

**UTILIZAÇÃO DE VIDROS COMO DETECTORES DE RADIAÇÃO
PARA ALTAS DOSES***

Linda CALDAS

COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR
INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Caixa Postal 11049 - Pinheiros
05499 - São Paulo - BRASIL

RESUMO

Amostras de vidros foram estudadas em relação à possibilidade de sua utilização em dosimetria de altas doses tanto na área médica como industrial. Suas características principais foram determinadas: dose mínima detectável, reprodutibilidade, resposta à radiação gama de ^{137}Cs e ^{60}Co e decaimento térmico à temperatura ambiente, utilizando-se as técnicas de absorção óptica e termoluminescência.

(*) Trabalho apresentado no III Congresso Brasileiro de Físicos em Medicina, Águas de Lindóia, São Paulo, 23-26 Agosto 1989.

USE OF GLASSES AS RADIATION DETECTORS FOR HIGH DOSES*

Linda CALDAS

COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR
INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Caixa Postal 11049 - Pinheiros
05499 - São Paulo - BRASIL

ABSTRACT

Glass samples were tested in relation to the possibility of use in high dose dosimetry in medical and industrial areas. The main characteristics were determined: detection threshold, reproducibility, response to gamma radiation of ^{137}Cs and ^{60}Co and thermal decay at ambient temperature, with the use of optical absorption and thermoluminescence techniques.

(*) Paper presented at the III Brazilian Congress of Physicists in Medicine, held at Águas de Lindóia, São Paulo, Brazil, 23-26 Aug. 1989.

INTRODUÇÃO

Com a crescente utilização da radiação em processos industriais, como a esterilização de alimentos e materiais cirúrgicos, preservação de alimentos e reticulação de polímeros, entre outros, surgiram diversos métodos de dosimetria para altas exposições.

Têm sido definidos na área industrial três intervalos diferentes de doses: o intervalo de doses "baixas" entre 10 Gy e 3 kGy; o intervalo de doses "médias" entre 1 kGy e 10 kGy; e o intervalo de doses "altas" entre 5 kGy e 100 kGy. O intervalo de doses "baixas" é utilizado para inibir a germinação de cebolas e batatas, no tratamento de grãos e para permitir a armazenagem de vários produtos alimentares. O intervalo de doses "médias" é utilizado na pasteurização de produtos alimentares e desinfecção de rejeitos sólidos e líquidos, enquanto que o intervalo de doses "altas" inclui a esterilização de produtos alimentares e médicos e vários tratamentos de plásticos.

Os materiais mais utilizados na dosimetria têm sido os calorímetros⁽⁶⁾, os plásticos^(6,9,10,13), as alaninas⁽¹¹⁾, e o de Fricke⁽⁶⁾, mas há outros ainda, como o sal de Mohr⁽⁷⁾ e os procedimentos envolvendo os materiais dosimétricos normalmente utilizados na monitoração individual e ambiental^(2,3,4,5,8).

No caso da técnica da termoluminescência, é possível a dosimetria de altas exposições, considerando-se o crescimento dos picos de altas temperaturas do CaSO_4 especial, com concentração alta de disprósio⁽⁵⁾, ou medindo-se a termoluminescência fotoestimulada, após submeter as amostras a tratamentos com luz ultravioleta, do $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ normal^(3,5), determinando-se doses de até 3×10^6 Gy. Utilizando-se LiF, também é possível a dosimetria termoluminescente até 10^5 Gy, por meio de técnicas computacionais⁽⁸⁾.

Medindo-se a absorção óptica de monocristais de LiF pela banda Z_3 chegou-se a 10^4 Gy⁽⁴⁾, pelas bandas F, M, R e N, a 10^7 Gy⁽²⁾ e pela

banda localizada em 780 nm, a 10^8 Gy⁽²⁾.

Os danos devidos às altas doses de radiação sofridos pelo LiF não são desprezíveis, enquanto que no caso de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$, o material pode ser restaurado por tratamento térmico adequado⁽¹⁾.

Os sistemas descritos envolvem ou material importado ou equipamento de medida sofisticado. O objetivo do presente trabalho é obter dosímetros de rotina, que devem ser de fácil manuseio, de baixo custo e devem ainda permitir uma resposta de rápida análise, pois serão empregados em maior quantidade e frequência que os dosímetros chamados de referência. Devem de preferência poder determinar doses tanto da área médica como da área industrial.

Sibley⁽¹²⁾ estudou os efeitos da radiação em cristais halogêneos e vidros; embora não tenha observado centros F nas amostras de vidro, concluiu que há várias características semelhantes entre os dois materiais.

Os vidros especiais de fosfato foram os primeiros dosímetros de estado sólido (radiofotoluminescentes) empregados em monitoração pessoal, por volta de 1956. Esta técnica foi substituída pela dosimetria termoluminescente, que é mais vantajosa sob muitos pontos de vista. Zheng e col.⁽¹⁴⁾ utilizaram vidro de janela como dosímetro de rotina para altas exposições, tendo medido a absorção óptica em 500 nm e chegando à conclusão de que o material era independente de umidade, taxa de dose, temperatura até 50°C e luz, além de apresentar possibilidade de medir doses entre 10^2 e 10^5 Gy.

No presente trabalho verificou-se a possibilidade de utilização de vidros comuns em dosimetria de altas exposições, não só pela técnica de absorção óptica, mas também pela termoluminescência.

MATERIAIS E MÉTODOS

Como amostras foram utilizados vidros com dimensões de 10x10x2 mm, da firma Cristais Erve. Uma análise deste material, por ativação com nêutrons, realizada pelo Departamento de Radioquímica do IPEN, revelou a presença de 8,7% de Na, 4,7% de Ca, 927,6 ppm de Fe e 24,4 ppm de Ba, além de Cr, Hf, Cs, Sb, Sc e Ta, em concentrações inferiores a 8 ppm.

Inicialmente as amostras foram divididas em dois lotes e submetidas a tratamentos térmicos a 250 e 300°C durante 15 minutos. Estes procedimentos foram seguidos entre cada experiência para reutilização do material.

Para irradiação foram utilizadas a fonte de ^{137}Cs (38 TBq) Cesa-pan-M, do Laboratório de Calibração do IPEN e a fonte de ^{60}Co (240 TBq) Gammacell-220, Atomic Energy of Canada Ltd., do Departamento de Radioquímica do IPEN.

As medidas da resposta dos vidros foram realizadas utilizando-se um densitômetro Macbeth-Ansco, modelo TD 504, EUA, um espectrofotômetro da região visível do espectro (340 a 1000 nm) e de feixe simples Micro-nal, modelo B 34211, Brasil, e um sistema leitor de termoluminescência (TL) Harshaw Chemical Co., modelo 2000 AB, EUA. No caso das medidas TL, a taxa de aquecimento foi de 3,3°C/s e as curvas de emissão foram registradas num graficador ECB, modelo RB 102, Brasil.

Para comparação dos comportamentos, foram ainda utilizadas amostras de LiF sob forma de pastilhas (TLD-100 e TLD-600) e de monocristais (TLD-100 e puro), da Harshaw Chemical Co., EUA. As dimensões das pastilhas são: 3x3x0,9mm, e dos monocristais de TLD-100: 10x10x1,5 mm e de LiF puro: 7x10x1 mm.

RESULTADOS

Para a verificação da possibilidade de utilização de vidros comuns na dosimetria de altas exposições, foram estudadas as principais

características necessárias para que um material possa ser considerado dosimétrico: uniformidade do lote de amostras, reprodutibilidade, reutilização, resposta a diferentes doses de radiação gama de ^{137}Cs e ^{60}Co , mostrando sua dependência energética, e decaimento térmico à temperatura ambiente, pelas técnicas de medida de absorção óptica (densitômetro e espectrofotômetro) e termoluminescência.

No caso das medidas de absorção óptica com o espectrofotômetro, observou-se uma banda a 452 nm (Fig. 1) sensível à radiação e no caso da termoluminescência a curva de emissão apresentou um pico a 190°C (Fig.2).

Uniformidade de Lote e Reprodutibilidade

Para testar a uniformidade do lote de amostras e a reprodutibilidade da resposta, dois grupos de vidros, contendo 5 exemplares cada um, diferindo apenas quanto ao tratamento térmico prévio, 250 e 300°C, foram irradiados dez vezes com 10^3Gy de radiação gama de ^{137}Cs . Na Tabela 1 têm-se os valores do desvio padrão médio percentual, representando a uniformidade do lote de amostras, para cada técnica de medida. Na mesma tabela está representada a reprodutibilidade das medidas, por técnica, onde se tomou a média dos valores de desvio padrão percentual de cada amostra.

TABELA 1

Uniformidade do lote de amostras (s_1) e reprodutibilidade (s_2) de 10 medidas com 5 amostras, após irradiação com ^{137}Cs (10^3Gy).

s_1 : Desvio padrão médio percentual

s_2 : Média dos valores de desvio padrão percentual individual

Equipamento de medida	Tratamento térmico prévio 250°C		Tratamento térmico prévio 300°C	
	s_1	s_2	s_1	s_2
Densitômetro	4,4	13,7	3,4	16,4
Espectrofotômetro	0,5	8,5	1,4	6,2
Leitor TL	2,6	19,9	11,6	12,2

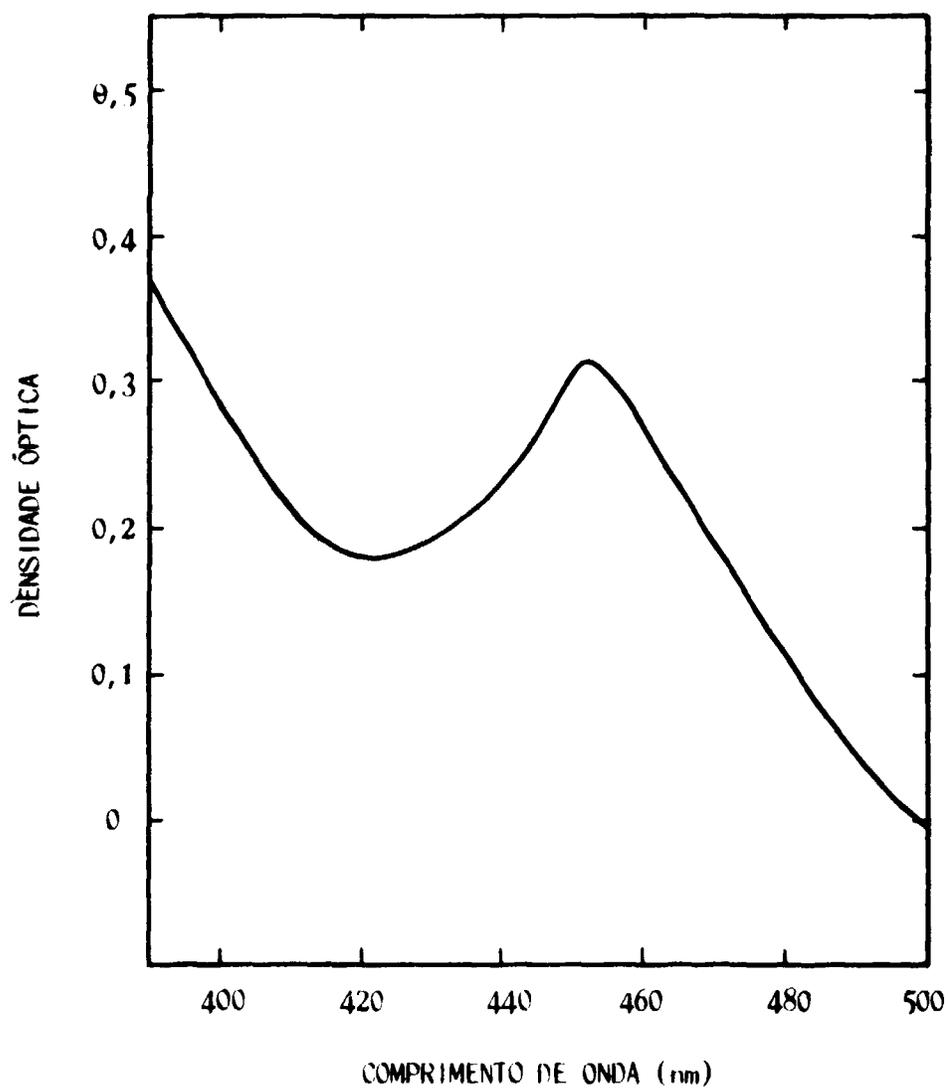


Fig. 1: Espectro de absorção óptica de uma amostra de vidro tratada termicamente a 250°C durante 15 minutos e irradiada com ^{137}Cs (10^3Gy).

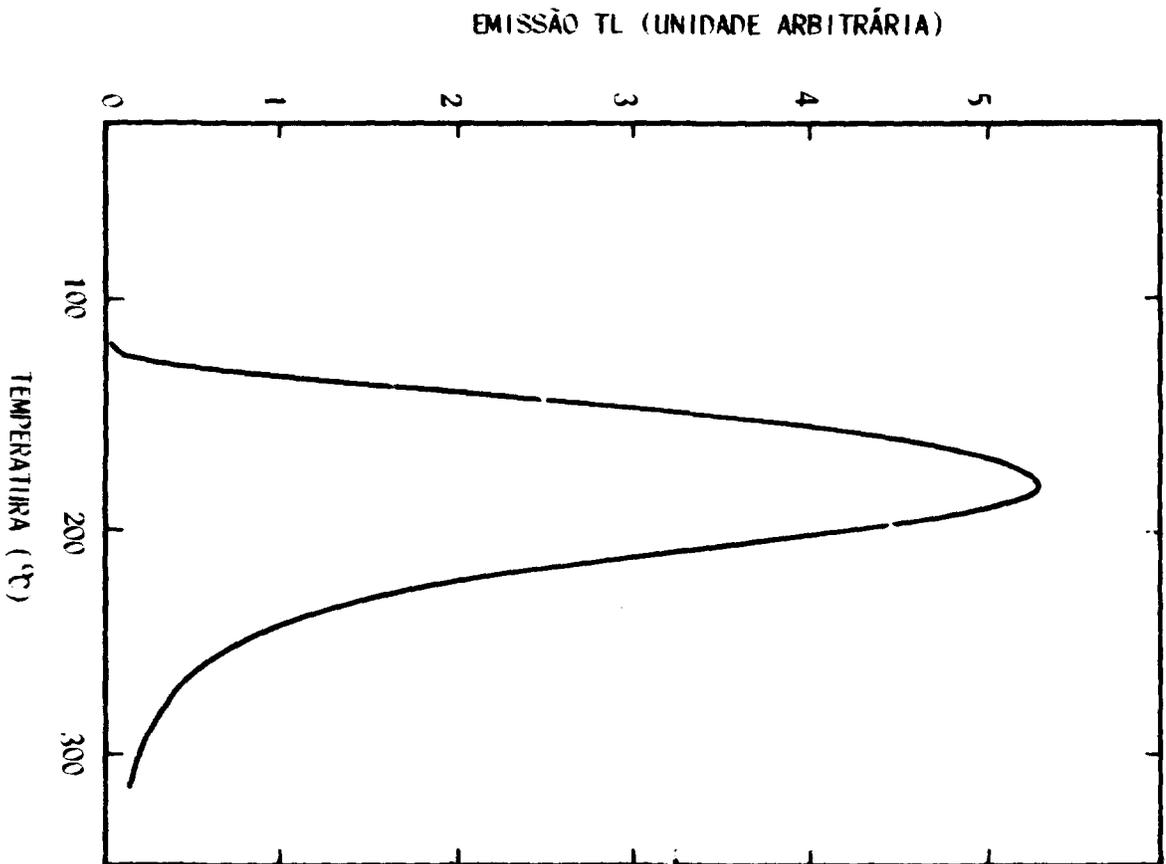


Fig. 2: Curva de emissão termoluminescente de uma amostra de vidro tratada termicamente a 250°C durante 15 minutos e irradiada com ^{137}Cs (10^3Gy).

Pode-se observar que os melhores resultados foram obtidos com o espectrofotômetro. No caso da TL, foi possível aperfeiçoar a uniformidade do lote de amostras para 1,6 e 4,5% respectivamente para os casos de 250 e 300°C, utilizando-se amostras de vidro menores que os empregados na obtenção dos dados da Tabela 1, permitindo um contacto térmico muito melhor entre as amostras e a prancheta do sistema leitor de termo-luminescência. A reprodutibilidade apresentou uma variação máxima de 2% em relação aos valores da Tabela 1.

Reutilização

Das experiências realizadas para o estudo da reprodutibilidade não se notou nenhuma perda ou aumento da sensibilidade das amostras no decorrer das 10 irradiações e medidas subsequentes com as três técnicas, após o tratamento térmico prévio tanto de 250°C como de 300°C. Os dois tipos de tratamentos térmicos apresentam a mesma utilidade em relação à reutilização.

Dose Mínima Detectável

Tomando-se três vezes o valor do desvio padrão de 10 medidas de 4 amostras de vidros não irradiados, expresso em unidades de dose absorvida, tem-se a dose mínima detectável. Foram obtidos os valores de 390, 200 e 1,5 Gy, utilizando-se respectivamente os equipamentos: densitômetro, espectrofotômetro e leitor termoluminescente.

Resposta à Dose Absorvida

As amostras foram submetidas à radiação de ^{137}Cs entre 1 e 10^4 Gy de dose absorvida. Nas Fig. 3, 4 e 5 têm-se as curvas de calibração obtidas, relativas às medidas respectivamente de absorção óptica (densitômetro e espectrofotômetro) e de termoluminescência. Pode-se observar a ocorrência de linearidade entre 6×10^2 e 5×10^3 Gy para as medidas com

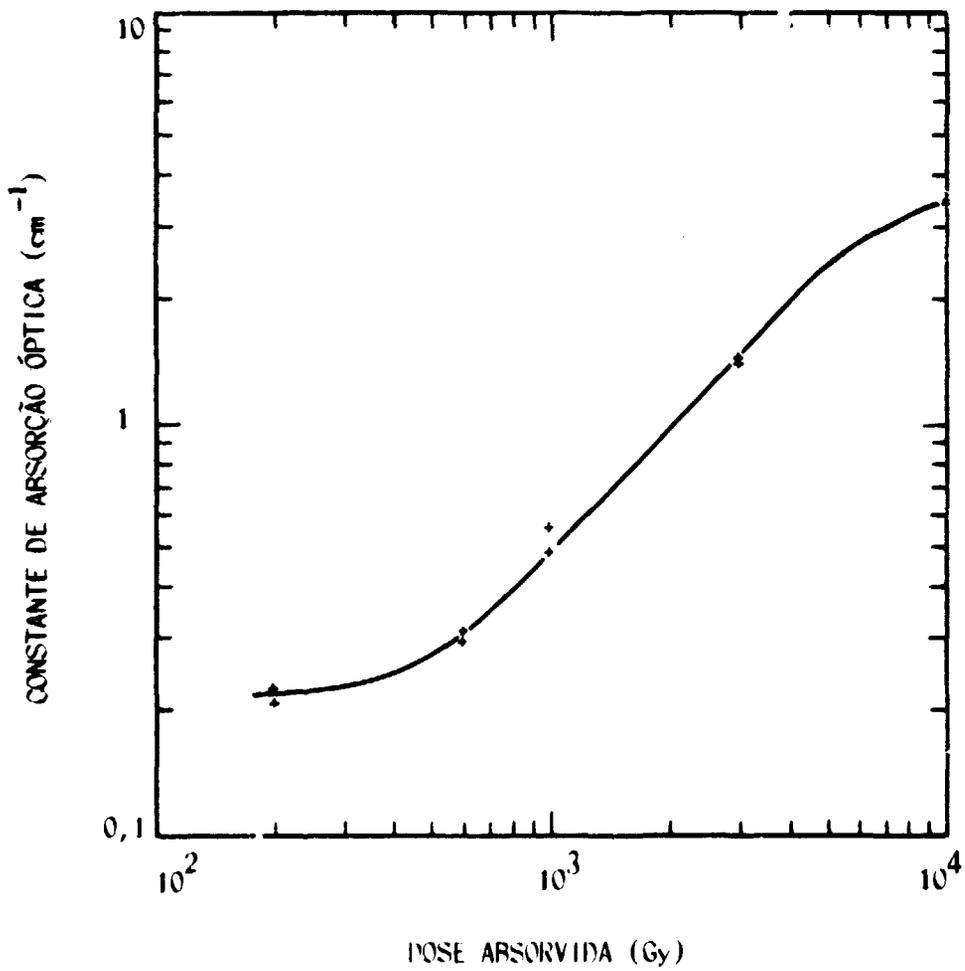


Fig. 3: Curva de calibração obtida com amostras de vidro tratadas termicamente a 250°C durante 15 minutos e irradiadas com ¹³⁷Cs. Medidas realizadas com densitômetro.

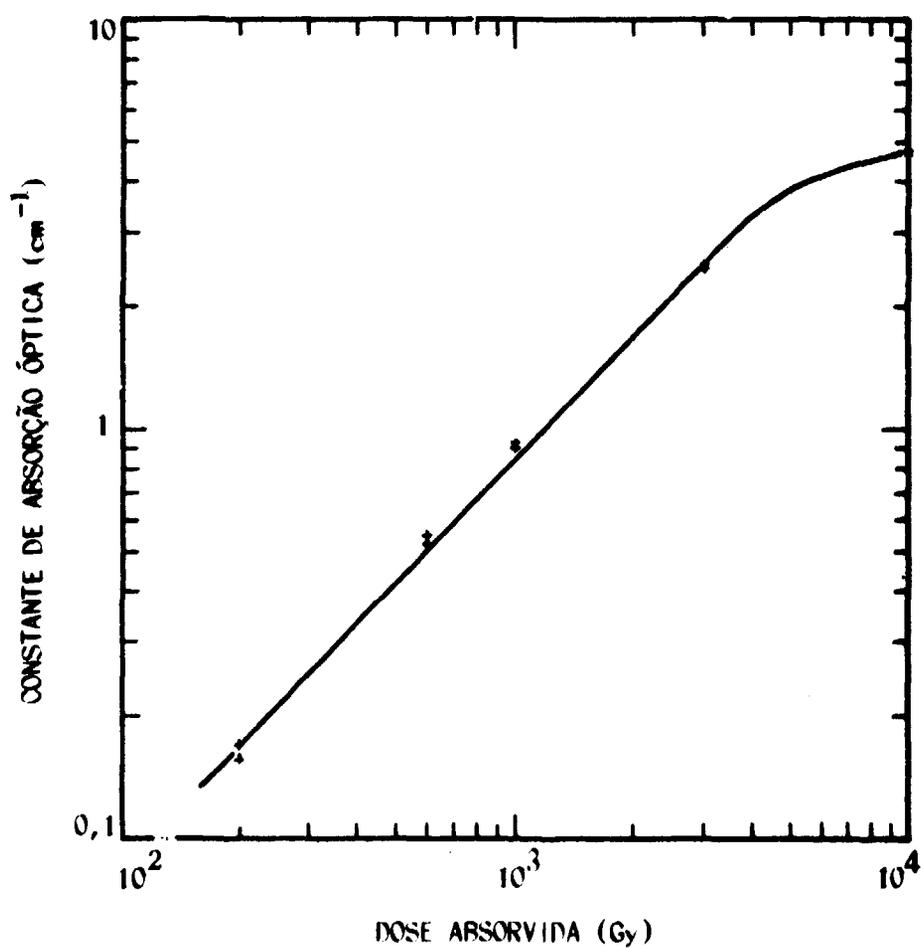


Fig. 4: Curva de calibração obtida com amostras de vidro tratadas termicamente a 250°C durante 15 minutos e irradiadas com ¹³⁷Cs. Medidas realizadas com espectrofotômetro ($\lambda = 452\text{nm}$).

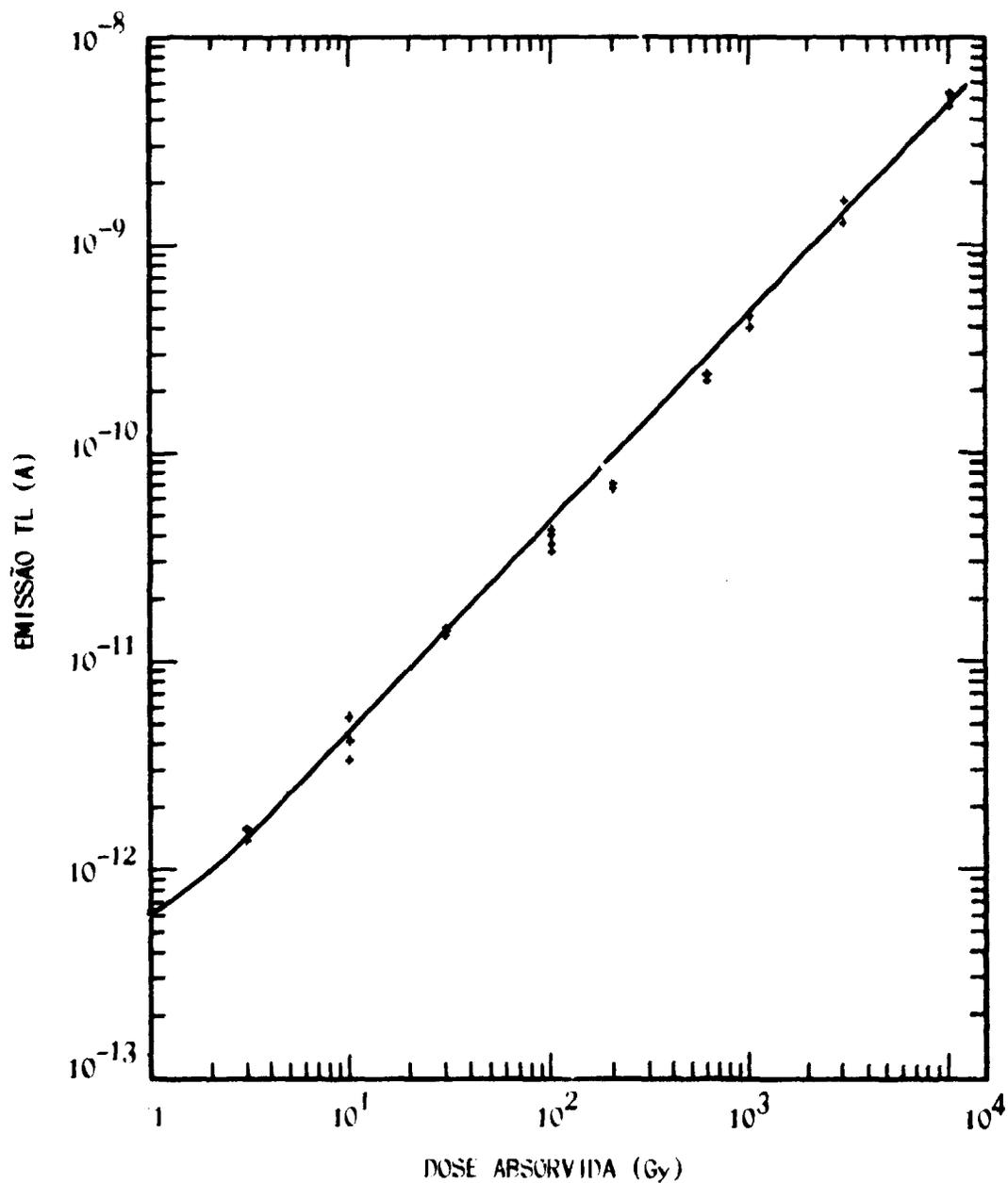


Fig. 5: Curva de calibração obtida com amostras de vidro tratadas termicamente a 250^oC durante 15 minutos e irradiadas com ¹³⁷Cs. Medidas de termoluminescência.

o densitômetro, entre 2×10^2 e 4×10^3 Gy para as medidas com o espectrofotômetro, e entre 3 e 1×10^4 Gy para as medidas de termoluminescência. No caso das Fig. 3 e 4 nota-se que a resposta acima de 10^4 Gy tende a uma saturação.

Representando-se, no caso de cada uma das técnicas, a resposta em função da dose absorvida, em papel semi-logarítmico também foi possível a determinação da dose mínima detectável. Os valores obtidos concordaram com os do método do desvio padrão.

Dependência Energética

As amostras de vidro, em lotes de 5 unidades, foram também irradiadas com ^{60}Co (10^3 Gy) e os resultados foram comparados com os de ^{137}Cs na Tabela 2.

TABELA 2

Dependência energética dos vidros para radiação de ^{60}Co e ^{137}Cs para uma dose absorvida de 10^3 Gy, por técnica utilizada.

Equipamento de medida	^{60}Co	^{137}Cs	A/B
	A	B	
Densitômetro absorção óptica α (cm^{-1})	0,518	0,490	1,06
Espectrofotômetro absorção óptica α (cm^{-1})	1,48	0,876	1,69
Leitor TL corrente (10^{-9}A)	4,06	2,10	1,93

Pode-se observar que a dependência energética é marcante principalmente nos casos do espectrofotômetro e do leitor TL, que são justamente as duas técnicas mais sensíveis neste estudo. Dependendo da radia-

ção a ser detectada, torna-se portanto muito importante a calibração das amostras com a energia da radiação em questão.

Decaimento Térmico

As amostras de vidro foram inicialmente irradiadas com $8,4 \times 10^3$ Gy (^{137}Cs) e o decaimento térmico à temperatura ambiente foi estudado até um total de 215 dias. No princípio a resposta apresentou um decaimento pronunciado: em 25 dias ela atingiu a metade do seu valor inicial; em seguida o decaimento mostrou-se mais lento. A partir de 50 dias da irradiação a resposta é linear em função do tempo de armazenagem: em 165 dias decaiu apenas 20%.

Comparação com Outros Materiais

A fim de comparar a sensibilidade dos vidros à radiação gama do ^{60}Co com outros materiais dosimétricos, foram submetidas à mesma dose de radiação amostras transparentes de LiF (TLD-100 e puro, monocristais), com possibilidade de medida tanto de absorção óptica como de TL, e amostras opacas de LiF (TLD-100 e TLD-600, pastilhas), para medidas de TL. Todas estas amostras, em lotes de 5 unidades, foram previamente tratadas termicamente a 400°C durante 1 hora e irradiadas com 10^3 Gy de ^{60}Co . Na Tabela 3 têm-se os resultados obtidos, onde os valores de desvio padrão não ultrapassaram 4,0%, no caso das medidas de TL.

Verifica-se que o material TL mais sensível é o vidro, para esta faixa de doses. No caso da absorção óptica, as amostras de LiF puro não apresentaram bandas no espectro da região visível e as pastilhas são opacas. Os monocristais de LiF TLD-100 apresentaram uma banda a 450 nm, relacionada com os centros M, com possibilidade de utilização em dosimetria de altas doses.

Não foi possível a medida de absorção óptica com o densitômetro de nenhuma das amostras de LiF, por falta de sensibilidade.

TABELA 3

Sensibilidade à radiação de ^{60}Co (10^3Gy) de alguns materiais dosimétricos, em comparação com a dos vidros; resposta normalizada para a massa no caso da TL. Cada valor representa a média de 5 medidas.

Material	Resposta TL (A)	Constante de absorção óptica (cm^{-1})
Vidro	$4,06 \times 10^{-9}$	1,48
LiF TLD-100 monocristais	$1,43 \times 10^{-4}$	0,78
LiF puro monocristais	$3,64 \times 10^{-7}$	-
LiF TLD-100 pastilhas	$3,63 \times 10^{-4}$	-
LiF TLD-600 Pastilhas	$4,18 \times 10^{-4}$	-

CONCLUSÕES

As características dosimétricas estudadas das amostras de vidro mostram que elas podem ser utilizadas em dosimetria de altas doses. Observou-se que a calibração para a energia da radiação a ser detectada é de fundamental importância; o decaimento térmico também tem que ser levado em conta, com a aplicação de fatores de correção à resposta do material.

A possibilidade de reutilização, a uniformidade do lote de amostras e a aplicação num intervalo de dose de pelo menos quatro décadas (de 1 a 10^4Gy , caso TL) são também características importantes em dosimetria. As amostras são, ainda, de tamanho reduzido, de fácil manuseio e de baixo custo.

Mas a principal vantagem da utilização dos vidros em dosimetria

de altas doses está na possibilidade de se poder escolher para a sua medida desde um equipamento muito simples, como o densitômetro, ou um espectrofotômetro também simples, de feixe único e de região espectral visível, obtendo-se medidas não destrutivas, até um equipamento sofisticado como é o da medida TL, que apresenta grande utilidade para medidas comprobatórias, além de permitir a determinação de doses desde 1,5 Gy.

AGRADECIMENTOS

A autora agradece ao Sr. Mauro L. de Azevedo da firma Cristais Erve, São Paulo, que muito gentilmente forneceu as amostras de vidro para este estudo, ao colegas Sr. Marcos Xavier e Srtã. Maria da Penha P. Albuquerque, pela assistência técnica, e ao Dr. Luiz A.R. da Rosa, por valiosas sugestões.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. BHATT, B.C.; LAKSHMANAN, A.R.; SHINDE, S.S.; BHATT, R.C. Radiation damage in LiF:Mg, Ti and CaSO₄:Dy TLD phosphors. *Radiat. Prot. Dosim.*, 25(1):37-41, 1988.
2. BAEYENS, B.; CONINCKX, F.; MATER, P.; SCHÖNBACHER, H. Investigations of the use of LiF crystals for routine high-level dosimetry at CERN. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. *High-Dose Dosimetry: proceed. intern. symposium on... held in Vienna, Austria, 8-12 October 1984*, Vienna, 1985, p. 275-283.
3. CALDAS, L.V.E. & MAYHUGH, M.R. Photo-TL in CaSO₄:Dy-High exposure dosimetry. *Health Physics*, 31:451-452, 1976.
4. CALDAS, L.V.E.; MAYHUGH, M.R.; STCEBE, T.G. Optical absorption and thermoluminescence in LiF TLD-100. *J. Appl. Phys.*, 54(6):3431-3437, 1983.

5. CHANDRA, B.; BHATT, R.C.; SUPE, S.J. High level γ -dosimetry using CaSO_4 :Dy phosphor with high Dy-concentration. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, 32:553-558, 1981.
6. GENERALOVA, V.V.; GURSKII, M.N.; PIKAEV, A.K. Dosimetry in radiation processing in the U.S.S.R. *Radiat. Phys. Chem.*, 37(4-6): 449-466, 1988.
7. HICKMAN, C.; LORRAIN, S.; BARTHE, J.R.; PORTAL, G. Use of Mohr's salt for high level gamma dosimetry (up to 10^8 Gy). *Radiat. Prot. Dosim.*, 17:255-257, 1986.
8. HOROWITZ, Y.S. & MOSCOVITCH, M. Computerized glow curve deconvolution applied to high dose (10^2 - 10^5 Gy) TL dosimetry. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.*, A243:207-214, 1986.
9. HUMPHREYS, J.C.; FARRAR IV, H.; FAIRAND, B.P. ASTM dosimetry activities: a progress report. *Radiat. Phys. Chem.* 31(4-6):409-412, 1988.
10. McLAUGHLIN, W.L.; BA, W.-Z.; CHAPPAS, W.J. Cellulose diacetate film dosimeters. *Radiat. Phys. Chem.*, 31(4-6):481-490, 1988.
11. REGULLA, D.F. & DEFFNER, U. Progress in alanine/ESR transfer dosimetry. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. *High-Dose Dosimetry: proceed. intern. symposium on... held in Vienna, Austria, 8-12 October 1984*, Vienna, 1985, p.221-235.
12. SIBLEY, W.A. Radiation processes in halide crystals and glasses. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.*, B32:194-200, 1988.
13. UENO, K. Development of a plastic dosimeter for industrial use with high doses. *Radiat. Phys. Chem.* 31(4-6):467-472, 1988.
14. ZHENG, Z.; HONGGUI, D.; JIE, F.; DAOCHUAN, Y. Window glass as a routine dosimeter for radiation processing. *Radiat. Phys. Chem.*, 31(4-6):419-423, 1988.