos, ocorre a saturação.

Já nesta posição o fluxo de nêutrons é bem inferior e a amostra foi irradiada durante mais tempo.

Deve-se lembrar que a TL induzida na amostra depende não só da atividade inicial da amostra mas também da razão das várias atividades dos vários isótopos ativados porque a sensibilidade TL varia com a natureza e com a energia da radiação incidente.

Lembra-se ainda que entre o término da ativação e o início do recozimento decorrem 20 minutos e que o recozimento é feito durante 30 minutos.

Os resultados das irradiações durante diferentes tempos podem ser vistos na Figura 7. Observe-se que a resposta TL cresce até aproximadamente 90 minutos e depois se torna constante, indicando mais uma vez que a resposta TL obtida aguardando-se 24 horas como tempo de auto ativação depende da atividade inicial do ^{80}Br , $^{80\text{m}}\text{Br}$ e do ^{42}K .

Salienta-se que a existência de uma atividade máxima atingível pela amostra limita as possibilidades de aplicação desse dosímetro a fluxos de irradiações elevados. É necessário conseguir uma ativação máxima da amostra em tempos de até no máximo 5 minutos onde o decréscimo do ^{80}Br já será de aproximadamente 18%.

- c) na fonte de ^{252}Cf , os tempos de irradiação variaram de 30 minutos até 990 minutos. O procedimento pós irradiação foi o mesmo dos itens a) e b).

Fato similar ao descrito no item b), ocorre quando as amostras são expostas a nêutrons provenientes de uma fonte de ^{252}Cf . Os resultados de tais irradiações podem ser vistos na Figura 8.

3.6 – Resposta TL à Dose de Nêutrons

Os resultados obtidos podem ainda ser convertidos em resposta TL à dose de nêutrons, respeitados os limites de tempo de irradiação já mencionados.

Os resultados da Figura 9 foram obtidos da seguinte forma. Sabe-se que⁽⁷⁾:

$$670 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{seg} = 100 \text{ mrem} / 40 \text{ horas}$$

logo,

$$9648 \times 10^4 \text{ n/cm}^2 = 100 \text{ mrem}$$

Nota-se que a resposta TL é linear de 1 a 10^4 rem.

3.7 – Determinação da Mínima Fluência Detectável

Os resultados obtidos podem ser expressos como resposta TL à fluência de nêutrons, já que o tempo é conhecido.

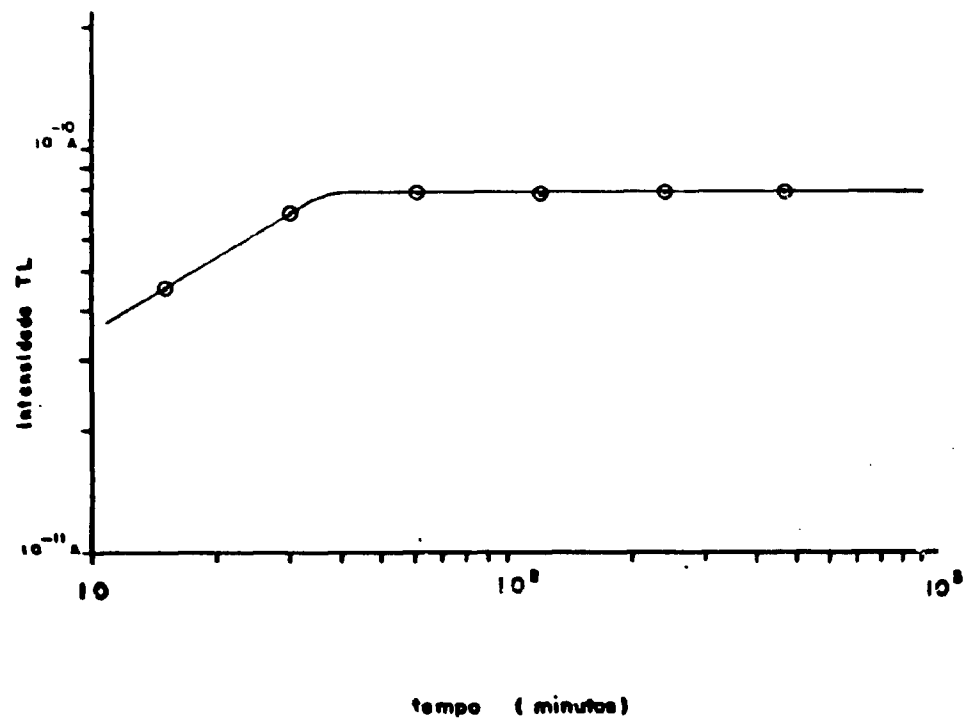


Figura 7 - Irradiações Feitas no IEAR-1 Beam-Hole Nº 8
Intensidade TL Devido a Nêutrons Térmicos

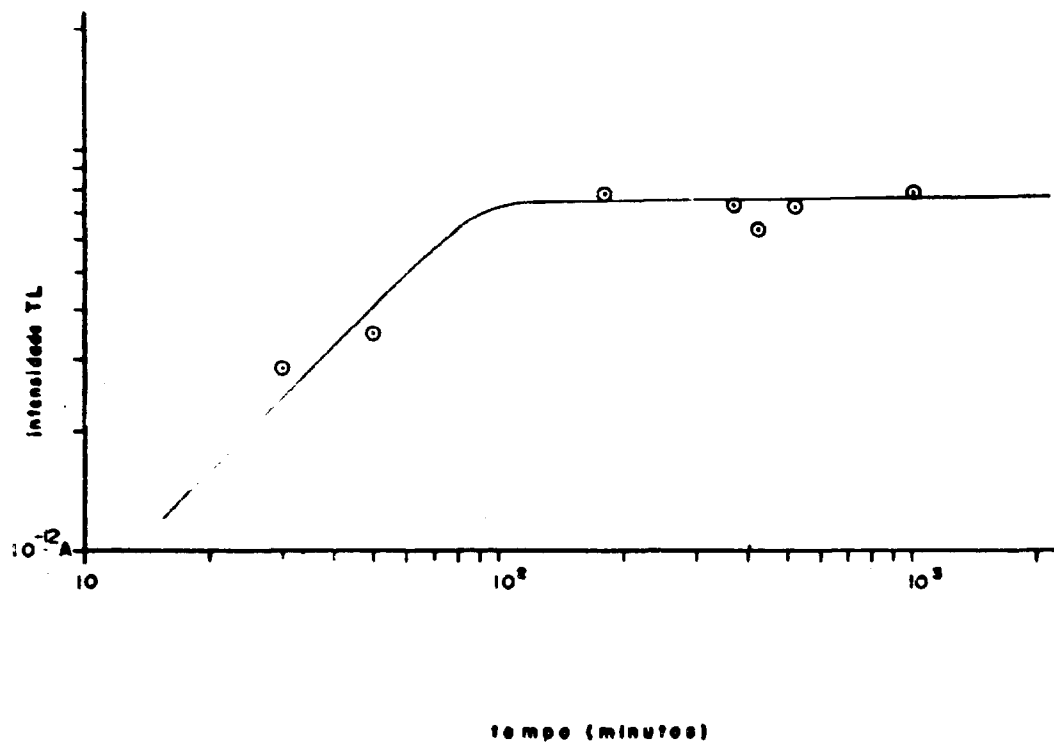


Figura 8 - Irradiações Feitas na Fonte de Califórnio-252
 Q = Intensidade TL Devida a Nêutrons Térmicos

Foram incluídos na Figura 10 apenas os pontos obtidos para irradiação na fonte de ^{252}Cf e no tubo de irradiação onde o tempo de irradiação foi inferior a 90 minutos, onde apenas o erro devido ao decréscimo de atividade do ^{80}Br foi cometido, sendo ainda desprezível o erro devido ao decréscimo durante a irradiação da atividade do $^{80\text{m}}\text{Br}$.

O aparelho de leitura TL utilizado permite ler correntes de até aproximadamente 3×10^{-12} A o que corresponde a uma fluência mínima de aproximadamente 3×10^9 n/cm².

4 – CONCLUSÕES FINAIS

Do estudo realizado usando uma mistura de CaF_2 natural de coloração verde e KBr como detetor de nêutrons térmicos pode-se concluir que:

- 1) a proporção da mistura que melhor responde a nêutrons térmicos, através da auto-indução de termoluminescência na mistura é cerca de 50% – 50% em peso,
- 2) a mistura de 50 – 50 em peso apresenta uma resposta TL cerca de 13 vezes superior comparada com a da fluorita sem KBr,
- 3) a sensibilidade TL a raios γ da mistura 50 – 50 é cerca de 3/4 da de CaF_2 sem KBr, devido ao KBr ser também um material TL,
- 4) para leituras TL feitas dentro de cerca de 40 horas desde a irradiação da mistura com nêutrons térmicos, a contribuição principal provém de ^{42}K , ^{80}Br e $^{80\text{m}}\text{Br}$, mas, para tempos de leitura superiores a 4 a 5 dias, o ^{82}Br passa e contribuir significativamente,
- 5) a fluência mínima detetável em função da sensibilidade TL da mistura e do aparelho de leitura TL é da ordem de 10^9 n/cm²; esse valor é relativamente alto e pode ser reduzido usando um material TL mais sensível como o $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ e um aparelho leitor TL mais preciso,
- 6) desde que o campo γ que acompanha os nêutrons térmicos não seja excessivamente intenso, a mistura em estudo talvez com uso de $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ no lugar de CaF_2 natural pode ser usada com restrição em dosimetria de pessoal bem como de área.

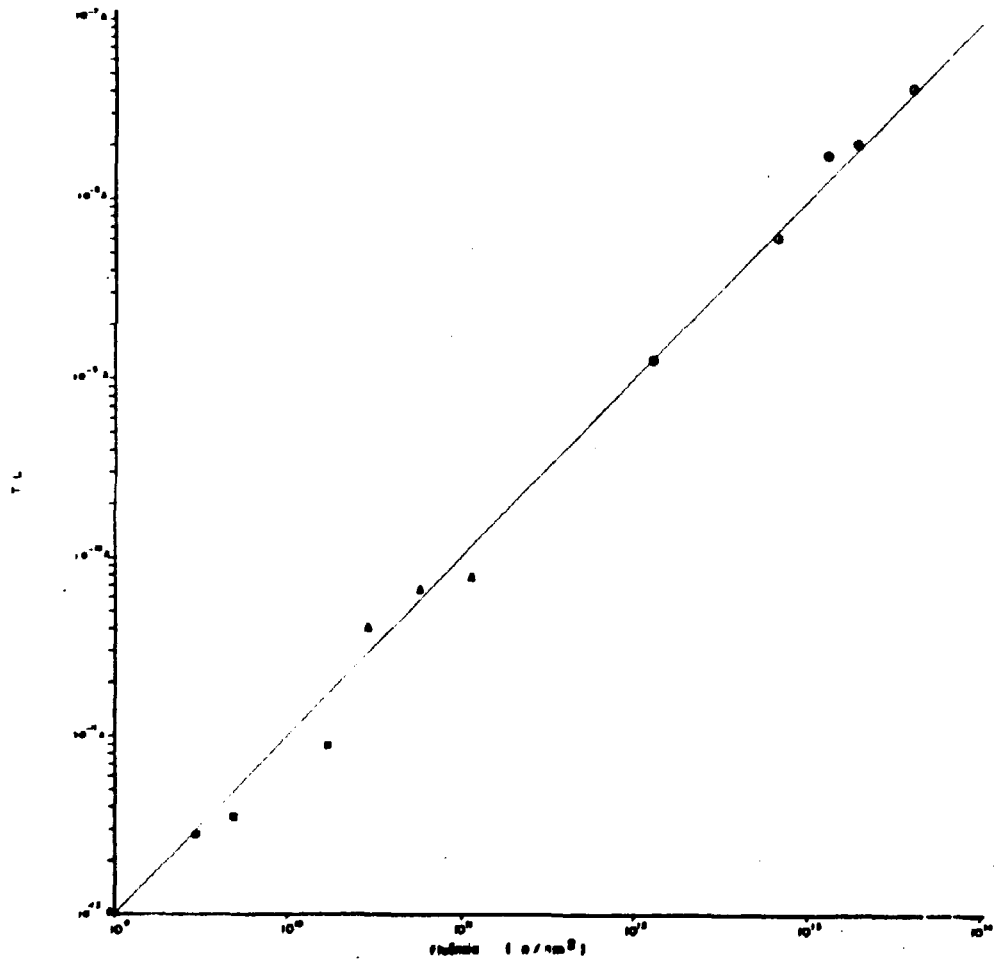


Figura 10 - Fluência Mínima Detectável

- - Pontos do IEAR-1 - Estação 1 - Posição 3
- △ - Pontos do IEAR-1 Beam Hole Nº 8
- - Pontos da Fonte da Califórnia-252

APÊNDICE A

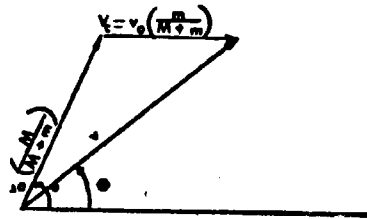
INTERAÇÃO DE NÊUTRONS COM A MATÉRIA

Os nêutrons por serem partículas com massa porém sem carga ao interagirem com a matéria, têm um comportamento diferente das outras partículas carregadas e dos raios gama.

Os nêutrons interagem com a matéria por meio de choques elásticos ou choques inelásticos ou reações nucleares onde pode ocorrer emissão de raios gama, emissão de partículas carregadas, etc.

Para nêutrons de baixa energia as reações mais importantes são espalhamento elástico (n,n) e captura radioativa (n, γ). A colisão elástica do nêutron com um núcleo atômico pode ser estudada sem envolver mecânica quântica, pois o fenômeno pode ser explicado pela mecânica clássica, supondo-se que a colisão entre o nêutron e o núcleo ocorre como se fossem duas bolhas de bilhar. O que se faz então é analisar o choque entre dois corpos sendo: um o nêutron de massa m e o outro o núcleo alvo de massa M .

O cálculo das velocidades das partículas antes e depois do choque no sistema centro de massa (C.M.), nos fornece a perda de energia cinética do nêutron ao colidir com o núcleo atômico do material utilizado



Em uma colisão onde $\phi \approx 0$ e $v = v_0$,

$$v = v_0 \frac{M}{M+m} + v_0 \frac{m}{M+m} = v_0$$

A quantidade de energia perdida pelo nêutron é desprezível, pois pode-se considerar $E = E_0$. Quando o nêutron depois da colisão volta em sentido oposto na mesma direção inicial, $\phi = 180^\circ$, e

$$v = v_0 \frac{M}{m+M} - v_0 \frac{m}{M+m} = v_0 \left(\frac{M-m}{M+m} \right)$$

$$\frac{E}{E_0} = \frac{\frac{1}{2} m v^2}{\frac{1}{2} m v_0^2} = \left(\frac{M-m}{M+m} \right)^2 \quad (1)$$

tipo de colisão onde o nêutron perde a maior parte de sua energia.

Se ϕ tem valores intermediários, a velocidade do nêutron depois da colisão, fica:

$$v^2 = v_0^2 \left(\frac{M}{M+m} \right)^2 + v_0^2 \left(\frac{m}{M+m} \right)^2 + 2 v_0^2 \left(\frac{M}{M+m} \right) \left(\frac{m}{M+m} \right) \cos \phi$$

portanto a relação a energia E do nêutron depois da colisão e a sua energia inicial E_0 , será:

$$\frac{E}{E_0} = \frac{v^2}{v_0^2} = \frac{M^2 + m^2 + 2mM \cos \phi}{(M+m)^2} \quad (2)$$

chamando A a relação entre M/m , temos:

$$\frac{E}{E_0} = \frac{A^2 + 1 + 2A \cos \phi}{(A+1)^2} \quad (3)$$

como m é aproximadamente igual a 1 e M difere muito pouco de um número inteiro, a relação A das massas pode ser considerada igual ao número de massa do moderador.

A perda máxima por colisão será:

$$r = \left(\frac{A-1}{A+1} \right)^2$$

então, a equação 3, fica:

$$\frac{E}{E_0} = \frac{1+r}{2} + \frac{1-r}{2} \cos \phi \quad (4)$$

Quando $\phi = 180^\circ$, ocorre a perda máxima de energia. $\cos \phi = -1$ e $E = rE_0$, entretanto se $\phi = 0$, temos $\cos \phi = 1$ e $E = E_0$.

Como E/E_0 definido em (4) é função linear de $\cos \phi$ e todos os valores deste são igualmente prováveis, deduz-se que todos os valores de E/E_0 também o são.

A probabilidade PdE de que um nêutron com energia inicial E_0 tenha uma energia final compreendida entre E e $E+dE$ depois da colisão é dada por:

$$PdE = \frac{dE}{E_0 (1-r)} \quad (5)$$

onde:

$E_0 (1-r)$ representa a série de energia que um nêutron pode ter após a colisão.

A perda fracional média de energia por colisão num meio de massa atômica A é constante e igual a todos os choques elásticos sofridos pelo nêutron rápido até a sua termalização. Assim o nêutron rápido terá a sua energia final E dada pela fórmula

$$E = E_0 (1 - \xi) \quad (6)$$

onde:

ξ representa o decremento logarítmico médio da energia cinética do nêutron rápido numa colisão e pode ser indicado por:

$$\xi = \overline{\ln E_0 - \ln E} = \overline{\ln \frac{E_0}{E}}$$

então,

$$\xi = \int_{rE_0}^{E_0} \ln \frac{E_0}{E} P dE = \int_{rE_0}^{E_0} \left(\ln \frac{E_0}{E} \right) \frac{dE}{E_0 (1-r)} \quad (7)$$

A perda fracional em uma colisão é:

$$\frac{E - E_0}{E} = \frac{dE}{E} = -\xi \quad (8)$$

O sinal negativo da expressão acima nos indica que a energia decresce.

A perda fracional em várias colisões será dada por:

$$\frac{dE}{E} = -\xi dN \quad (9)$$

onde:

dN vem a ser o número de colisões sofridas pelo nêutron rápido.

Integrando-se a expressão acima, temos:

$$E = E_0 e^{-\xi dN} \quad (10)$$

Para sabermos o número de colisões sofridas pelo nêutron até a sua termalização, temos:

$$N = \frac{\ln (E_0 / E)}{\xi} \quad (11)$$

Se conhecemos ξ , podemos determinar o número de colisões sofridas pelo nêutron rápido.

$$\xi = \overline{\ln (E_0 / E)}$$

Substituindo E/E_0 por x na Eq. 7 temos:

$$\xi = \frac{1}{1-r} \int_1^r \ln x \, dx$$

ou

$$\xi = 1 + \frac{r}{1-r} \ln r = 1 + \frac{\left(\frac{A-1}{A+1}\right)^2 \ln \left(\frac{A-1}{A+1}\right)^2}{1 - \left(\frac{A-1}{A+1}\right)^2} \quad (12)$$

A equação 12 pode ser escrita como:

$$\xi = 1 - \frac{(A-1)^2}{2A} \ln \left(\frac{A+1}{A-1}\right) \quad (13)$$

Para valores de $A \gg 10$, uma boa aproximação é tomar:

$$\xi = \frac{2}{A + 2/3}$$

Para $A = 2$ comete-se um erro de aproximadamente 3,3%, usando a aproximação acima.

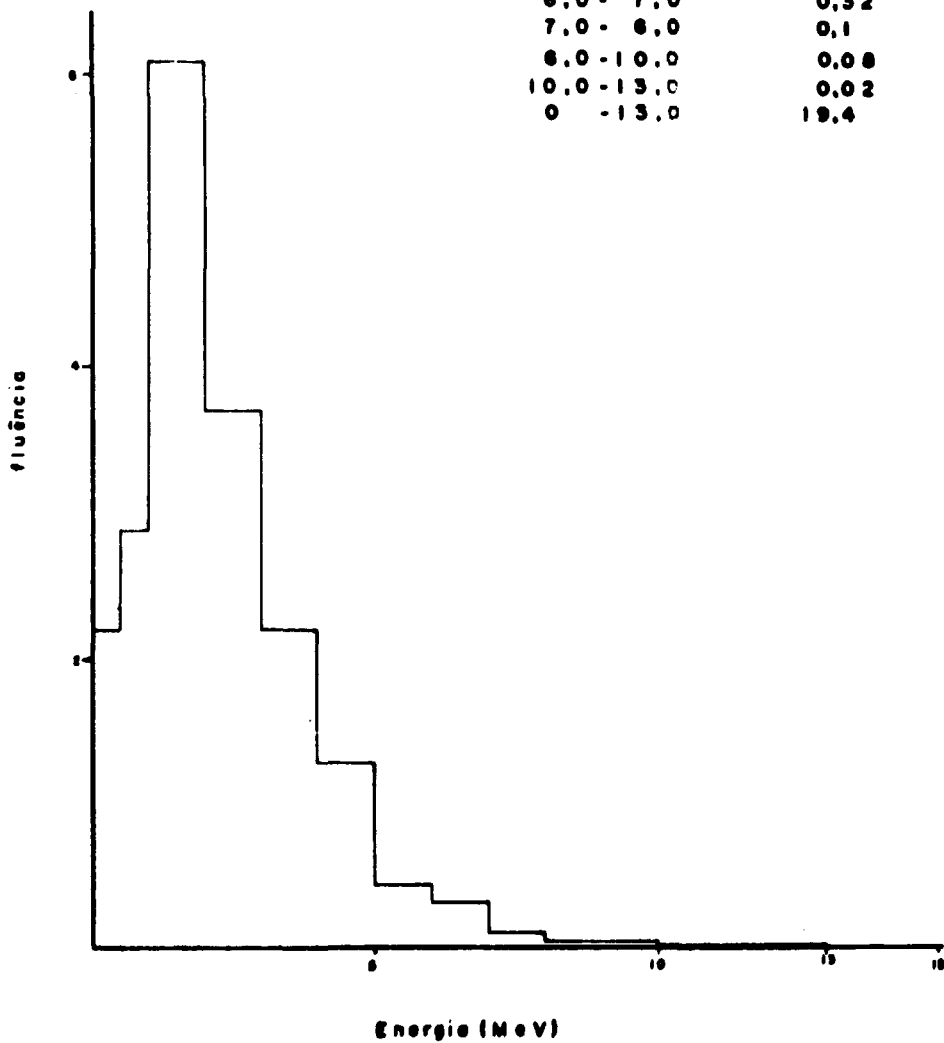
Pode-se verificar por que o valor de ξ depende somente da massa do núcleo alvo, independentemente da energia inicial do nêutron.

APÊNDICE B

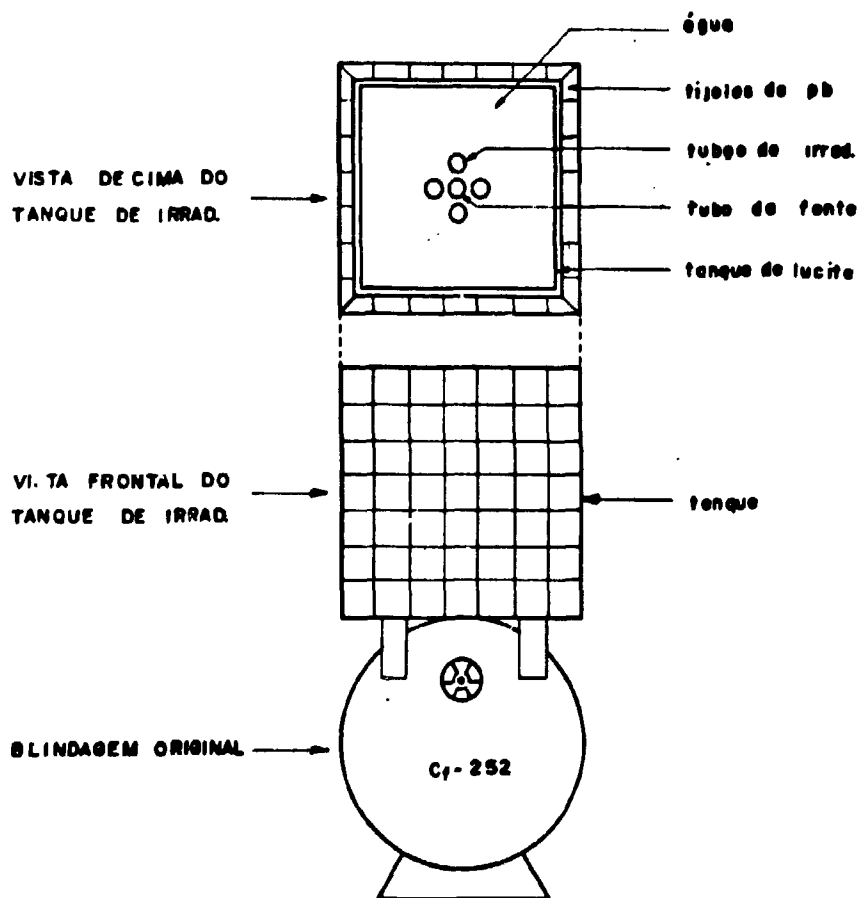
Características Físicas da Fonte de Cf – 252

Nº atômico	98
Peso atômico	252
$T_{1/2}$ para emissão alfa	2,73a
$T_{1/2}$ para fissão espontânea	85,6a
$T_{1/2}$	2,66a
Fração de Decaimento por emissão alfa	97%
Fração de Decaimento por fissão espontânea	3%
Número médio de Nêutrons por fissão espontânea	3,8
Atividade Específica	530 $\mu\text{Ci}/\mu\text{g}$
Espectro de Nêutrons	anexo

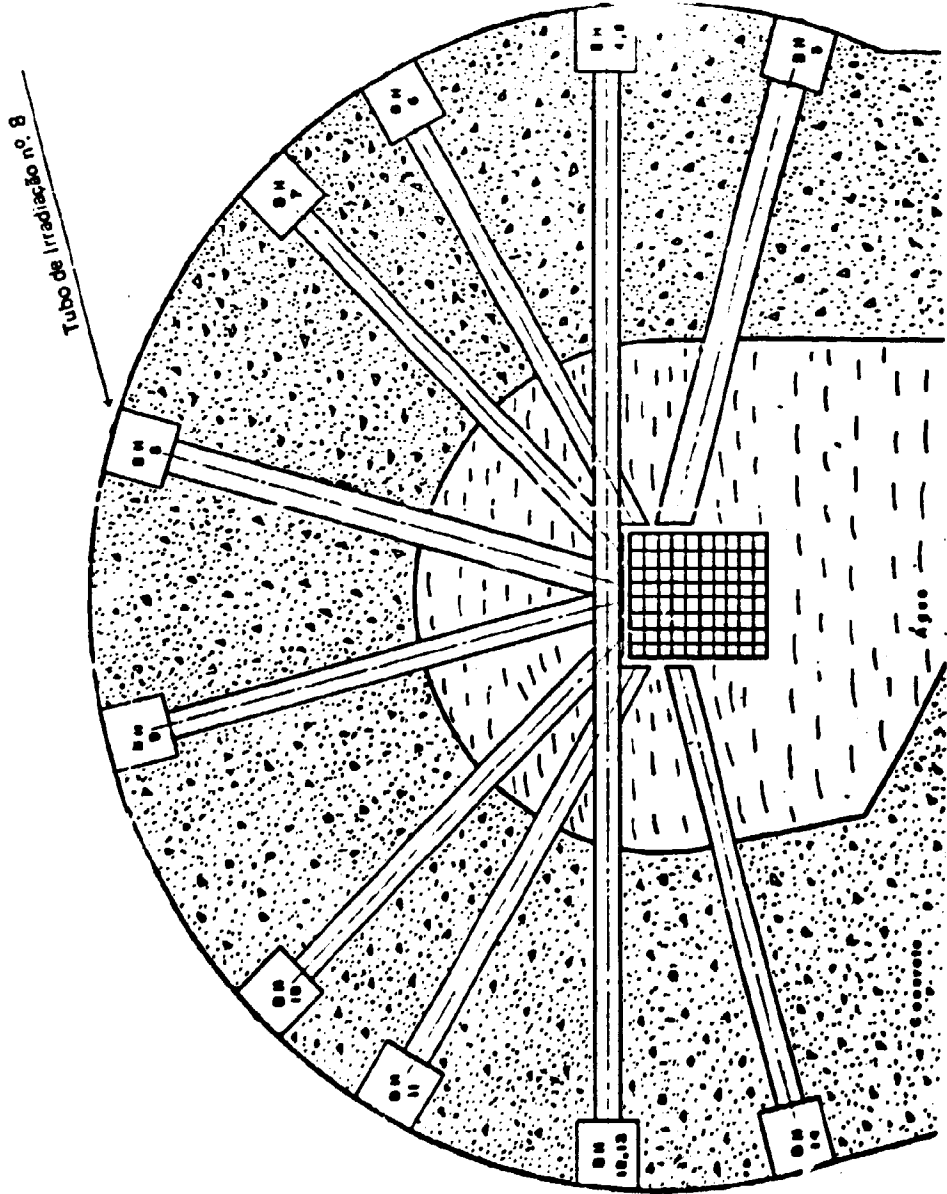
intervalo de energia (MeV)	$\text{cm}^{-2} \text{seg}^{-1}$
0 - 0,5	2,2
0,5 - 1,0	2,9
1,0 - 2,0	6,1
2,0 - 3,0	3,7
3,0 - 4,0	2,2
4,0 - 5,0	1,3
5,0 - 6,0	0,45
6,0 - 7,0	0,32
7,0 - 8,0	0,1
8,0 - 10,0	0,08
10,0 - 13,0	0,02
0 - 13,0	19,4



Razão de Fluência de Nêutrons a 1 m de uma Fonte ^{252}Cf de 1 μg



Arranjo de Irrad. da Fonte ^{252}Cf



IEAR 1 - Tubo de Irradiação Nº 8

ABSTRACT

Natural or doped CaF_2 , due to the presence of ^{44}Ca isotope, capture thermal neutrons by activation. In this condition, they can be used as a thermal neutron dosimeter.

The ^{45}Ca formed self induces TL in CaF_2 by β -emission. The long half-life of ^{45}Ca makes the fluoride of little use as a neutron dosimeter. ^{41}K , ^{79}Br and ^{81}Br can be activated by thermal neutrons. They have larger capture cross-section, higher natural abundance and shorter half-lives than ^{45}Ca . In the present work, we investigated the mixture of natural CaF_2 and KBr as thermal neutron dosimeter compared to pure fluorite. Firstly, it was found that a 50 - 50 mixture in weight produces the highest TL sensitivity when irradiated with thermal neutrons. Second, it was shown experimentally that for TL reading within 30 to 40 hours after irradiation, the radioisotopes ^{42}K , ^{80}Br and ^{80m}Br contribute predominantly, while for periods longer than 4 to 5 days, ^{82}Br also contributes significantly. We found that the addition of KBr enhances the TL response to thermal neutron by a factor of about 13. For the mixture in question, the minimum detectable fluence is of the order of 10^9 n/cm^2 .

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS*

1. ANTONOV-ROMANOVSKII, V. V.; KEIRIM-MARKUS, I. B.; POROSHINA, M. S.; TRAPEZNIKOVA, Z. A. Dosimetry of ionizing radiations with the aid of infrared stimutable phosphors. In: ACADEMY OF SCIENCE URSS. *Proceedings of the conference on peaceful uses of atomic energy, Moscow, July 1-5, 1955*. Moscow, 1955. p.342-81.
2. ATTIX, F. H., ed. *Luminescence dosimetry: proceedings of international conference... Stanford, Calif., June 21-23, 1965*. Oak Ridge, Tenn., USAEC. Division of Technical Information, Apr. 1967. (CONF-650637).
3. BACON, G. E. *Neutron physics*. London, Wykehan, 1969.
4. CAMERON, J. R.; DANIELS, F.; JOHNSON, N.; KENNEY, G. Radiation dosimetry utilizing thermoluminescence of lithium fluoride. *Science (New York)*, 134(3475):333-4, Aug. 1961.
5. CAMERON, J. R.; SUNTHARALINGAM, N.; KENNEY, G. N. *Thermoluminescence dosimetry*. Madison, Wis., Univ. Wisconsin, 1968.
6. CEMBER, H. *Introduction to health physics*. Oxford, Pergamon, 1969. (International series of monographs in nuclear energy, 105).
7. COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR, *Normas básicas de proteção radiológica*. Rio de Janeiro, 1963. (Resolução CNEN-6/73).
8. CRUZ, M. T. *Propriedades termoluminescentes da fluorita brasileira de coloração violeta*. São Paulo, 1972. (Tese de doutoramento).
9. DANIELS, F. Thermoluminescence and related properties of crystals. In: SYMPOSIUM on chemistry and physics of radiation dosimetry, 1950. Maryland, Md., Army Chemical Center. Technical Command. [s.d.].
10. DEUS, S. F. *Estudo comparativo de dosímetros fotográficos, termoluminescentes e radiofotoluminescentes*. São Paulo, 1971. (Dissertação de Mestrado).

(*) As referências bibliográficas relativas a documentos localizados pelo IEA foram revistas e enquadradas no NB-86 da ABNT.

11. GINTHER, R. J. & KIRK, R. D. *Thermoluminescence of CaF₂:Mn and its application to dosimetry: progress report, September 1956.* (NRL Report) apud CAMERON, J. R.; SUNTHARALINGAM, N.; KENNEY, G. N. *Thermoluminescent dosimetry.* Madison, Wis., Univ. Wisconsin, 1968. p.204.
12. HALL, E. J. & ROSSI, H. H. *Californium-252 in teaching and research.* Vienna, International Atomic Energy Agency, 1974. (Technical reports series, 159).
13. ING, H. & CROSS, W. G. Spectra and dosimetry of neutrons from moderation of ²³⁵U and ²⁵²Cf fission sources in H₂O, *Health Phys.*, 29:839-51, Dec. 1975.
14. MAYHUGH, M. R. & WATANABE, S. *Fast neutron detection by phosphor activation.* São Paulo, Instituto de Energia Atômica, set. 1973. (IEA-Pub-308).
15. MAYHUGH, M. R.; WATANABE, S.; MUCCILLO, R. *Thermal neutron dosimetry by phosphor activation.* São Paulo, Instituto de Energia Atômica, dez. 1971. (Presented to the Third international conference on luminescence dosimetry, Risø, Denmark, October 1971). (IEA-Pub-258).
16. MORATO, S. P. *Modelo contínuo para armadilhas termoluminescentes.* São Paulo, 1970. (Dissertação de Mestrado).
17. MORGAN, K. Z. & TURNER, J. E., eds. *Principles of radiation protection.* New York, N. Y., Wiley, 1967. p.142.
18. MUCCILLO, R. *Dosimetria termoluminescente de nêutrons com fluorita natural.* São Paulo, 1970. (Dissertação de Mestrado).
19. NAMBI, K. S. V. *Thermoluminescence its understanding and applications.* São Paulo, Instituto de Energia Atômica, mai. 1977. (IEA-Inf.-54; CPRD-AMD-1).
20. OKUNO, E. *Propriedades termoluminescentes do fluoreto de cálcio natural.* São Paulo, 1971. (Tese de Doutorado).
21. PEARSON, D. W. & MORAN, P. R. *Fast neutron dosimetry by activation of thermoluminescence phosphors.* Madison, Univ. of Wisconsin, 1974. (COO-1105-213).
22. PEARSON, D. W.; WAGNER, J.; MORAN, P. R.; CAMERON, J. R. *Fast neutron dosimetry using activated thermoluminescence phosphors.* Madison, Wis., Univ. of Wisconsin, [s.d.]. (COO-1105-175).
23. PRICE, W. J. *Nuclear radiation detection.* 2.ed. New York, N. Y., McGraw-Hill, 1964.
24. PURCELL, J. D.; TOUSEY, R.; WATANABE, K. Observations at high altitudes of extreme ultraviolet and X-rays from the sun. *Phys. Rev.*, 76(1):165-8, item B13, Jul. 1949.
25. RANDALL, J. T. & WILKINS, M. H. F. Phosphorescence and electron traps. *Proc. R. Soc. (A)*, 184:366, 390, 1975.
26. SCHAYES, R. & LOTHIOR, N. 1964 – *Thermoluminescence phenomenon and its application to the dosimetry of ionizing radiation.* (In French). (Presented at the Int. Symp. on dosimetry of irradiat. from external sources, Paris 1964) apud CAMERON, J. R.; SUNTHARALINGAM, N.; KENNEY, G. N. *Thermoluminescent dosimetry.* Madison, Wis., Univ. Wisconsin, 1968. p. 220.

27. SPURNÝ, Z. Thermoluminescent dosimetry. *Atom. Energy Rev.*, 3(2):61-115, 1965.
28. STOEBE, T. G. & WATANABE, S. Thermoluminescence and lattice defects in LiF *Phys. Stat. Solidi (A)*, 29(1):11-9, May 1975.
29. SUNTA, C. M. Optically produced thermoluminescence glow peaks in fluorite. *Phys. Stat. Solidi*, 37:K81-K83, 1970.
30. SUNTA, C. M.; NAMBI, K. S. V.; BAPAT, V. N. Fast-neutron response of thermoluminescent detectors with the proton radiation technique. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. *Neutron monitoring for radiation protection purposes: proceedings of a symposium on ... held in Vienna, 11-15 December 1972, V.2.*, Vienna, 1973. p.57-61.
31. TOUSEY, R.; WATANABE, K.; PURCELL, J. D. Measurements of solar extreme ultraviolet and X-rays from rockets by means of a CaSO_4 Mn phosphor. *Phys. Rev.*, 83(4):792-7, Aug. 1951.
32. WATANABE, S. *Propriedades de termoluminescência do LiF:Mg*. São Paulo, 1969. (Tese de livre-docência).
33. WIEDMANN, E. & SCHIMIDT, G. C. 1895 - Luminescence. *Ann. Phys.*, 54:604. (In German) apud CAMERON, J. R.; SUNTHARALINGAM, N.; KENNEY, G. N. *Thermoluminescent dosimetry*. Madison, Wis., Univ. Wisconsin, 1963. p.226.



•
•

INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA
Caixa Postal, 11049 – Pinheiros
CEP 05508
01000 – São Paulo – SP

Telefone: 211-6011
Endereço Telegráfico – IEATOMICA
Telex – 011-23592 IENA BR