

REGINALDO MUCCILLO

DOSIMETRIA TERMOLUMINESCENTE
DE NEUTRONS COM CaF_2 NATURAL

Tese apresentada ao Instituto de Física
da Universidade de São Paulo para a
obtenção do Título de Mestre em Ciências

1970

REGINALDO MUCCILLO

DOSIMETRIA TERMOLUMINESCENTE DE
NEUTRONS COM CaF_2 NATURAL



Tese apresentada ao Instituto
de Física da Universidade de
São Paulo para a obtenção do
título de Mestre em Ciências

Orientador:

Prof. Dr. Shiguo Watanabe

1970

INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA

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

A realização dêste trabalho somente foi possível devido ao incentivo e eficiente orientação do Prof. Dr. Shiguo Watanabe, a quem agradecemos.

Agradecemos ainda

Ao Instituto de Energia Atômica, na pessoa do Dr. Rômulo Ribeiro Pieroni, pela utilização de quase todo o aparelhamento e pelas facilidades para a realização - dêste trabalho,

Aos Srs. Mathias e César, do Contrôlo do Reator, pelas irradiações de nossas amostras,

Ao Sr. Eron C. Oliveira, do S.P.R.D. do Instituto de Energia Atômica, pelas irradiações com as fontes Ra- -Be,

Ao colega Yamato Miyao, pelas medidas com o Analisador Multicanal no Laboratório do Acelerador Linear, Instituto de Física da U.S.P.,

Aos Profs. Dr. Olácio Dietsch e Iuda D. Goldman, pelo incentivo e proveitosas discussões,

Ao Sr. Florentino, da Oficina Gráfica do Instituto de Energia Atômica, pelos trabalhos com a impressão - desta tese.

DOSIMETRIA TERMOLUMINESCENTE DE NEUTRONS

COM CaF_2 NATURAL

		pág.
I	INTRODUÇÃO	1
I-1	DOSIMETRIA DE NEUTRONS	6
II	DOSIMETRIA TL DE NEUTRONS	10
II-1	DOSIMETRIA TL DE NEUTRONS COM LiF:Mg	10
II-2	DOSIMETRIA TL DE NEUTRONS COM CaF_2 NATURAL E $\text{CaF}_2:\text{Mn}$	12
III	MATERIAL E MÉTODOS	14
III-1	TRATAMENTO COM O FÓSFORO	14
III-2	MÉTODOS DE DETERMINAÇÃO QUANTITATIVA DA TL.	15
III-3	MÉTODOS DE IRRADIAÇÃO	18
IV	EXPERIÊNCIAS	22
V	RESULTADOS	26
VI	DISCUSSÃO	37
VII	SUGESTÕES	41
VIII	APÊNDICE I	60

I - I N T R O D U Ç Ã O

A exposição à radiação de alta energia implica em risco aos seres vivos.

A proteção contra esses agentes físicos implica na necessidade de poder medir a quantidade total de radiação a que foi submetido um organismo; esse é o objetivo da Dosimetria.

Os efeitos fisiológicos das radiações dependem da natureza desses últimos. O que se faz atualmente é caracterizar globalmente o efeito da radiação sobre um organismo, por uma quantidade chamada dose absorvida⁽¹⁾ que é mais ou menos ligada à energia total absorvida por esse organismo num certo intervalo de tempo. Essa integração no tempo se justifica porque os efeitos de radiação são cumulativos (pelo menos até alguns meses de exposição com dose não letal).

Para medir a quantidade total de radiação a que foi submetido um organismo utiliza-se um corpo de prova, o dosímetro.

O funcionamento de um dosímetro pode ser baseado no efeito cumulativo da radiação. Dentre esses efeitos podemos citar: a modificação da resistência elétrica de certos metais e semicondutores, a formação de traços observá

(1)- A unidade especial de dose absorvida é o rad ;
1 rad = 100 erg/g. (ICRU Report 11 - 1968)

veis visualmente em certos materiais⁽¹⁾, a criação de defeitos na rede cristalina (defeitos que se manifestam por uma luminescência, por efeitos fotoquímicos, etc), etc.

Os fenômenos de ionização, utilizados nas câmaras de ionização, contadores proporcionais, contadores Geiger, possuem, ao contrário, um caráter essencialmente transitório.

Na Dosimetria Termoluminescente acontece o seguinte: uma parte da energia da radiação absorvida em certos sólidos é armazenada na forma de elétrons e buracos capturados em armadilhas (níveis excitados metastáveis); esses elétrons e buracos libertados das armadilhas quando o sólido é gradualmente aquecido, desde a temperatura ambiente, por exemplo, recombina-se e produz luminescência, chamada TERMOLUMINESCÊNCIA (TL).

A TL resultante ou "emissão" alcança um máximo e então cai a zero quando as armadilhas são esvaziadas de elétrons e buracos.

O gráfico da intensidade luminescente versus temperatura, preferencialmente mantida constante a taxa de aquecimento, é chamado "curva de emissão", que pode conter um ou mais picos de emissão (caso haja elétrons ou buracos em um ou mais níveis metastáveis). Da curva de emissão podemos determinar a profundidade da armadilha; quanto mais profunda a armadilha, maior a temperatura do pico de emissão.

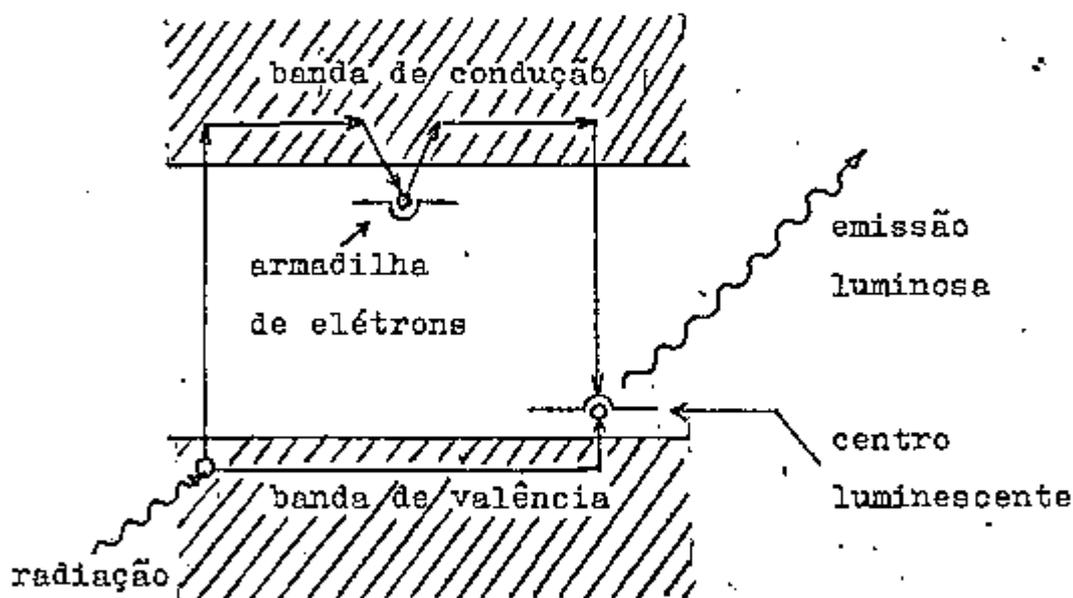
(1)- técnica desenvolvida recentemente.

Radiation Dosimetry - Attix- Vol. III - pág. 263.

Em termos práticos, ao fim do período em que o sólido foi aquecido até uma temperatura maior que a correspondente ao pico de emissão da armadilha mais profunda, o dosímetro está "esvaziado" e pronto para nova exposição à radiação.

Dispõe-se assim de um modo de integração de dose praticamente perfeito, ligado a um fenômeno facilmente mensurável.

Um modelo simples da TL pode ser mostrado, tomando por base o diagrama de níveis de energia de um cristal iônico^(W2):



Quando o cristal é submetido à irradiação, uma fração dos elétrons da banda de valência adquire energia suficiente para atingir a banda de condução.

Os elétrons na banda de condução são livres e vagueiam pelo cristal até se recombinarem com os buracos ou ser capturados em estados metastáveis, chamados armadilhas (criados por vacâncias ou impurezas).

Esses estados metastáveis se localizam na zona proibida de energia, entre as bandas de valência e de condução.

X Quando o cristal é aquecido, os elétrons capturados nas armadilhas recebem energia suficiente para atingir a banda de condução até encontrar os centros de recombinação onde, pela recombinação elétron-buraco, se dá a emissão de luz.

O mesmo pode acontecer com os buracos capturados em vez de com os elétrons capturados, desde que aquêles estejam em níveis menos estáveis do que êsses.

O presente trabalho se baseia na utilização das propriedades dos fósforos termoluminescentes acima descritas para a determinação do fluxo de neutrons térmicos integrado durante o tempo de irradiação, ou seja, a fluência de neutrons térmicos.

O fósforo TL usado foi FLUORITA AZUL (CaF_2 natural) de coloração natural azul, extraída em Criciúma, S. Catarina.

A dosimetria termoluminescente de neutrons se baseia, até o momento, na medida da TL induzida pelas partículas α emitidas nas reações do tipo (n, α) . Por isso, maior atenção foi dada ao estudo de fósforos TL que contivessem em abundância relativamente alta isótopos com grande secção de choque de captura para neutrons térmicos, como por exemplo o isótopo ${}^6\text{Li}$ (secção de choque de captura para neutrons térmicos igual a 945 barns).

Assim, os fósforos mais usados até o momento são o ${}^6\text{LiF:Mg}$ e o ${}^6\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$.

No presente trabalho desenvolvemos um novo método de medida de fluência de neutrons térmicos, através da medida da TL induzida pela radiação β emitida pelos isótopos ativados do ^{44}Ca contido em 13 mg de amostra de fluorita azul. A abundância desse isótopo é de 2,07% e a sua secção de choque de captura para neutrons térmicos é de 700 mbarn. Uma vez ativado, há emissão de radiação β com uma meia vida de 165 dias.

Temos que salientar que o fenômeno da ativação do ^{44}Ca das amostras de fluorita, no que se refere à dosimetria de neutrons térmicos, não foi ainda observado; trabalhos publicados até agora concluem pela inviabilidade do uso do fluoreto de cálcio natural como dosímetro de neutrons térmicos, dando preferência aos fósforos termoluminescentes $^6\text{LiF:Mg}$ e ao $^6\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7\text{:Mn}$.

I-1 - DOSIMETRIA DE NEUTRONS

A dosimetria de neutrons é geralmente mais complicada e menos precisa que a dosimetria da radiação γ .

Há três razões básicas para isso:

a) O campo de neutrons gera radiação γ secundária ao interagir com o meio, tal que raramente se encontra uma situação prática onde estejam presentes somente neutrons.

b) As seções de choque de interação para neutrons não são funções simples e predizíveis da energia do neutron e do número atômico do material absorvente (como no caso da radiação γ).

c) A resposta aos neutrons, de um sistema (biológico ou não), não pode ser relacionada diretamente à dose absorvida depositada, a menos que seja considerada a energia do neutron.

Tendo em vista a primeira razão apontada, torna-se necessária a informação sobre a sensibilidade do detetor e sua dependência com a energia para ambos tipos de radiação.

Em geral são necessários dois dosímetros com sensibilidade à radiação γ diferente da sensibilidade aos neutrons para poder separar as duas contribuições de dose.

É interessante também conseguir distinguir as doses devido a neutrons rápidos e a neutrons térmicos para poder multiplicar cada componente por seu apropriado RBE ou QF antes de calcular a dose RBE total ou a DE.

As principais aplicações de um dosímetro são em Dosimetria de Área e em Dosimetria Pessoal.

A primeira é para nos certificarmos que numa área de trabalho os níveis de radiação estão abaixo dos máximos permissíveis, ou para mapear um campo de radiação de tal maneira que a dose esperada para uma pessoa ocupando a área por um período de tempo especificado possa ser determinada a priori.

A dosimetria de área de neutrons é difícil pois os aparelhos detetores de neutrons geralmente cobrem uma pequena faixa de energia, e mesmo nessa faixa mostram grande dependência com a mesma. *

Para a dosimetria pessoal existem as várias exigências para um bom dosímetro:

- a) O dosímetro deve ser pequeno, de fácil uso, mecanicamente resistente e não dispendioso.
- b) A faixa de utilização deve estar entre os limites mínimo e máximo possíveis no local de trabalho do usuário do dosímetro. Uma faixa adequada é a de ~ 10 mR a $\sim 10^3$ R.
- c) A resposta do dosímetro deve ser razoavelmente independente da orientação do mesmo.
- d) A leitura da dose devida aos neutrons deve ser independente da radiação γ presente.
- e) A leitura da dose deve ser tal que se possa fazê-la a qualquer tempo sem problemas para computar a dose real recebida.
- f) As condições ambientais normais não devem afetar o dosímetro.
- g) A leitura deve ser rápida, simples, não dispendiosa e suficientemente precisa.

Métodos de dosimetria de campo mixto n- γ .

Dosímetros satisfatórios para campos de radiação mixta n- γ incluem combinação de detetores que dão informações que permitem determinar separadamente (ou através de combinação conhecida e útil) as componentes de dose γ e de neutrons.

Entre os detetores de neutrons, insensíveis à radiação γ , estão os que se baseiam na radioativação de folhas metálicas; com esse método consegue-se medir fluência de neutrons (de 10^{10} a 10^{14} n.cm⁻²) e distribuição de energia de neutrons, particularmente para radiação de reatores e de explosões nucleares, tendo como vantagens a desprezível sensibilidade à radiação γ e a adaptabilidade a quase todas condições do meio radioativo.

Entretanto, esse método apresenta sérias desvantagens, como a complexidade da análise do espectro γ para tempos de exposição maiores do que algumas horas.

Outro método de dosimetria de neutrons térmicos comparável ao anterior é o de detecção de traços nucleares (Solid State Nuclear Track Detectors). Baseia-se na observação visual (com microscópio ótico) de traços provocados por partículas pesadas em alguns materiais como a mica, certos vidros e plásticos. Os traços são causados por dano de radiação (radiation damage), sendo os materiais insensíveis à radiação γ e a elétrons.

Para detectar neutrons térmicos envolve-se o detetor com uma fina camada de material fissionável, como por exemplo o ^{237}Np .

Com esse método consegue-se uma concordância com o método anterior dentro de $\sim 4\%$.

II - DOSIMETRIA TL DE NEUTRONS

É recente a aplicação de fósforos termoluminescentes na dosimetria de neutrons.

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

Então, um fósforo TL será considerado bom para dosimetria de neutrons se contiver em abundância relativamente alta isótopos com grande secção de choque para uma das reações possíveis com neutrons.

Segundo essa idéia, vários pesquisadores escolheram o ${}^6\text{LiF:Mg}$ e o ${}^6\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7\text{:Mn}$ em busca de um dosímetro de neutrons, como veremos a seguir.

II-1 - DOSIMETRIA TL DE NEUTRONS COM LiF:Mg

O fluoreto de lítio dopado com magnésio é encontrado comercialmente (Harshaw Chemical Co) nos tipos: TLD-100, TLD-600 e TLD-700, que diferem na porcentagem em peso dos isótopos ${}^6\text{Li}$ e ${}^7\text{Li}$, segundo a tabela abaixo:

	% ${}^6\text{Li}$	% ${}^7\text{Li}$
TLD-100	7,5	92,5
TLD-600	95,62	4,38
TLD-700	0,01	99,99

O TLD-600, devido à sua alta porcentagem de ^6Li e pela seção de choque de captura para neutrons térmicos-extremamente alta desse isótopo (945 barns), é frequentemente usado na dosimetria de neutrons térmicos.

Como a seção de choque de captura para neutrons térmicos do ^7Li é desprezível, o TLD-700 é geralmente usado para determinação da dose do campo mixto $n-\gamma$.

O crescente interesse em dosimetria TL produziu inúmeros trabalhos que dão características da curva de emissão do $^6\text{LiF:Mg}$ irradiado com neutrons.

Wingate et al.^(W1) irradiaram LiF:Mg com neutrons térmicos e rápidos (de 0,26 a 14 Mev), mas os cristais tinham que ser aquecidos a temperatura muito alta para a obtenção da curva de emissão (relativamente à temperatura necessária para obter a curva de emissão quando os cristais eram submetidos à irradiação γ).

A utilização do TLD-700 como dosímetro de neutrons rápidos ($E_n = 14$ Mev) mostrou baixa sensibilidade e forte dependência com a energia. Foi então proposta sua utilização como dosímetro γ do campo mixto $n-\gamma$.

A suspensão em álcool durante a irradiação provocou aumento de até 4 vezes na resposta por causa da reação (n,p) como hidrogênio.

II-2 DOSIMETRIA TL DE NEUTRONS COM CaF_2 NATURAL E $\text{CaF}_2:\text{Mn}$

Schayes et al^(S2) já em 1965 apontavam a fraca sensibilidade do CaF_2 natural a neutrons térmicos, propondo a adição de compostos granulares de ^6Li , ^{10}B ou outros elementos reativos a neutrons para aumentar essa sensibilidade.

Handloser^(H1), Reddy^(R1) propõem a utilização do fluoreto de cálcio como dosímetro γ somente, enquanto ... Puite^(P4) nega inclusive essa possibilidade, tendo descoberto que em campo mixto n- γ a dose γ indicada pelo CaF_2 é muito menor que a real, i.e., a resposta TL induzida por partículas carregadas (fotoelétrons por exemplo na radiação γ) é reduzida por interferência de neutrons.

Segundo Oltman^(O1), que também reportou a diminuição da sensibilidade γ do $^7\text{LiF}:\text{Mg}$ no campo mixto n- γ , isso se deve ao fato de que neutrons de energia menor que 1 Mev introduziriam vibrações na rede cristalina semelhantes às provocadas pelo efeito térmico durante o recozimento pós-irradiação do fósforo.

Em conclusão teríamos:

Tanto o CaF_2 natural como o $\text{CaF}_2:\text{Mn}$:

- 1) não podem ser utilizados na dosimetria de neutrons térmicos por causa de suas comprovadas fracas sensibilidades aos neutrons térmicos;

2) não podem ser utilizados na dosimetria do campo mixto n- γ pois foi constatada a existência de um efeito de diminuição da leitura real da dose γ .

3) são recomendados para a dosimetria de campos de radiação γ somente.

III - MATERIAL E MÉTODOS

Para o presente trabalho dispusemos de amostras de fluoreto de cálcio natural, de coloração azul, oriundas de Crisciúma, Santa Catarina.

De ora em diante denominaremos nossas amostras por fluorita azul ou simplesmente fósforo.

III-1 - Tratamento com o fósforo

Primeiramente, seccionamos do bloco de fluorita azul várias amostras com dimensões aproximadamente de.... 4 x 4 x 2 mm e as submetemos a tratamento térmico (recozimento pré-irradiação) a 300°C por uma hora. As amostras adquiriram uma coloração branca. Essas amostras foram utilizadas para a Experiência "A" (parágrafo IV).

É conveniente salientar que essas amostras não suportam uma variação muito rápida de temperatura ambiente para a temperatura de 400°C, sendo necessário um aquecimento gradual de aproximadamente 100°C/hora, o que torna inconveniente o trabalho com essas amostras relativamente às amostras trituradas em almofariz, que relatamos a seguir.

Trituramos pedaços de amostras de fluorita azul em almofariz, passando-as em peneiras 80/200 mesh, escolhendo então cristais de dimensão característica entre 80 e 200 mesh.

Submetemos essas amostras a tratamento térmico a 500°C/10 min e subsequentemente a 400°C/1h. ⁽¹⁾

Essas amostras foram utilizadas nas experiências "B", "C", "D", "E" e "F". De ora em diante as denominaremos simplesmente por "amostras 80/200 mesh".

III-2- Métodos de determinação quantitativa da TL

Para medir a TL precisamos essencialmente de um sistema para aquecer o fósforo para liberar, sob forma de luz, a energia armazenada; de uma fotomultiplicadora para detetar essa luz, de um circuito integrador e de um voltímetro digital para computar a quantidade de luz emitida.

Um eletrômetro e um registrador foram adaptados para a obtenção das curvas de emissão, conforme o diagrama de blocos que mostramos na página seguinte.

Dispusemos, para medir a emissão termoluminescente, de dois sistemas:

(1) - Um trabalho desenvolvido por E. Okuno em nosso Laboratório, fazendo recozimentos sucessivos combinando temperaturas de recozimento com vários tempos de recozimento, mostrou ser o tratamento aqui seguido o que permite reprodutibilidade das leituras e constância da sensibilidade das amostras à radiação γ .

- Aparêlho leitor da CON-RAD denominado " CON-RAD Thermoluminescence Dosimetry System - Model 5100 Readout Instrument " que vem munido de um integrador, porém, desprovido de registrador. Um eletrômetro da Keithley do tipo "micromicroammeter 414" com saída para um registrador 370, também da Keithley, foi acoplado ao aparelho da CON-RAD.

No aparelho da CON-RAD pode-se colocar uma amostra de massa variável entre ~10 mg e ~50 mg numa plancheta de Ni-Cr de alta resistividade, de dimensões 29 x 38 mm, para o aquecimento e obtenção do sinal TL para a fotomultiplicadora (tipo EMI 6097S):

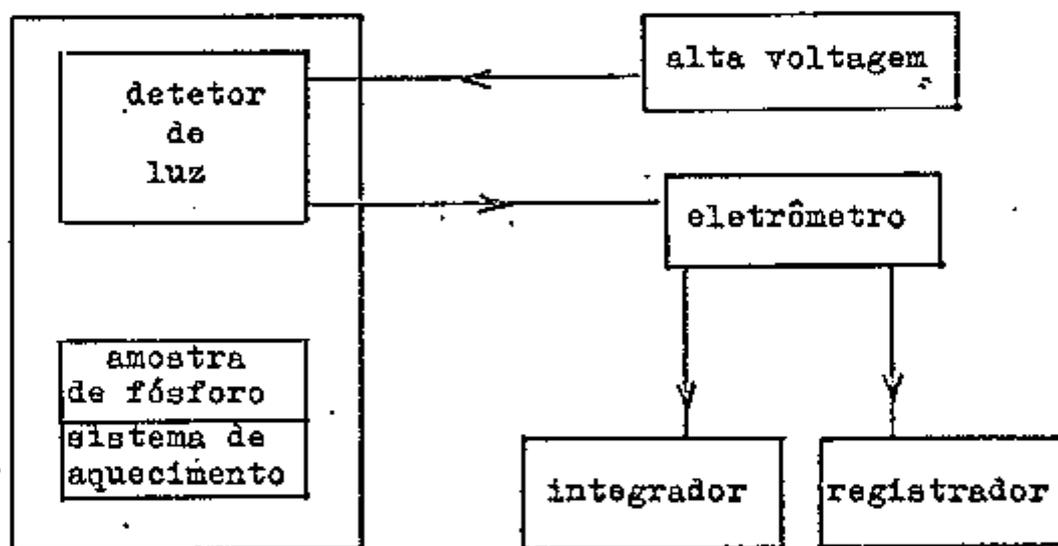


Diagrama de blocos de um sistema leitor de TL

A curva de aquecimento da plancheta CON-RAD é mostrada na fig. 3 (para corrente de aquecimento fixada em 0,7 A) e na fig. 4' (para corrente de aquecimento fixada em 0,8 A).

Parâmetros fixados no aparelho leitor da CON-RAD:

- Tensão da fotomultiplicadora = 835 V
- Corrente de aquecimento da plancheta:
 - para amostras 4 x 4 x 2 mm = 0,7 A
 - para amostras 80/200 mesh = 0,8 A
- Tempo de aquecimento :
 - para amostras 4 x 4 x 2 mm = 90 seg
 - para amostras 80/200 mesh = 60 seg.

- Aparelho leitor da Harshaw denominado "Model 2000 Thermoluminescence Analyzer" que também vem munido de integrador, mas sem registrador. A esse aparelho foi acoplado um registrador 370 da Keithley.

Esse aparelho, modelo 2000, consta de dois instrumentos: o detetor TL (2000-A) e o integrador automático do picoamperímetro (2000-B), apresentando várias vantagens sobre o aparelho da CON-RAD, a saber:

- fotomultiplicadora com controle de temperatura assegurando uma constante e baixa corrente de fundo e estabilidade de ganho;

- termopar junto à plancheta e controle com realimentação da temperatura de aquecimento assegurando taxa de aquecimento linear e reprodutível para a amostra.

- integrador de corrente automático com mudança automática de escala.

III-3 - Métodos de irradiação

A - Irradiações no Reator IEAR-1.

A1- Irradiações através da Guia de Irradiação.

A Guia de Irradiação é um conduto metálico vertical que permite que se faça descer, com um fio de nylon, uma garrafa de alumínio até bem perto do carôço do Reator (~ 2 cm); nessa garrafa é introduzida uma garrafa de polietileno que se pode fechar herméticamente para evitar que as amostras a ser irradiadas entrem em contato com a água da piscina do Reator. É dentro da garrafa de polietileno que se colocam as amostras para ser irradiadas no campo mixto n- γ do Reator.

A Guia de irradiação pode ser vista na fig. 1 e a posição de irradiação, relativamente ao carôço do Reator, na fig. 2 .

A2- Irradiações na Estação nº 1.

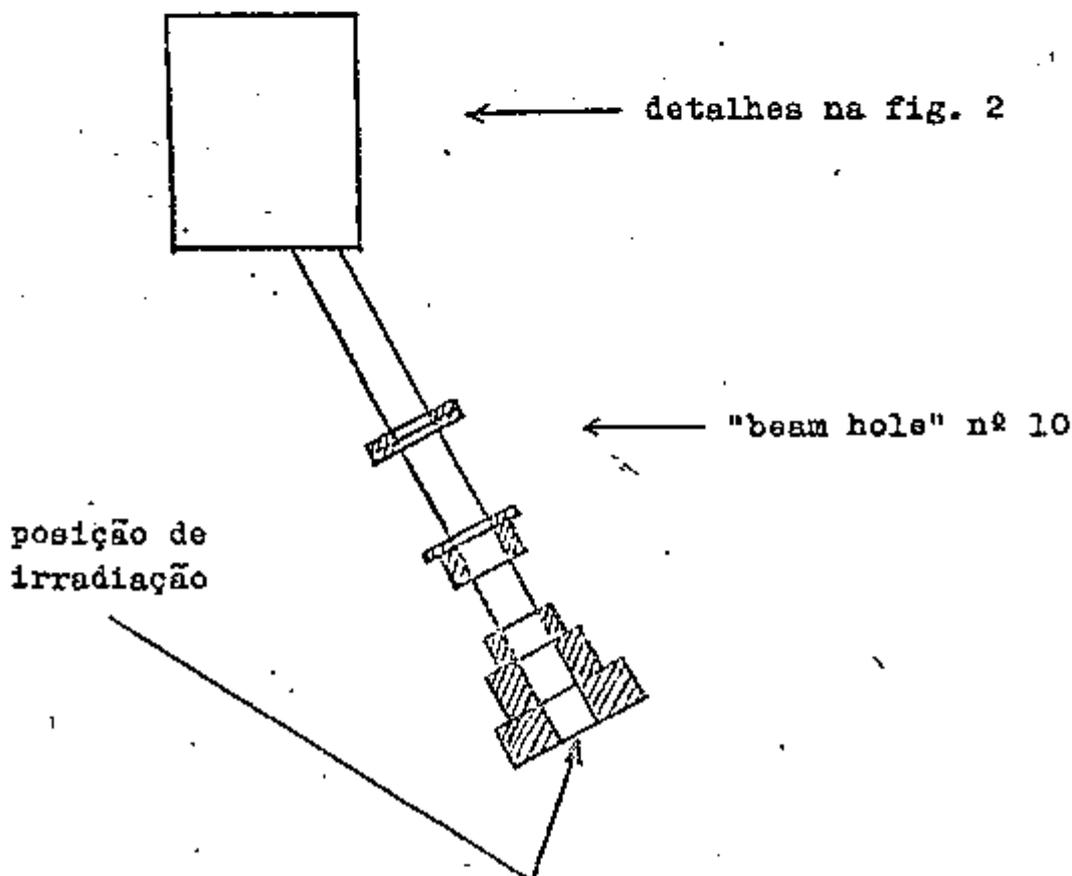
A Estação nº 1 é um local para irradiação localizada próximo ao carôço do Reator (~ 22 cm) com as seguintes vantagens: as amostras não têm contato com a água da piscina, a irradiação é automatizada com relógio de controle de tempo de irradiação e com entrada e saída das amostras por intermédio de sucção pneumática da cápsula que as contém, e podemos trabalhar somente com cápsula de polietileno.

A posição da Estação nº 1, relativamente ao carôço do Reator, pode ser vista na fig. 2.

A3- Irradiações no "beam hole" nº 10.

O "beam hole" nº 10 é um conduto metálico horizontal que começa no carôço do Reator, tendo colimadores que permitem obter um feixe de neutrons praticamente colimado e estreito em detrimento do fluxo de neutrons que diminui, do carôço até a saída do beam hole, de um fator de $\sim 10^6$, isto é, para fluxos no carôço da ordem de 10^{12} n/cm².seg, o fluxo na saída do beam hole é da ordem de 10^6 n/cm².seg.

Um esquema do beam hole nº 10, mostrando a posição que nós utilizamos para irradiação, pode ser visto abaixo.

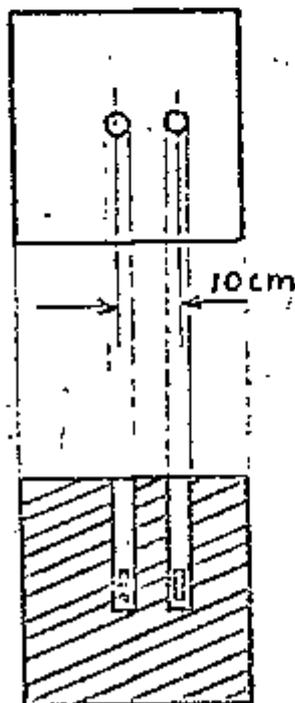


B - Irradiações com a fonte Ra- α -Be de 300 mCi.

As fontes Ra- α -Be são muito usadas na calibração de detetores de neutrons, desde que esses detetores tenham sensibilidade a neutrons muito maior que à radiação γ pois a dose γ devida a essas fontes é muito alta, tornando difícil o seu manuseio, inclusive.

Os neutrons emitidos pelo Be sujeito à radiação α do Ra têm uma energia média de 5 Mev; colocamos entre nossas amostras e a fonte Ra- α -Be uma camada de parafina de ~ 10cm para obtenção de neutrons térmicos.

Damos abaixo um esquema da geometria da experiência :



- ☐ - Fonte
- ▨ - Cápsula de polietileno com amostras.

C - Irradiações com a fonte ^{137}Cs (1).

A fonte ^{137}Cs é uma fonte γ com uma série de vantagens: longa meia-vida (30 anos), emissão de radiação γ de alta energia ($E_{\gamma} = 0,662 \text{ Mev}$), propriedades químicas estáveis e possibilidade de se conseguir alta atividade γ específica (isto é, curies por grama do elemento).

Utilizamos uma fonte já calibrada, permitindo uma posterior equivalência em dose das emissões TL das amostras irradiadas com γ e as amostras irradiadas com neutrons térmicos.

(1) - Fonte pertencente ao Depto. de Biologia Geral da Universidade de São Paulo, a quem agradecemos pela permissão para o uso da mesma; essa fonte foi preparada e calibrada pelo "Oak Ridge National Laboratory", com tabela de redução da atividade com o tempo para o cálculo exato da dose em R à distância escolhida, durante um certo tempo.

IV - EXPERIÊNCIAS

Vamos relatar a seguir um histórico da experiência preliminar que motivou a realização do presente trabalho:

Experiência "A" - Seis amostras de fluorita azul ~ 4x4x2 mm foram submetidas à irradiação no campo misto $n-\gamma$ na posição Guia de Irradiação durante 40 min de operação do Reator à potência de 2 Mw.

Foram obtidas as curvas de emissão das amostras no dia posterior ao da irradiação para permitir o decaimento da atividade γ apresentada pelas amostras. É digno de nota o fato de que as amostras apresentavam cor azul claro (quase branco) antes da irradiação, azul escuro após a irradiação e novamente azul claro após a leitura.

As amostras foram então:

- 1) submetidas a tratamento térmico por 300°C/1h para esvaziamento das armadilhas correspondentes às temperaturas menores que 300°C, não esvaziadas durante a leitura;
- 2) armazenadas, com devida proteção à luz ambiente⁽¹⁾, por alguns dias;
- 3) submetidas a nova leitura.

Constatamos que a nova leitura apresentava alta e-

⁽¹⁾ - A componente UV da luz ambiente provoca aumento da TL por transferência de elétrons das armadilhas mais pro-

missão termoluminescente, que só poderia ser motivada por uma espécie de auto-irradiação.

Uma verificação dentre os prováveis elementos componentes da amostra, quais poderiam dar tão alta contribuição à TL, a experiência realizada com um detetor de Antraceno⁽¹⁾ e a fig. 9 (que explicaremos mais adiante) permitiram determinar a meia-vida do elemento ativado (~150 dias) e a energia máxima da radiação β emitida.

Essas características correspondem ao isótopo ^{45}Ca oriundo da reação $n + ^{44}\text{Ca} \rightarrow ^{45}\text{Ca}$, decaindo para ^{45}Sc com uma meia-vida de 153 d ou 165 d com emissão de radiação β somente, sendo a abundância isotópica do ^{44}Ca de 2,07%. (Todos êsses dados foram obtidos na tabela de isótopos publicada em Rev. of Mod. Phys., 30,2, Ap 1958, part I).

As amostras, após a 1ª leitura pós-recozimento, foram novamente armazenadas por alguns dias e então feita nova leitura. E assim sucessivamente...

Entre uma leitura e outra não mais foi feito recozimento de 300°C/lh pois verificamos que a TL residual após cada leitura é de ~ 1/30 da TL antes da leitura.

Tendo em vista os resultados obtidos nessa experiência (experiência "A"), programamos uma série de novas experiências que passamos a relatar.

cont. -fundas para as menos profundas, na fluorita.
(Comunicação particular de E. Okuno)

(1) - Apêndice I .

Experiência "B" - 400 mg de amostras de fluorita azul 80/200 mesh foram submetidas à irradiação nas mesmas condições que na experiência "A", sendo que 200 mg por 5 min e 200 mg por 15 min. No dia posterior ao da irradiação as amostras foram tratadas a 400°C/1h, armazenadas por alguns dias, feita a 1ª leitura TL, armazenadas novamente, feita a 2ª leitura TL, e assim sucessivamente...

As leituras TL foram feitas no aparelho da Harshaw e a experiência foi repetida, com tempo de irradiação de 30 min com leituras feitas no aparelho da CON-RAD.

Experiência "C" - 120 mg de amostras de fluorita azul 80/200 mesh foram submetidas à irradiação no campo mixto $n-\gamma$ da fonte Ra- α -Be de 300 mCi segundo a geometria já descrita nesse trabalho na página 20, com um tempo de irradiação de 18 h.

As amostras irradiadas foram submetidas a tratamento pós-irradiação idêntico ao da experiência "B".

As leituras TL foram feitas no aparelho da Harshaw.

Experiência "B" - 400 mg de amostras de fluorita azul 80/200 mesh foram submetidas à irradiação nas mesmas condições que na experiência "A", sendo que 200 mg por 5 min e 200 mg por 15 min. No dia posterior ao da irradiação as amostras foram tratadas a 400°C/1h, armazenadas por alguns dias, feita a 1ª leitura TL, armazenadas novamente, feita a 2ª leitura TL, e assim sucessivamente...

As leituras TL foram feitas no aparelho da Harshaw e a experiência foi repetida, com tempo de irradiação de 30 min com leituras feitas no aparelho da CON-RAD.

Experiência "C" - 120 mg de amostras de fluorita azul 80/200 mesh foram submetidas à irradiação no campo mixto $n-\gamma$ da fonte Ra- α -Be de 300 mCi segundo a geometria já descrita nesse trabalho na página 20, com um tempo de irradiação de 18 h.

As amostras irradiadas foram submetidas a tratamento pós-irradiação idêntico ao da experiência "B".

As leituras TL foram feitas no aparelho da Harshaw.

Experiência "D" - 200 mg de amostras de fluorita azul 80/200 mesh foram submetidas à irradiação no campo mixto $n-\gamma$ no beam hole nº 10 do Reator, durante 8h de operação do Reator à potência de 2 Mw. Nesse beam hole o fluxo de neutrons foi medido pelo método de ativação de fôlhas metálicas, obtendo-se $2,5 \cdot 10^6$ n/cm².seg⁽¹⁾.

O procedimento pós-irradiação foi o mesmo do das experiências "B" e "C".

Experiência "E" - 200 mg de amostras de fluorita azul 80/200 mesh foram submetidas a irradiação no campo mixto $n-\gamma$ na Estação nº 1, durante 5 min de operação do Reator à potência de 2Mw.

O procedimento pós-irradiação foi o mesmo do da experiência anterior.

Experiência "F" - 600 mg de amostras de fluorita azul 80/200 mesh foram submetidas à irradiação no campo de radiação γ da fonte ¹³⁷Cs em 5 diferentes tempos de irradiação a uma distância de 10 cm da fonte.

(1) - As medidas foram efetuadas por C. Renner e M. Pacheco da Divisão de Física Nuclear do Instituto de Energia Atômica, (Comunicação particular) a quem

agradeço

V - R E S U L T A D O S

Para facilitar a exposição dos resultados denominamos:

$t_d^{(i)}$: tempo de decaimento da atividade da amostra; tempo da i-ésima leitura .

$TL(t_d^{(i)})$: luz total emitida pela amostra na i-ésima leitura, proporcional à área sob a curva de emissão.

$$\overline{TL}(t_d^{(i)}) = \sum_1^i TL(t_d^{(i)}) \quad : \quad TL \text{ acumulada.}$$

$h_2(t_d^{(i)})$: altura do 2º pico de emissão da i-ésima leitura.

$$\overline{h_2}(t_d^{(i)}) = \sum_1^i h_2(t_d^{(i)}) \quad , \quad : \quad \text{altura acumulada do pico 2.}$$

$h_3(t_d^{(i)})$: altura do 3º pico de emissão da i-ésima leitura.

$$\overline{h_3}(t_d^{(i)}) = \sum_1^i h_3(t_d^{(i)}) \quad : \quad \text{altura acumulada do pico 3.}$$

Como o fenômeno da termoluminescência tem um efeito cumulativo, para nós isso significa que, se não fôsse feita a k-ésima leitura, no tempo $t_d^{(k+1)}$, teríamos:

$$\overline{TL}(t_d^{(k+1)}) = \overline{TL}(t_d^{(k-1)}) + TL(t_d^{(k-1)})$$

Análise dos resultados das experiências:

A fig. 3 mostra a curva de emissão de uma das amostras 4x4x2 mm irradiadas na posição Guia de irradiação do Reator durante 40 min de operação do Reator à potência de 2 Mw. Essa figura foi obtida numa das leituras após o re-cozimento pós-irradiação e apresenta somente o pico de .. 260°C (pico nº 3 da fluorita). Não aparecem os picos 1 e 2 por causa do gradiente de temperatura entre a face do cristal que está em contato com a plancheta e a face superior do cristal.

A fig. 3 mostra ainda a curva de aquecimento a que foi submetida a amostra durante a leitura no aparelho da CON-RAD.

A fig. 4 mostra as curvas de emissão para 13 mg de amostra 80/200 mesh irradiada durante 5 min e 13 mg irradiada durante 15 min nas mesmas condições que na fig. 3.

As leituras foram feitas no aparelho da Harehaw.

Notamos na figura 4 picos de temperaturas iguais a 60°C, 95°C, 170°C e ~220°C.

O pico de 60°C é característico da nossa amostra a tivada; não aparecendo nas curvas de emissão de amostras submetidas à irradiação γ pois a temperatura ambiente é suficiente para provocar seu desaparecimento poucas horas após a irradiação. No presente trabalho esse pico é denominado pico zero.

A fig. 4' mostra a curva de emissão de 13 mg de amostra 80/200 mesh irradiada segundo as condições da experiência "B" por 30 min. A leitura TL foi feita no aparelho da CON-RAD com o objetivo de confirmar as temperaturas dos picos. Nessa figura não aparece o pico zero pelo fato de ser a taxa de aquecimento muito alta, ficando esse pico mascarado pelo pico 1.

A fig. 5 mostra a curva de emissão de 13 mg de amostra 80/200 mesh irradiada segundo as condições da experiência "C" por 18 h.

Essa leitura foi feita no aparelho da Harshaw imediatamente após a irradiação.

Já a fig. 5' mostra a curva de emissão da mesma amostra vários dias após o recozimento pós-irradiação.

Na fig. 6 mostramos a curva de emissão de 13 mg de amostra 80/200 mesh irradiada segundo as condições da experiência "E". A leitura foi feita poucos dias após o recozimento pós-irradiação, no aparelho da Harshaw. A curva de aquecimento durante a leitura é a mesma que a apresentada na fig. 5.

A fig. 7 mostra a curva de emissão de 13 mg de amostra 80/200 mesh irradiada segundo as condições da experiência "F". A dose a que foi submetida a amostra para essa particular leitura foi de 16,5 R. Observamos que, quando exposta à radiação γ , a curva de emissão da fluorita apresenta, nas nossas condições de leitura, os picos 1 e 2 com a mesma altura relativa.

Comparando essa curva de emissão com a curva de emissão da amostra irradiada com neutrons (eliminada a componente γ com o recozimento pós-irradiação), verificamos que no último caso a armadilha correspondente ao pico 2 é preenchida preferencialmente em detrimento da armadilha correspondente ao pico 1.

A fig. 8 mostra $\log(\text{TL}) \times \log(\text{Dose } \gamma)$ para amostras 80/200 mesh submetidas à irradiação γ nas condições da experiência "F". Voltaremos a comentar a figura 8 mais adiante, quando do cálculo da sensibilidade das nossas amostras para a detecção de neutrons térmicos.

As figuras 9, 10, 10', 11, 12 e 13 mostram . . . $TL(t_d^{(i)})$ versus $t_d^{(i)}$ para as várias experiências realizadas em campo mixto $n-\gamma$, ou sejam, experiências "A", "B", "C", "D" e "E".

$$\text{Supondo } TL(t_d^{(i)}) = \xi \int_{t_d^{(i-1)}}^{t_d^{(i)}} A(t_d^{(i)}) dt_d^{(i)} \quad \text{onde}$$

$A(t_d^{(i)})$ é o nº de átomos de ^{45}Ca da amostra no tempo $t_d^{(i)}$, ξ uma constante de proporcionalidade.

Portanto:

$$\overline{TL}(t_d^{(i)}) = \sum_{i=1}^i TL(t_d^{(i)}) = \xi \int_0^{t_d^{(i)}} A(t_d^{(i)}) dt_d^{(i)}$$

$$\text{donde } \overline{TL}(t_d^{(i)}) = (1 - e^{-\lambda t_d^{(i)}}) \xi A_0 / \lambda \quad \text{pois}$$

$$A(t_d^{(i)}) = A_0 \exp(-\lambda t_d^{(i)}) \quad \text{onde}$$

A_0 é a atividade inicial da amostra devida ao ^{45}Ca e λ é a constante de decaimento desse isótopo.

$$\text{Mas } \frac{dA_0}{dt_{\text{irr}}} = \sigma P_0 \phi \quad A_0 = \sigma P_0 \phi t_{\text{irr}} \quad (')$$

onde: σ secção de choque de captura para neutrons térmicos, do ^{44}Ca ,

ϕ fluxo médio de neutrons térmicos durante t_{irr} ,
 $P_0 = N \Theta m / M$ é o número de átomos de ^{44}Ca contidos na massa m de cálcio da amostra (em g), N o número de Avogadro e Θ a abundância isotópica do ^{44}Ca .

Agora, então, teríamos :

$$\overline{TL}(t_d^{(i)}) = (1 - e^{-\lambda t_d^{(i)}}) \left\{ \sigma P_0 \phi t_{\text{irr}} / \lambda \right.$$

(') - É uma aproximação válida pois de

$$\frac{dA_0}{dt_{\text{irr}}} = \sigma P_0 \phi e^{-\lambda t_{\text{irr}}}, \quad A_0 = \sigma P_0 \phi (1 - e^{-\lambda t_{\text{irr}}}) / \lambda$$

Mas $\lambda \sim 10^{-3} \text{d}^{-1}$, $t_{\text{irr}} \sim 10^{-1} \text{d} \therefore \lambda t_{\text{irr}} \sim 10^{-4} \ll 1$

$$\therefore (1 - e^{-\lambda t_{\text{irr}}}) / \lambda \cong t_{\text{irr}} \therefore A_0 = \sigma P_0 \phi t_{\text{irr}}$$

Cálculo da constante de proporcionalidade ξ .

A calibração de nossas amostras, para poder utilizá-las como dosímetro de neutrons térmicos, implica na de terminação de ξ .

Para tal, basta submeter as amostras a um fluxo conhecido de neutrons térmicos.

Com esse fim foi realizada a experiência "D".

Seja $\phi = \phi^i$ o fluxo conhecido a que foi submetida 13 mg da amostra durante t'_{irr} ; foi feito, então, o recozimento da amostra por 400/lh, armazenada a amostra por um tempo t'_d , quando então foi feita uma leitura TL'.

Agora podemos calcular o valor de ξ :

$$\xi = \lambda TL' / (1 - e^{-\lambda t'_d}) \sigma P_0 \phi^i t'_{irr}.$$

Para essa amostra vale a relação:

$$\phi = \frac{(1 - e^{-\lambda t'_d})}{(1 - e^{-\lambda t^{(i)}_d})} \cdot \frac{\overline{TL}(t^{(i)}_d)}{TL'} \cdot \frac{t'_{irr}}{t_{irr}} \phi^i$$

Mas como $\lambda \sim 10^{-3} \text{ d}^{-1}$ e $t_d \sim 1 \text{ d}$, $\lambda t_d \ll 1$

Temos :

$$\phi = \frac{t'_d}{t_d^{(1)}} \cdot \frac{\overline{\text{TL}}(t_d^{(1)})}{\text{TL}'} \cdot \frac{t'_{\text{irr}}}{t_{\text{irr}}} \cdot \phi' \quad (1)$$

A fluência será :

$$\phi t_{\text{irr}} = \frac{\overline{\text{TL}}(t_d^{(1)})}{t_d^{(1)}} \cdot K$$

$$\text{onde } K = \frac{t'_d}{\text{TL}'} \cdot (\phi' t'_{\text{irr}})$$

é obtida na calibração do dosímetro.

Como exemplo da aplicação do nosso método, vamos calcular a fluência de neutrons térmicos da experiência "E":

$$\begin{aligned} t_{\text{irr}} &= 5 \text{ min} && \text{e para} \\ t_d &= 10 \text{ d}, \\ \overline{\text{TL}} &= 52 \text{ nCoul} && (\text{da fig. 13}) \end{aligned}$$

Mas, tomando como referência a experiência "D", onde o fluxo de neutrons é conhecido:

$$\begin{aligned} t'_{\text{irr}} &= 8 \text{ h} && \text{e para} \\ t'_d &= 10 \text{ d}, \\ \text{TL}' &= 2,9 \text{ nCoul} && (\text{da fig. 12}) \\ \phi' &= 2,5 \cdot 10^6 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{seg} \end{aligned}$$

Então:

$$\overline{\phi} = \frac{t'_d}{t_d} \cdot \frac{\overline{\text{TL}}(t_d)}{\overline{\text{TL}}(t'_d)} \cdot \phi' t'_{\text{irr}}$$

$$\overline{\phi} = 1,0 \cdot 10^{12} \text{ n/cm}^2$$

onde $\overline{\phi} = \phi t_{\text{irr}}$ é a fluência de neutrons térmicos.

Cálculo da sensibilidade do dosímetro

Usualmente, a sensibilidade de um fósforo TL para neutrons é calculada do seguinte modo ^(T1):

Para referência, expõe-se o fósforo a doses diferentes de radiação γ de uma fonte calibrada, por exemplo ^{60}Co ou ^{137}Cs .

Então, para uma determinada fluência de neutrons $\bar{\phi}$ obtém-se uma emissão TL que também pode ser obtida com uma dose R^* roentgen de radiação γ ; diz-se então, que a sensibilidade s do dosímetro é igual a

$$R^* / \bar{\phi} \quad (\text{roentgen/neutrons.cm}^{-2})$$

A experiência "F" foi realizada com a finalidade de calcular a sensibilidade do nosso dosímetro.

Mas, no nosso caso, $TL = TL(t_d)$, isto é, para uma mesma fluência de neutrons térmicos, a quantidade de luz emitida pelo fósforo durante a leitura depende do tempo de armazenamento do dosímetro. Portanto, a sensibilidade tem que ser definida em função de t_d .

Nas condições de leitura de TL por nós fixadas (taxa de aquecimento = $14^\circ\text{C}/\text{seg}$ e $T_{\text{máx}} = 230^\circ\text{C}$), o dosímetro considerado esvaziado (fluorita azul virgem com tratamento térmico a $600^\circ\text{C}/10 \text{ min}$ e $400^\circ\text{C}/1 \text{ h}$) apresenta uma leitura TL igual a $0,4 \text{ nCoul}$.

Isso significa que o mínimo valor de TL diferenciável é igual a $\sim 1,2 \text{ nCoul}$ que é equivalente a $1,15 \text{ R}$, segundo a fig. 8.

Vamos então, a partir dessas considerações, calcular qual a fluência mínima detetável por nosso dosímetro.

Da equação (1) da pág. 33 :

$$\phi t_{\text{irr}} = \frac{\text{TL}(t_d^{(i)})}{\text{TL}'} \cdot \frac{t_d'}{t_d} \cdot \phi' t_{\text{irr}}'$$

$$\text{Mas } \phi' t_{\text{irr}}' = 7,2 \cdot 10^{10} \text{ neutrons.cm}^{-2}$$

que é nossa fluência de referência. Da fig. 12, para $t_d' = 10$ d, $\text{TL}' = 2,9$ nCoul.

A fluência mínima corresponde ao mínimo detetável, isto é, $\text{TL}(t_d^{(\pm)}) = 1,2$ nCoul.

Portanto

$$\left(\phi t_{\text{irr}} \right)_{\text{mín}} = 3 \cdot 10^{10} \left(10/t_d \right) \text{ neutrons.cm}^{-2} \quad (9)$$

com t_d em dias.

Na tabela abaixo damos os valores da fluência mínima detetável em função de t_d , segundo (9)

t_d (dias)	$\left(\phi t_{\text{irr}} \right)_{\text{mín}}$ neutrons.cm ⁻²
2	$1,5 \cdot 10^{11}$
5	$6 \cdot 10^{10}$
10	$3 \cdot 10^{10}$
50	$6 \cdot 10^9$
100	$3 \cdot 10^9$
⋮	⋮

VI- DISCUSSÃO

Os resultados apresentados permitem propor a utilização do CaF_2 natural como dosímetro de nêutrons térmicos, tanto na Dosimetria de Área como na Dosimetria Pessoal.

Procedimento na Dosimetria de Área

- 1) Tratamento térmico com o fósforo virgem: 600°C/10 min e 400°C/1h; encapsulamento em polietileno ou plástico;
- 2) Colocação das cápsulas nos pontos da área a ser mapeada, durante um tempo t_{irr} ;
- 3) Tratamento térmico com o fósforo irradiado: 400°C/1h;
- 4) Armazenamento do fósforo durante t_d ;
- 5) Leitura da TL do fósforo = $TL(t_d)$ e
- 6) A fluência do fósforo em cada ponto da área será:

$$\bar{\Phi} = \frac{TL}{t_d} \cdot \left(\frac{t_d'}{TL'} \cdot \Phi' t_{\text{irr}}' \right)$$

onde os valores com índice ' são obtidos na calibração do dosímetro, submetendo-o a um fluxo de nêutrons térmicos conhecido.

Procedimento na Dosimetria Pessoal

- 1) Tratamento térmico com o fósforo virgem:
600°C/10 min e 400°C/1 h ; encapsulamento em polietileno ou plástico;
- 2) Dosímetro usado por uma pessoa durante, por exemplo, 1 mês;
- 3) Tratamento térmico com o dosímetro usado:
400°C/1 h;
- 4) Armazenamento do dosímetro durante t_d ;
- 5) Leitura da TL do fósforo = $TL(t_d)$ e
- 6) A fluência de neutrons térmicos a que foi submetido o usuário do dosímetro será:

$$= \frac{TL}{t_d} \cdot \left(\frac{t'_d}{TL'} \cdot \phi' \cdot t'_{irr} \right)$$

onde, como na pág. anterior, os valores com índice ' são obtidos na calibração do dosímetro, colocando-o numa região de fluxo de neutrons térmicos conhecido.

† Conforme frisamos na introdução desse trabalho, um dos grandes problemas na dosimetria de neutrons reside no fato de como evitar a alteração da resposta do dosímetro provocada pela radiação γ , que sempre está presente nas situações práticas com que nos defrontamos num campo de neutrons.

Dentre as vantagens apresentadas pelo nosso dosímetro, salienta-se a facilidade de eliminação da componente γ , com o tratamento térmico pós-irradiação.†

As outras qualidades do dosímetro são :

- o dosímetro é pequeno, fácil de usar, mecanicamente resistente e de baixo custo.
- faixa de utilização em princípio não fixada; depende do tempo disponível para armazenamento após o uso, para obter resposta com boa sensibilidade.
- a resposta é independente da orientação do dosímetro.
- das condições ambientais normais, como luz, umidade, choques mecânicos e calor, somente a primeira pode influenciar a leitura; para evitar essa influência, basta envolver o dosímetro com uma camada de um material que o proteja à luz.
- a leitura do dosímetro é rápida (~30 seg), simples e suficientemente precisa.

- facilidade de obtenção do material, que não é dispendioso como o TLD-600 ou as fôlhas metálicas usadas no método de radioativação ;

- possibilidade de confirmação da dose, quantas vezes quizer, bastando para isso guardar o dosímetro após a leitura.

- sensibilidade variável; dependendo da situação prática com que nos defrontarmos, podemos calcular o necessário tempo de armazenamento para obter uma leitura com determinada sensibilidade.

337

VII - SUGESTÕES

1) Sobre a aplicação do método desenvolvido no presente trabalho a outros fósforos termoluminescentes.

Seria interessante verificar o comportamento - de $\text{CaF}_2:\text{Mn}$, $\text{CaF}_2:\text{Dy}$, $\text{CaF}_2:\text{Sm}$, quando irradiados com neutrons térmicos, segundo o método por nós descrito.

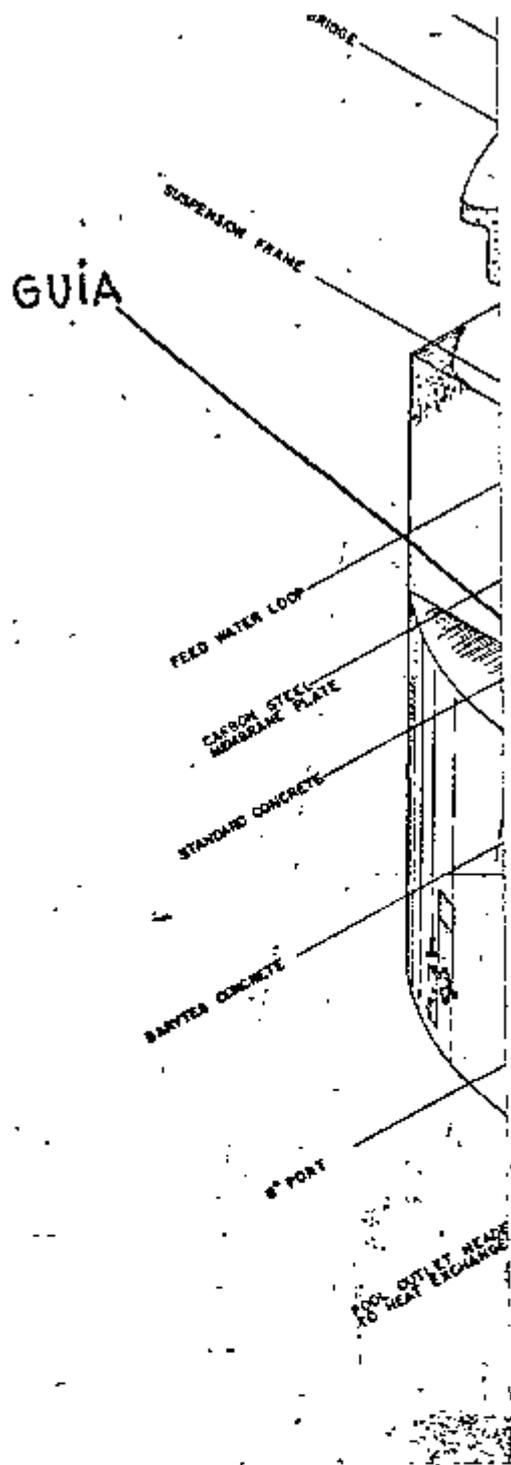
A utilização de fósforos dopados com isótopos com secção de choque de captura para neutrons térmicos relativamente alta ($\sim 10^2$ barns) melhoraria a sensibilidade do dosímetro TL pois teríamos, para uma mesma fluência de neutrons térmicos uma maior atividade de β inicial da amostra, com conseqüente maior emissão TL. Para esse caso poderíamos tentar com os isótopos ^{164}Dy ($\sigma_c = 800$ barns, abundância isotópica .. 28,18%), ^{152}Sm ($\sigma_c = 210$ barns, abundância isotópica = 26,6%) .

Já está em andamento, em nosso Laboratório, a pesquisa com o fósforo TLD-200 ($\text{CaF}_2:\text{Dy}$) da Harshaw Che. Co., visando a aplicação do método desenvolvido no presente trabalho.

2) Sobre a aplicação do método para a determinação de fluência de neutrons rápidos.

Em prosseguimento ao nosso trabalho, uma possibilidade é a de ampliação da faixa de utilização do dosímetro, agora na região de neutrons rápidos.

Isso seria possível, em detrimento da sensibilidade até agora obtida, envolvendo o dosímetro com material que contenha elemento com relativamente alta porcentagem, que termaliza os neutrons rápidos incidentes.



carôço do reator

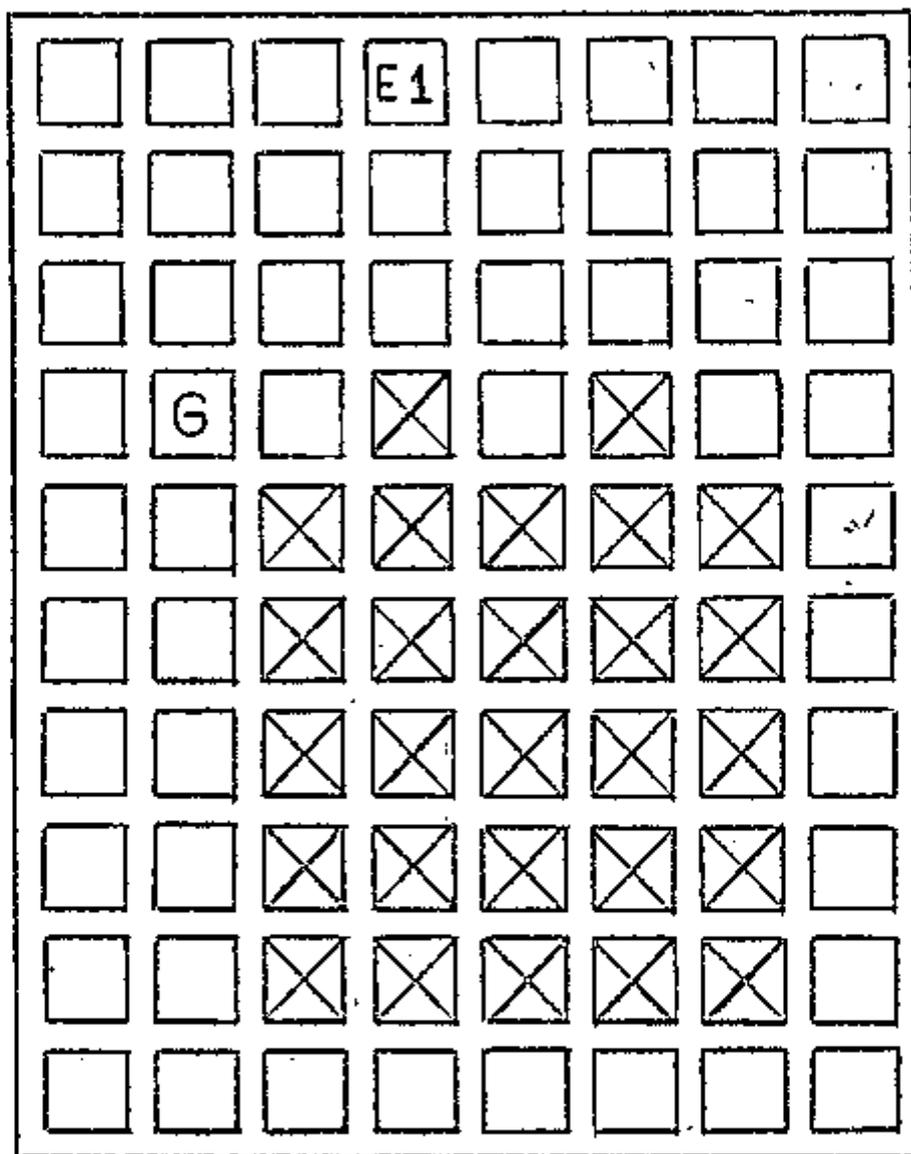


posição da Guia de irradiação



posição da Estação nº 1

Fig. 2 - Posições da Guia de Irradiação e da Estação nº1, relativamente ao carôço do Reator .



carôço do reator



posição da Guia de irradiação



posição da Estação nº 1

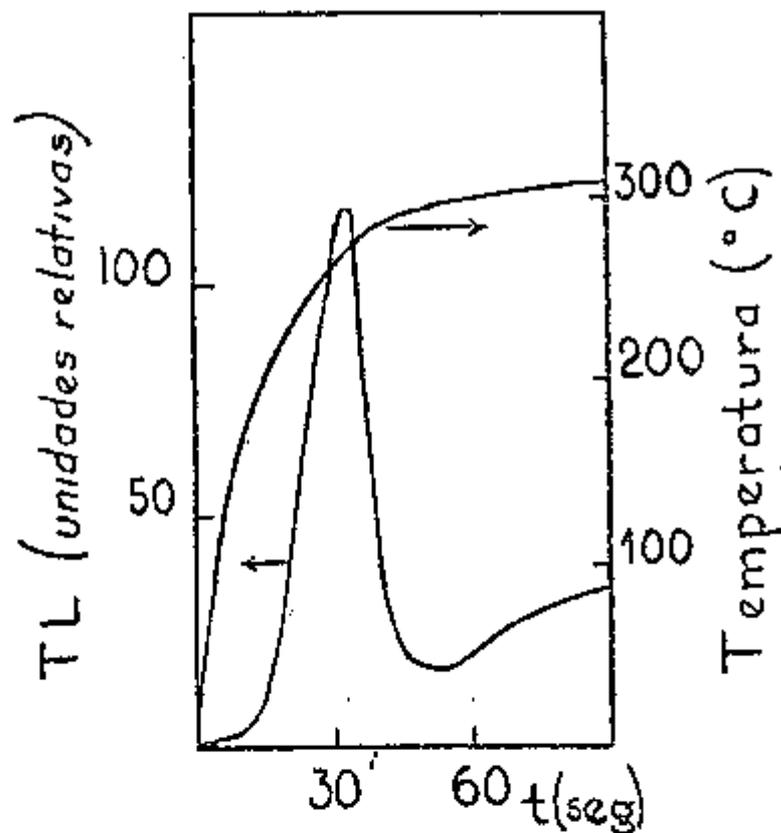


Fig. 3 - Curva de emissão de uma amostra de fluorita azul 4x4x2 mm submetida à irradiação no campo mixto n- γ na posição Guia de irradiação, durante 40 min de operação do Reator à potência de 2Mw; essa curva foi obtida alguns dias após o recozimento pós-irradiação, sendo, portanto, devida somente aos neutrons. O aparelho de leitura TL utilizado foi o da CONRAD com tensão de fotomultiplicadora de 835 V, corrente de aquecimento de 0,7 A, tempo de leitura de 90 seg.

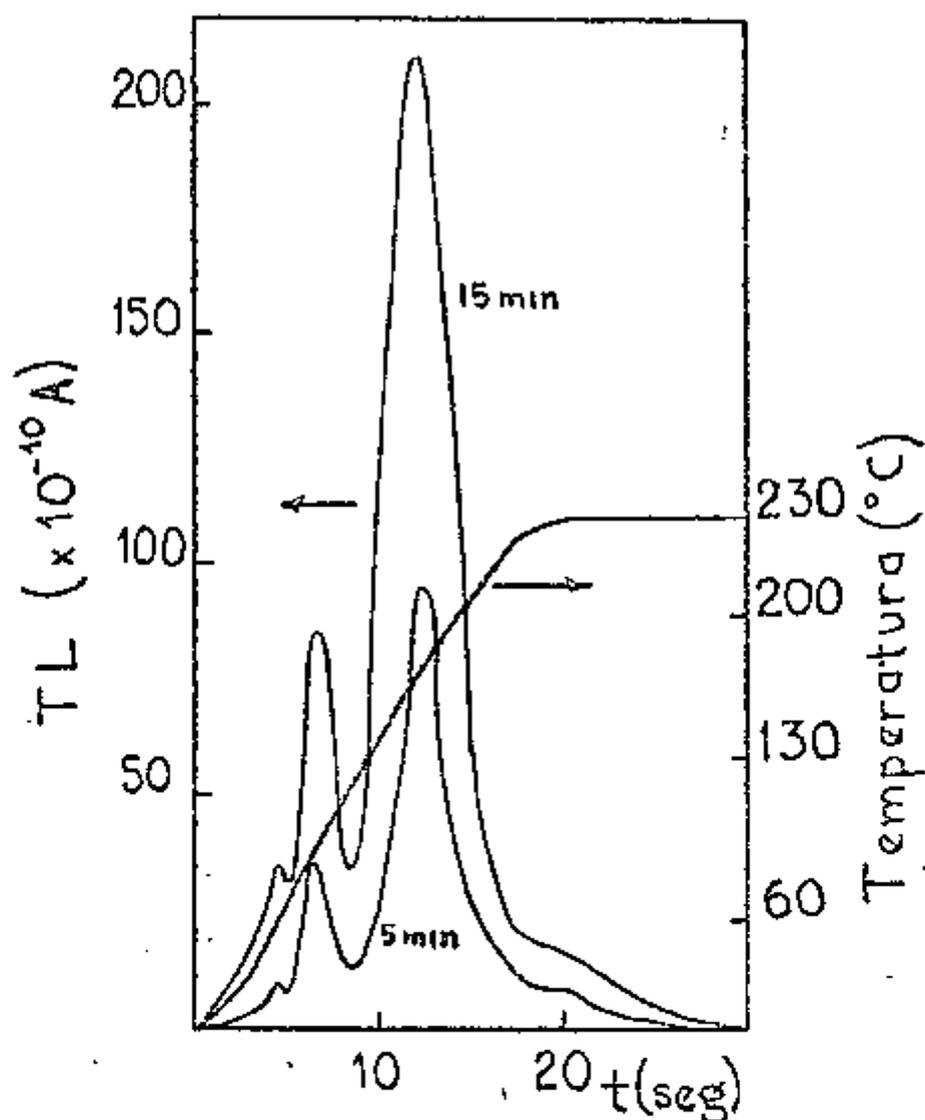


Fig. 4 - Curvas de emissão para 13 mg de amostras de fluorita 80/200 mesh submetidas à irradiação no campo misto n- γ na posição Guia de irradiação, durante 5 e 15 min de operação do Reator à potência de 2Mw; essas curvas foram obtidas alguns dias após o recozimento pós-irradiação, com o aparêlho da Harshaw, com a curva de aquecimento mostrada na figura, com tensão de fotomultiplicadora de 1100V e tempo de leitura de 30 seg.

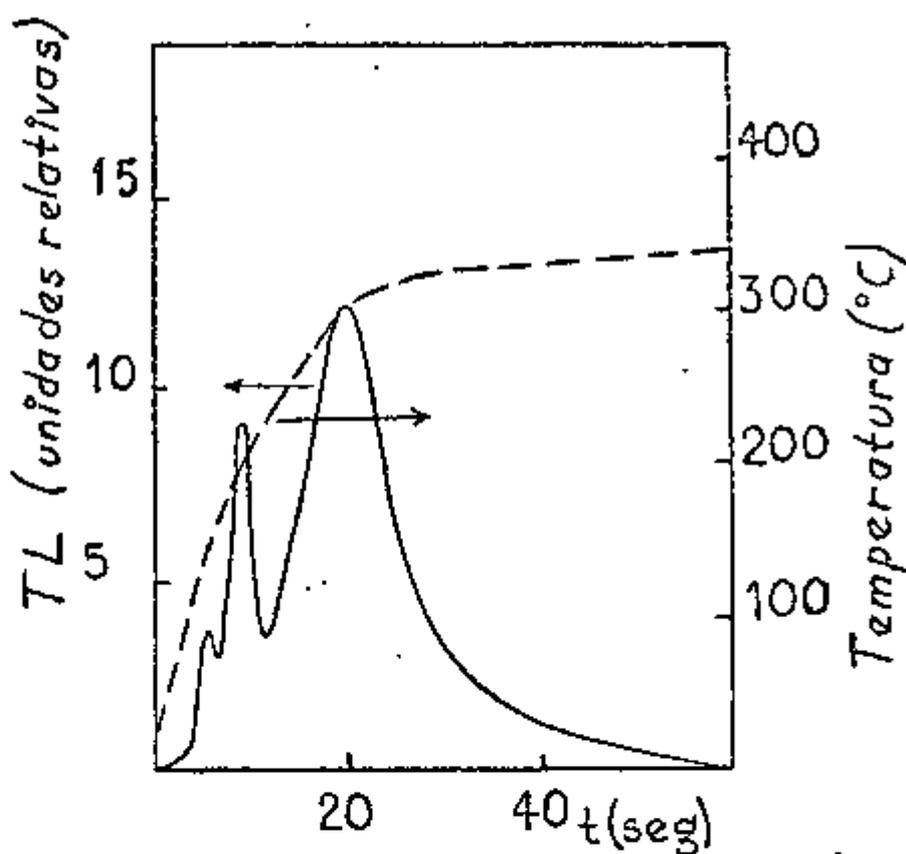


Fig. 4' - Curva de emissão para 13 mg de amostras de fluorita 80/200 mesh submetidas à irradiação no campo mixto $n-\gamma$ na posição Guia de irradiação, durante 30 min de operação do Reator à potência de 2Mw ; essa curva foi obtida alguns dias após o recozimento pós-irradiação, no aparêlho da CON-RAD, com tensão de fotomultiplicadora de 835 V, tempo de leitura de 60 seg e corrente de aquecimento de 0,8 A (curva de aquecimento na figura).

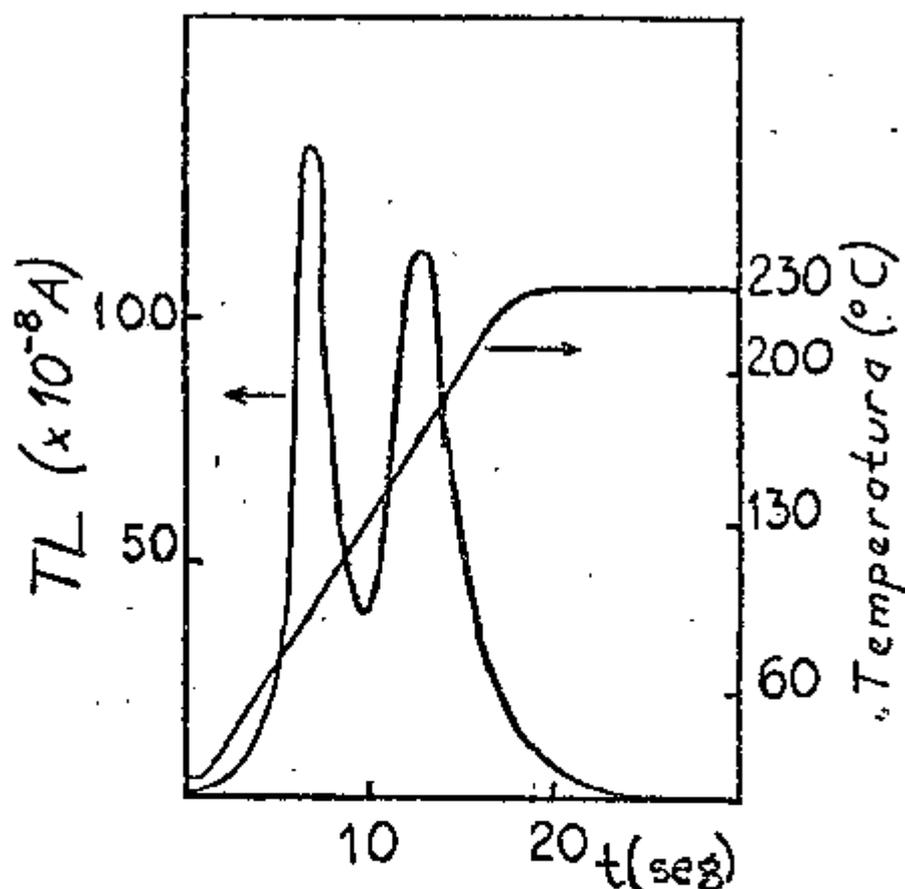


Fig. 5 - Curva de emissão para 13 mg de amostras de fluorita 80/200 mesh submetidas à irradiação no campo mixto n- γ de uma fonte Ra- α -Be de 300 mCi durante 18 h; entre a fonte e a cápsula que continha as amostras foi colocada uma camada de parafina para a obtenção de neutrons térmicos. A curva de emissão foi obtida imediatamente após a irradiação no campo mixto n- γ , no aparelho da Harshaw com tensão de fotomultiplicadora de 1100 V, tempo de leitura de 30 seg e com a curva de aquecimento mostrada na figura.

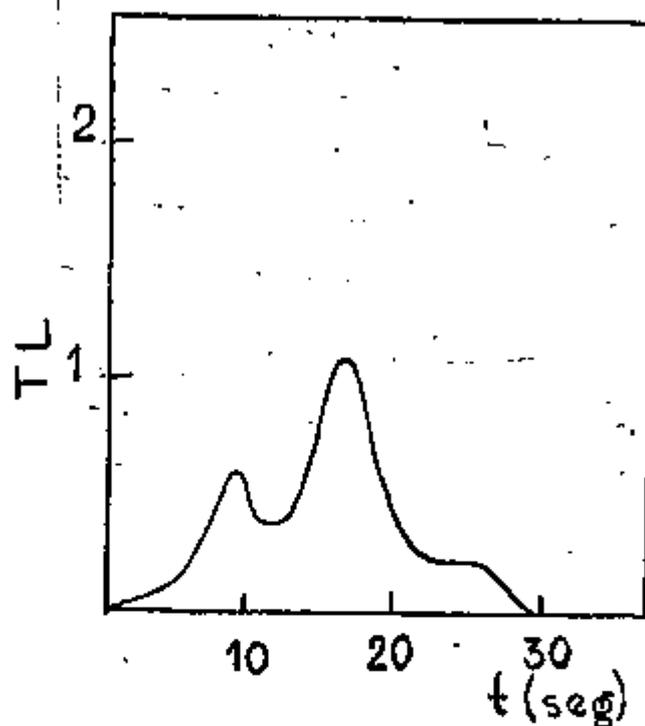


Fig. 5' - Curva de emissão para 13 mg de amostras 80/200 mesh submetidas à irradiação no campo mixto $n-\gamma$ de uma fonte Ra- α -Be de 300 mCi durante 18 h; entre a fonte e a cápsula que continha as amostras foi colocada uma camada de parafina para a obtenção de neutrons térmicos. A curva de emissão foi obtida alguns dias após o recôzimento pós-irradiação, sendo, portanto, devida somente aos neutrons. Essa curva foi obtida com o aparelho da Harshaw com tensão de fotomultiplicadora de 1100V, tempo de leitura de 30 seg e curva de aquecimento igual à da figura 5.

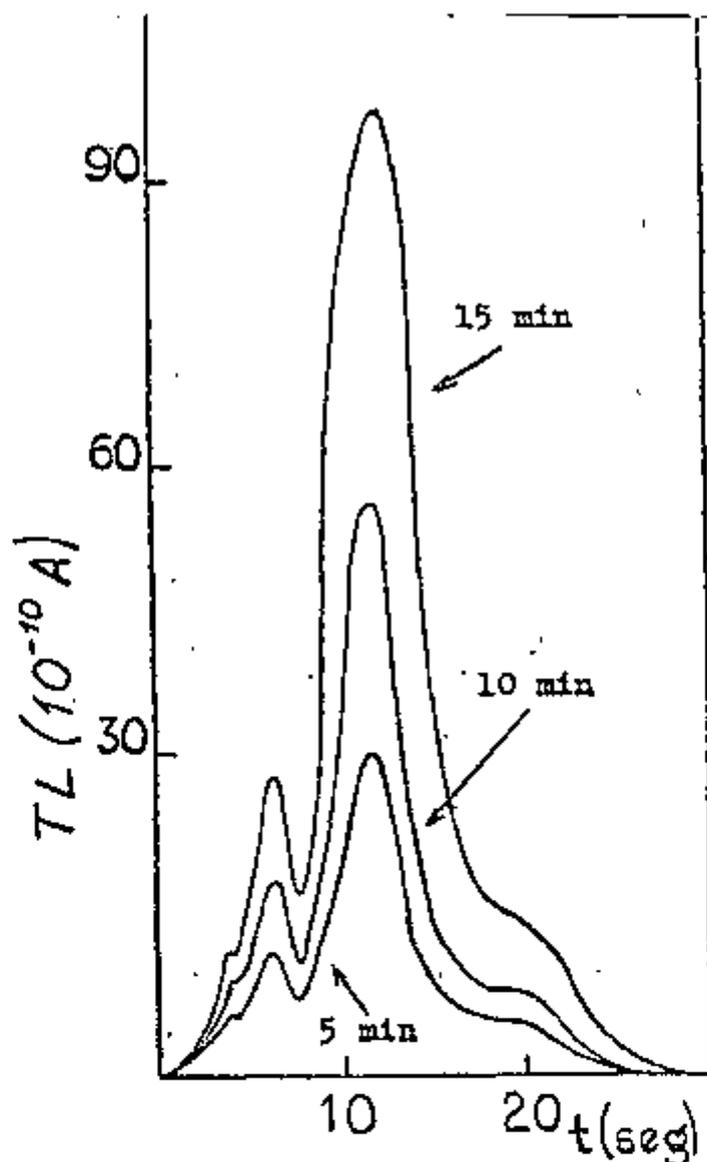


Fig. 6 - Curvas de emissão para 13 mg de amostras de fluorita 80/200 mesh submetidas à irradiação no campo mixto $n-\gamma$ na Estação nº 1 (E-1), durante 5 min de operação do Reator à potência de 2Mw; essas curvas foram obtidas alguns dias após o recozimento pós-irradiação, com o aparelho da Harshaw, com a curva de aquecimento da figura 4, com tensão de fotomultiplicadora de 1100V e tempo de leitura de 30 seg.

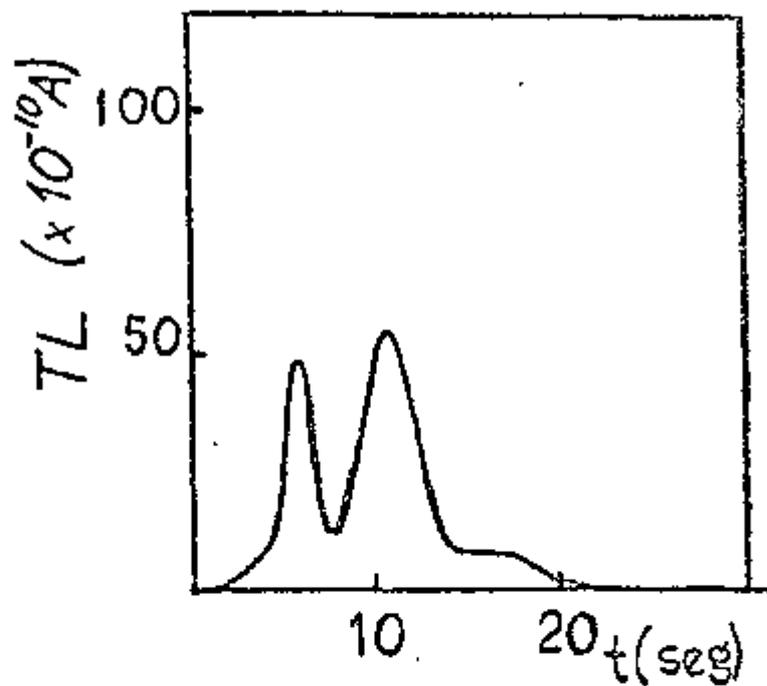


Fig. 7 - Curva de emissão para 13 mg de amostras 80/200 mesh irradiadas no campo de radiação γ da fonte ^{137}Cs com uma dose de 16,5 R; essa curva foi obtida com o aparelho da Harshaw com a curva de aquecimento da fig. 4, com tensão de fotomultiplicadora de 1100 V, e tempo de leitura de 30 seg.

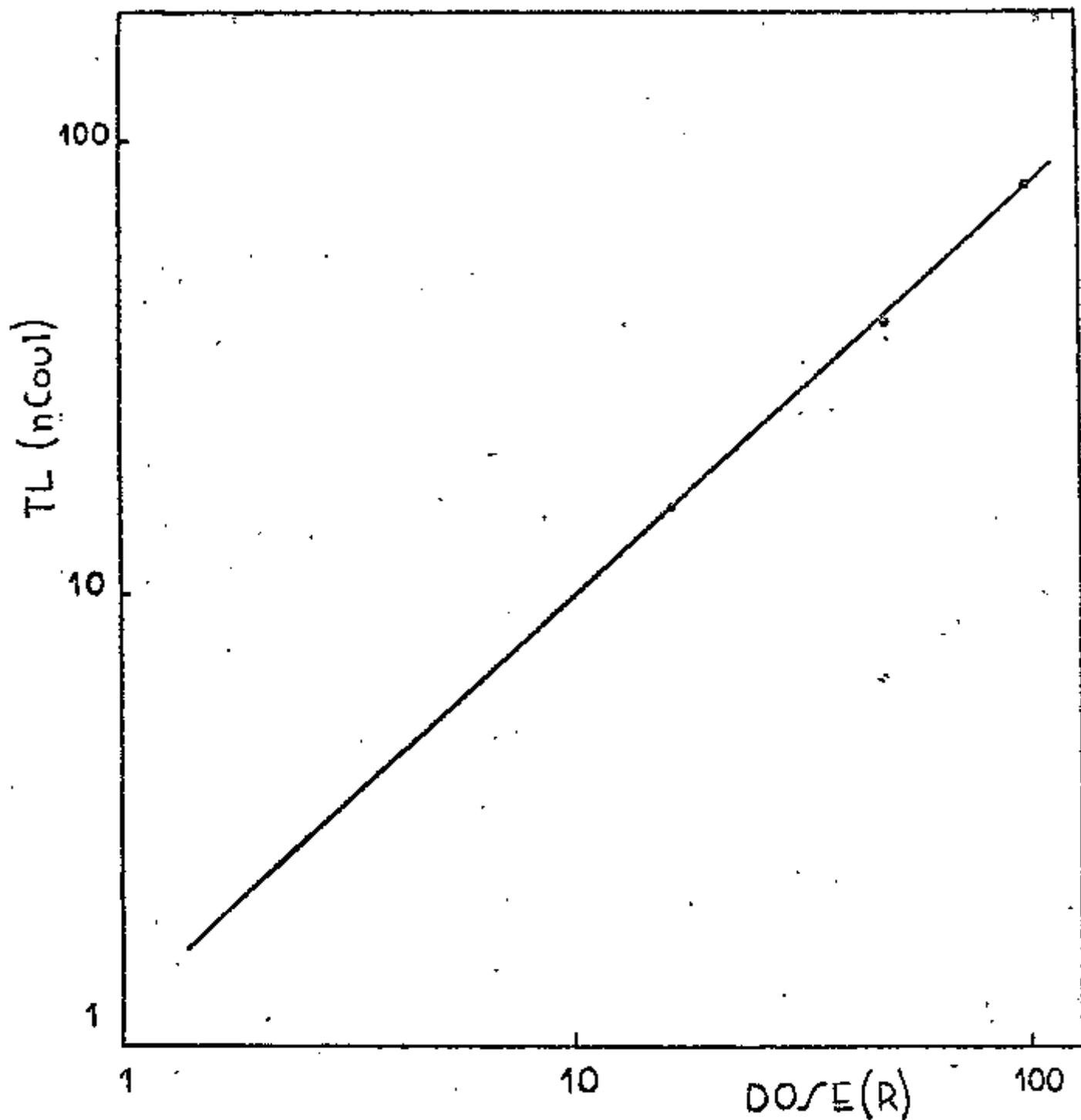


Fig. 8 - Dependência da termoluminescência com a dose de radiação γ . Nas ordenadas do papel log-log colocamos a TL, aqui considerada como a área sob a curva de emissão, e nas abscissas as doses em roentgen (R) correspondentes.

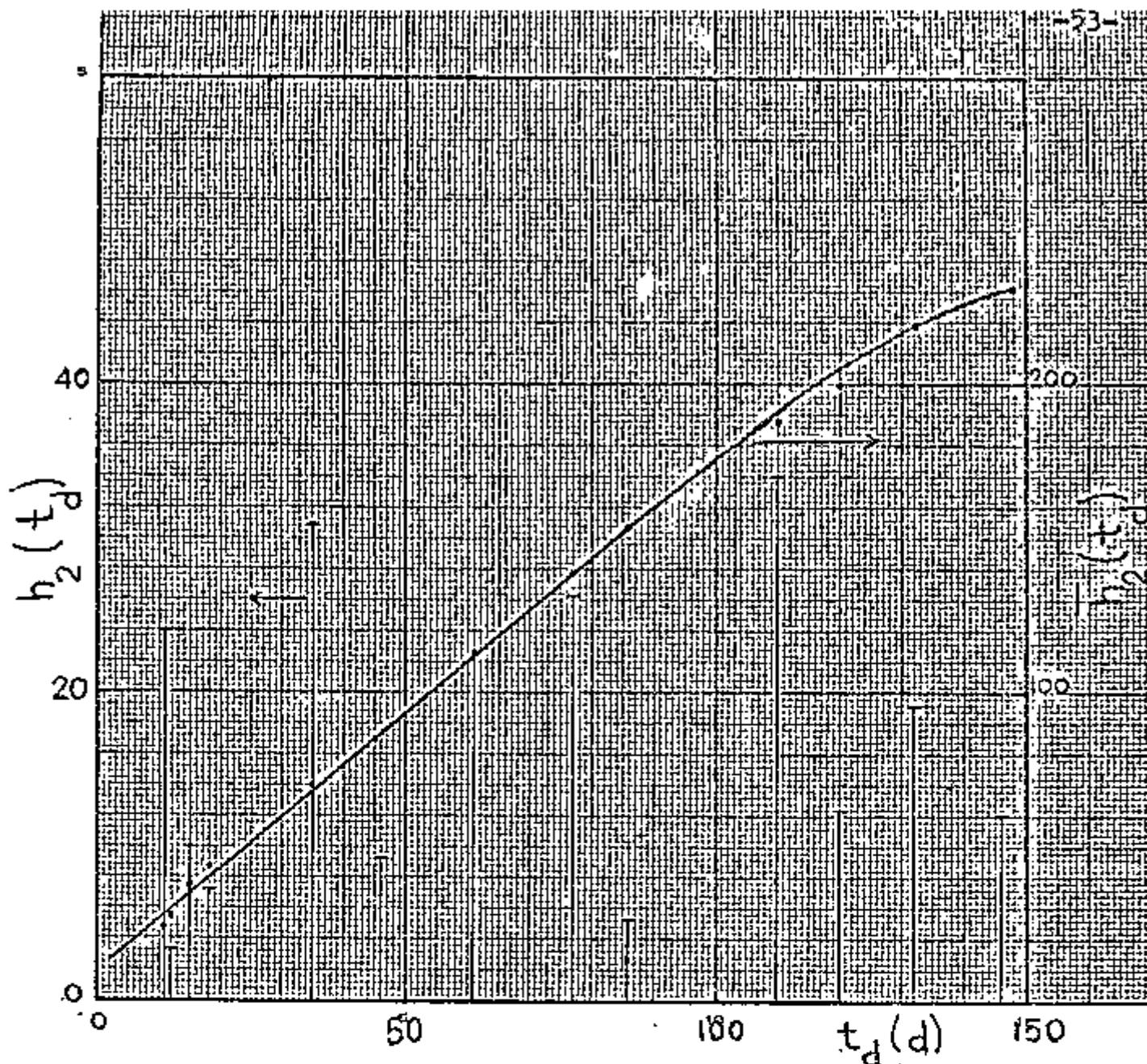


Fig. 9 - Resultados obtidos com uma das amostras de fluorita $4 \times 4 \times 2$ mm de massa ~ 158 mg irradiada com neutrons na posição Guia de irradiação do Reator IEAR-1 durante 40 min. Os traços verticais indicam os valores de h_2 (altura do pico 2) para os diferentes tempos t_d (tempo de decaimento da atividade do ^{45}Ca da amostra) - escala à esquerda -; a reta inclinada indica os valores de $\bar{h}_2(t_d^{(1)}) = \sum_1^t h_2(t_d^{(1)})$ - escala à direita -.

(Nas escalas das ordenadas os valores têm unidades relativas.)

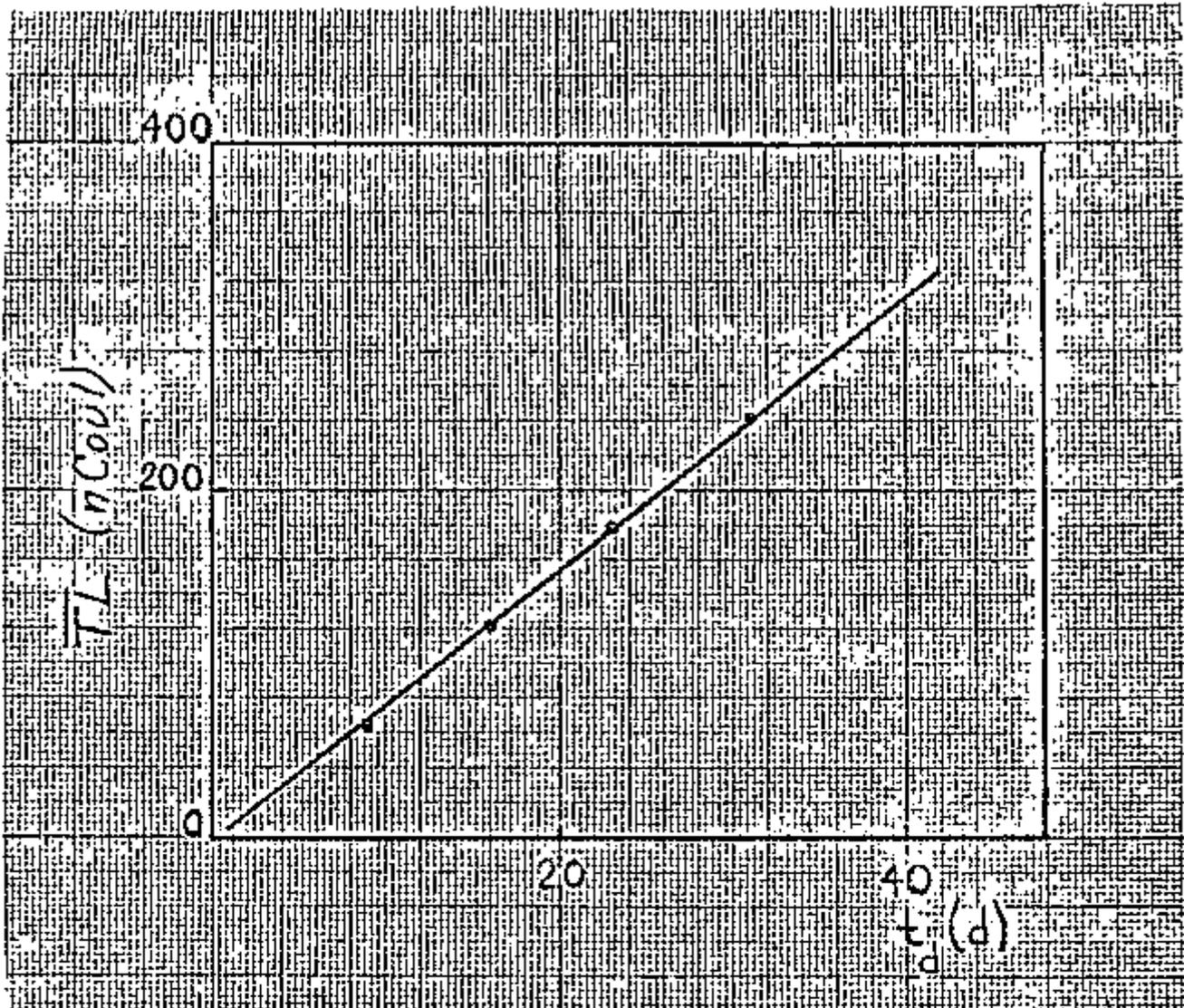


Fig. 10 - TL em função do tempo de decaimento da atividade de 13 mg de amostra de fluorita 80/200 mesh - irradiada no campo mixto $n-\gamma$ na posição Guia de irradiação durante 5 min de operação do Reator à potência de 2Mw. Como TL consideramos a área sob a curva de emissão; foram feitas 5 ou mais leituras para cada ponto e após cada conjunto de leituras foi feito recozimento de 400°C/10 min para eliminação da TL residual.

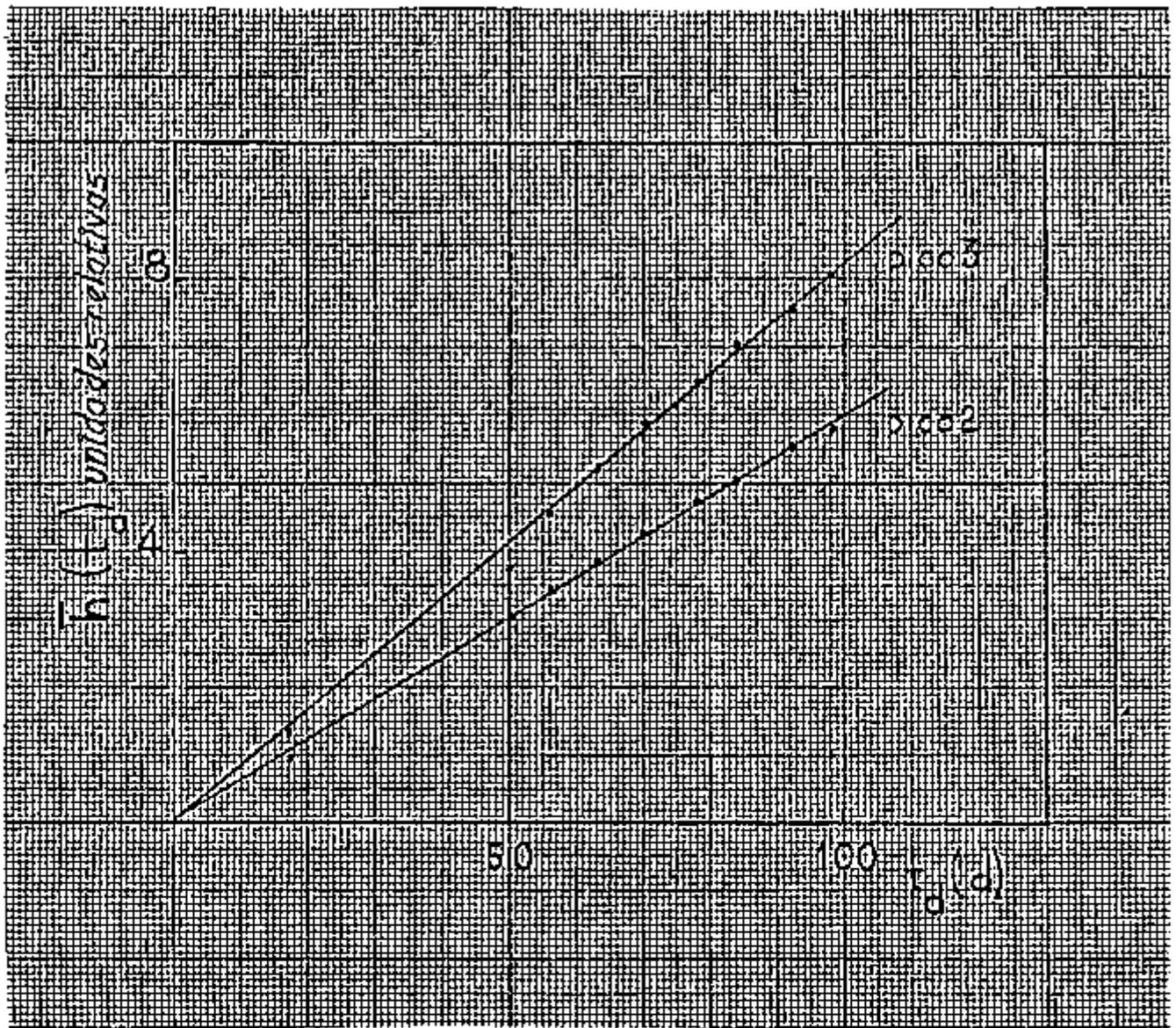


Fig. 10' - TL em função do tempo de decaimento da atividade β de 13 mg de amostra de fluorita 80/200 mesh irradiada no campo mixto $n-\gamma$ na posição Guia de irradiação durante 15 min de operação do Reator à potência de 2W. Nêsse caso consideramos como emissão TL as alturas dos picos 2 e 3 da curva de emissão.

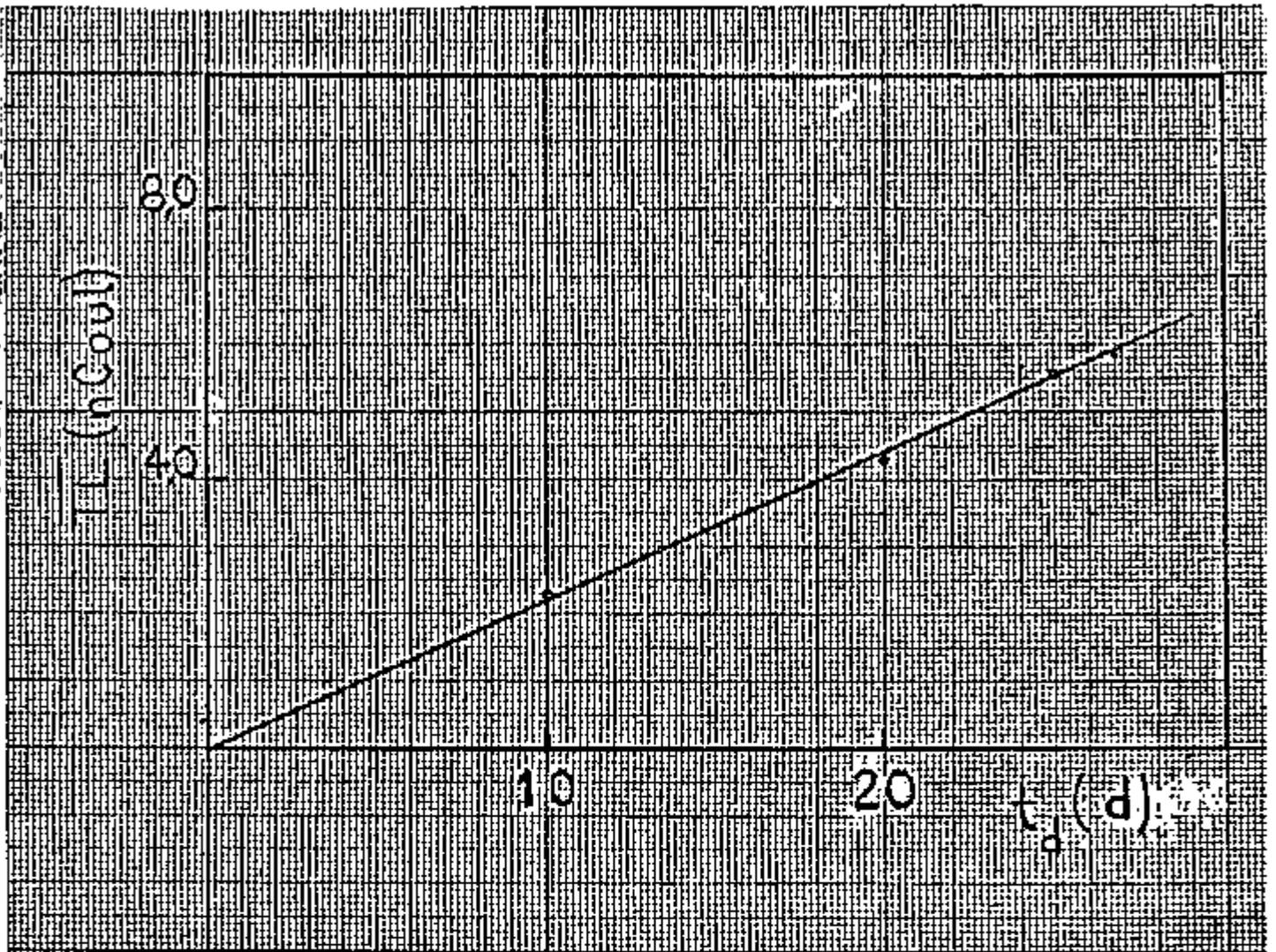


Fig. 11 - TL em função do tempo de decaimento da atividade β de 13 mg de amostra de fluorita 80/200 mesh irradiada no campo misto n- γ de uma fonte Ra- α -Be de 300 mCi durante 18 h. (A fonte foi envolvida com parafina para a obtenção de neutrons térmicos).

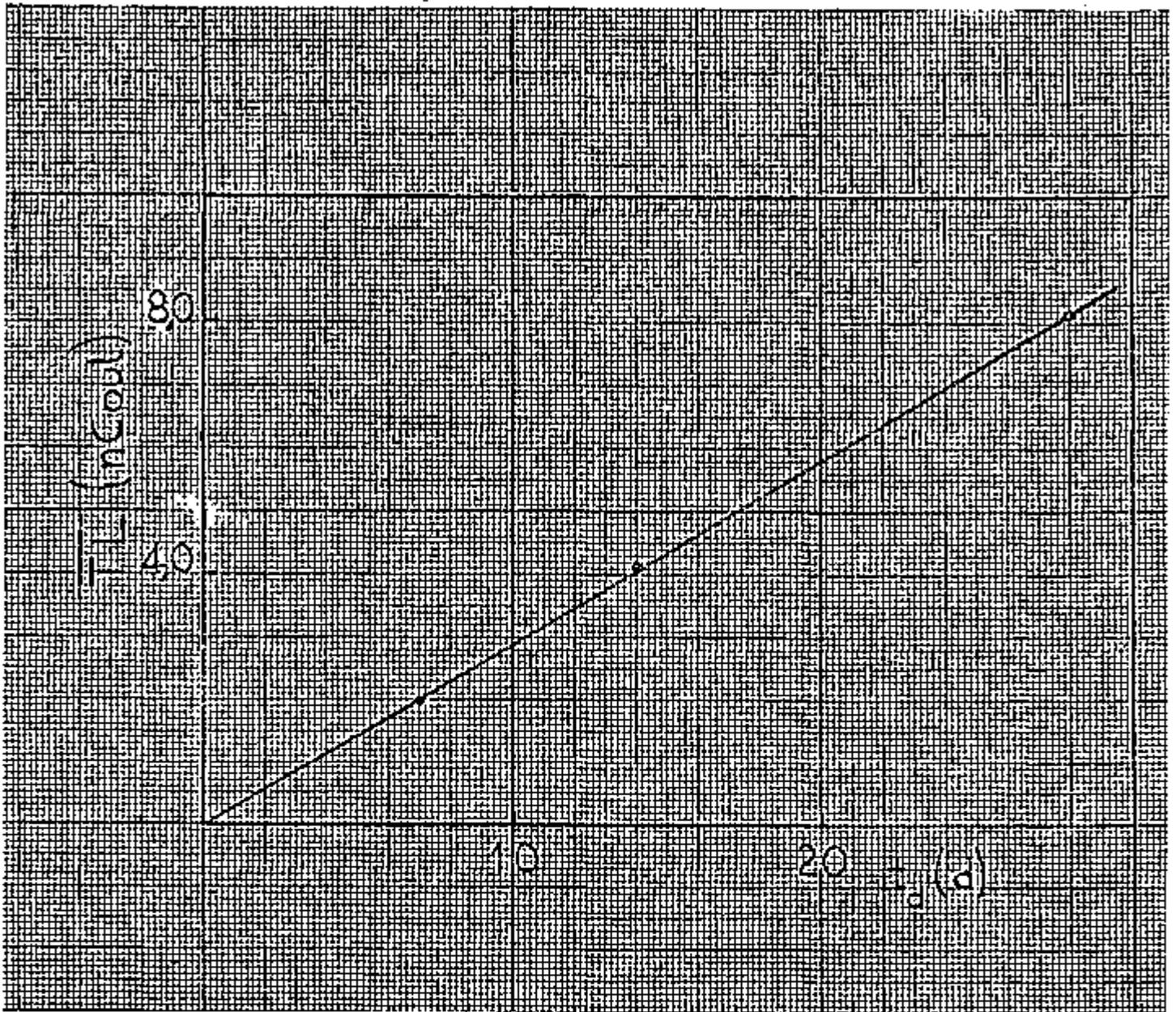


Fig. 12 - TL em função do tempo de decaimento da atividade β de 13 mg de amostra de fluorita 80/200 mesh irradiada no campo misto n- γ no beam hole nº 10 do Reator, durante 8 h de operação do Reator à potência de 2Mw. O fluxo de neutrons térmicos nessa posição foi determinado previamente pelo método de ativação de fôlhas metálicas. A reta obtida tem dupla importância: calibração do dosímetro e validade do método por nós desenvolvido no presente trabalho para fluxos baixos relativamente aos fluxos na proximidade do núcleo do Reator.

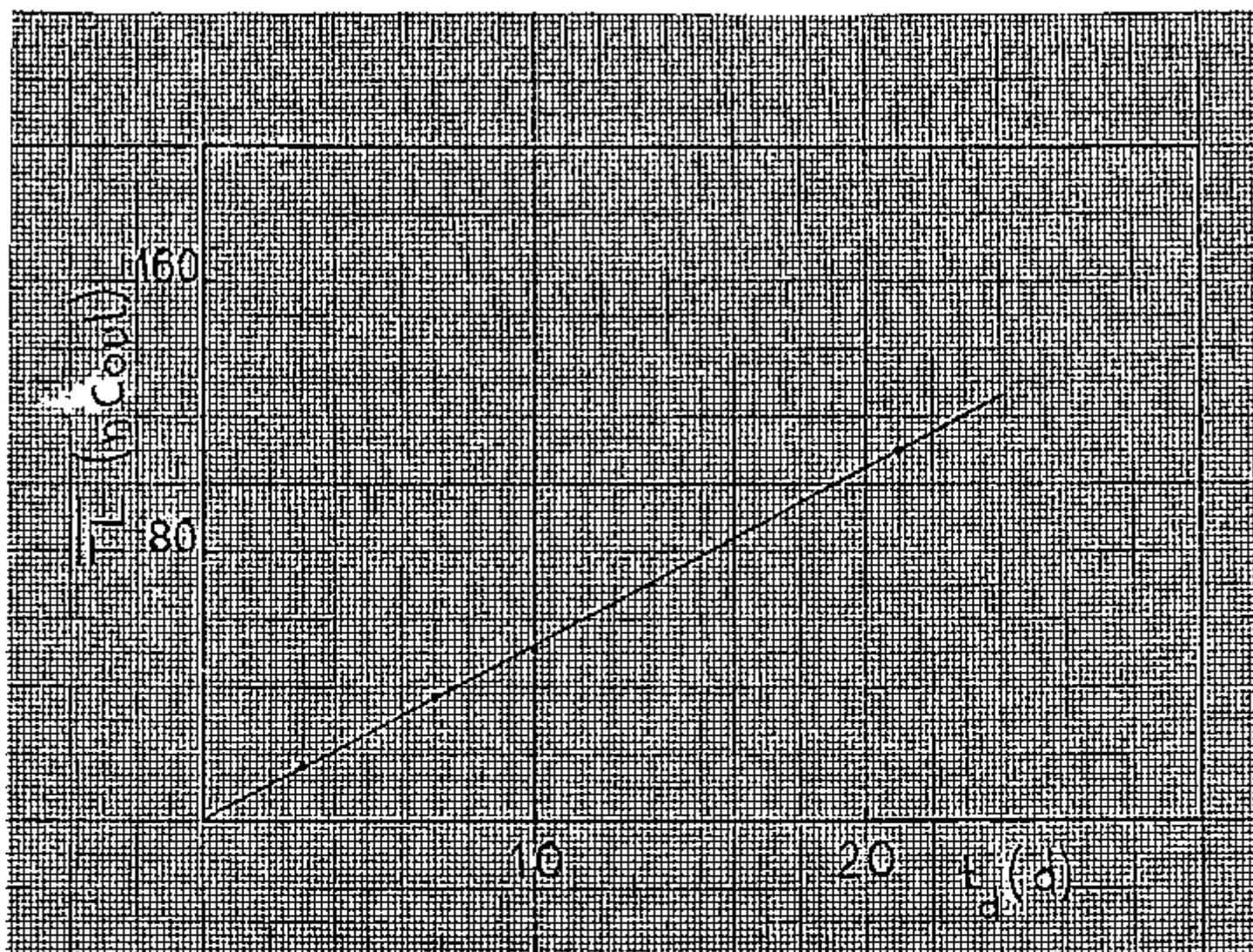


Fig. 13 - TL em função do tempo de decaimento da atividade β de 13 mg de amostra de fluorita 80/200 mesh irradiada no campo mixto n- γ na posição Estação n $^{\circ}$ 1 durante 5 min de operação do Reator à potência de 2Mw.

Como TL foi considerada a área sob a curva de emissão. Foi usado o aparelho da Harshaw para a obtenção das curvas de emissão.

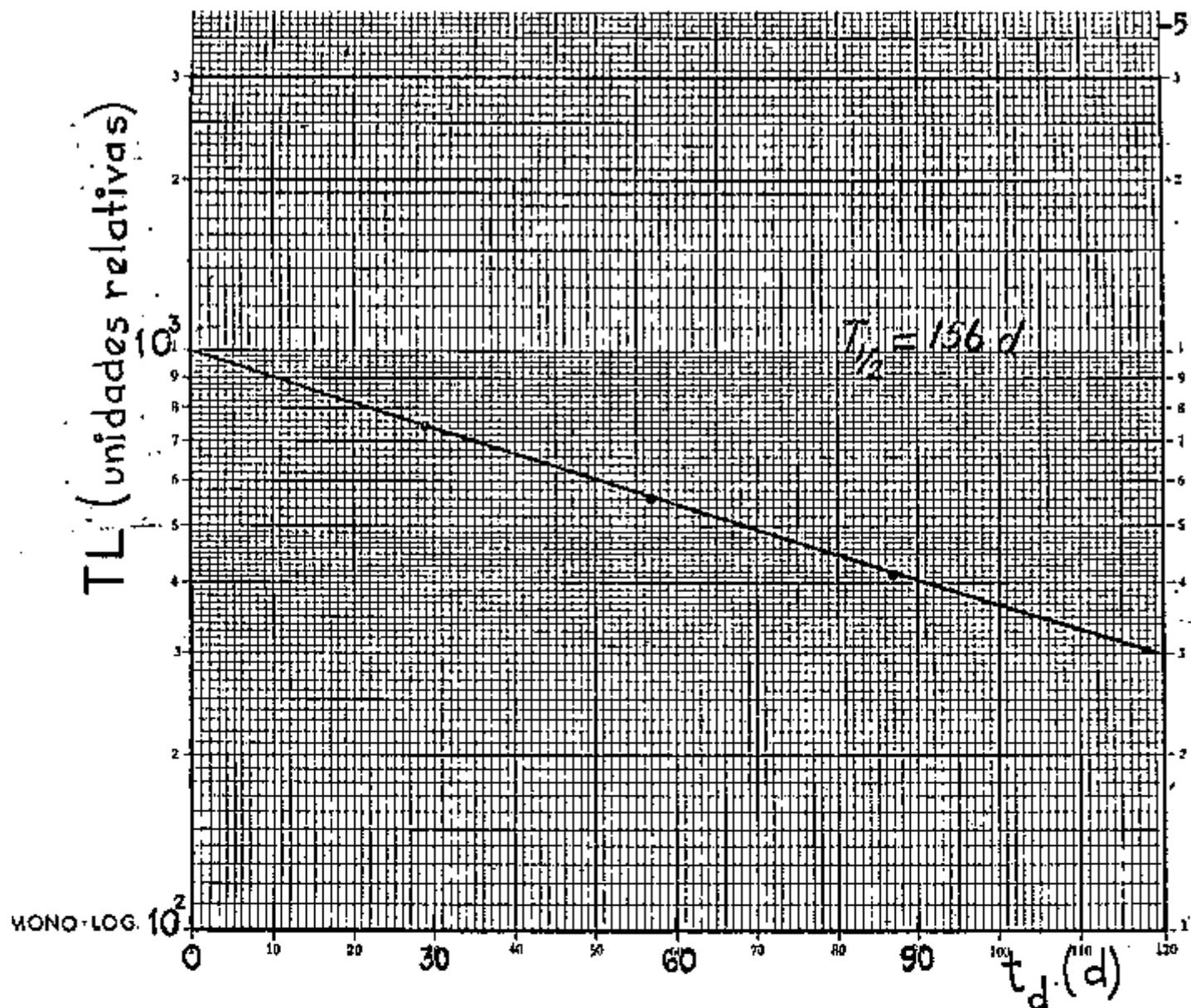


Fig. 14 - TL obtida a intervalos iguais de tempo de decaimento da atividade β de 13 mg de amostras de fluorita 80/200 mesh irradiadas na posição Guia de irradiação durante 30 min de operação do Reator à potência de 2Mw. Esses resultados foram obtidos por E. Okuno em nosso Laboratório com amostras de fluorita verde. Da inclinação da curva podemos obter a meia-vida do ^{45}Ca , pois, se a TL é proporcional à integral da atividade num certo intervalo de tempo, e como a atividade decresce exponencialmente com λ , também a integral da atividade para iguais intervalos consecutivos de tempo decairá com λ . Portanto, essa figura é importante para comprovar que a TL por nós obtida é devida principalmente à atividade do ^{45}Ca .

APÊNDICE - I

- Determinação de E_{β} máxima da amostra irradiada com neutrons térmicos-

Uma pequena quantidade das amostras utilizadas na experiência "B" (irradiadas na posição Guia por 5 min) foi colocada próxima ao detetor de Antraceno⁽¹⁾ montado no Laboratório do Acelerador Linear do Instituto de Física da Universidade de S. Paulo.

O espectro β da amostra foi obtido com o Analizador 1600 canais e para a calibração de energia foram usadas duas fontes β (^{60}Co e ^{14}C).

Construímos o " \sqrt{N} plot " ⁽²⁾ para a determinação de E_{β} máx. da amostra, conforme o gráfico da página seguinte.

(1) - Agradecemos à Profa. Nobuko Ueta do Lab. Acel. El. Van de Graaff do Instituto de Física da U.S.P. pelo empréstimo do detetor.

(2) - Segundo o Laboratory Manual A - ORTEC - 2nd Ed. 11/1968.

B I B L I O G R A F I A .

- (H1) - J. L. Handloser - " TL dosimeter as the component of a nuclear accident dosimeter " - Personnel Dosimetry for Radiation Accidents - IAEA-1965-Vienna.
- (O1) - Oltman; Kastner ; Tedeschi - " The effects of fast neutron exposures on the ⁷LiF TL response to rays " - 1st Top. Symp. on Pers. Rad. Dos. - Chicago -1967.
- (P4) - K. J. Puite - " TL response of CaF₂:Mn mixed with organic liquids in thermal and fast neutron fields " - Health Physics 17, 5 , Nov. 1969 .
- (R1) - A. E. Reddy ; K. Ayyangar ; G. L. Brownell - " TL response of LiF to Reactor neutrons " - Radiation Research 40, 3 , (1969) .
- (S1)^{*} - R. S. Schayes ; A. Bruaux - " La dosimetrie par TL " - 1^{ère} partie - extrait de la Revue MBLE/vol V -nº2 - 1962 .
- (S2) - R. S. Schayes ; G. Books ; I. Kozlowitz ; Lheureux- " TL properties of natural CaF₂ " - CONF 650637 - USAEC - 1965 .

* - referente à parte I do trabalho.

(T1) - E. Tochilin ; B. W. Shumway - " Dosimetry of n and mixed n fields " - in Radiation Dosimetry , - F. H. Attix ; E. Tochilin - Vol III - (1969) .

(W1) - C. L. Wingate ; E. Tochilin ; N. Goldstein -
" Response of LiF to neutrons and charged particles"
- USNRDL-TR-99(1965)- ou CONF 650637 (Luminescence
Dosimetry)-1965 .

(W2) - S. Watanabe - " Propriedades de Termoluminescência
de "LiF:Mg" - Tese de Livre-Docência - U.S.P.-1969.

