

Er. 703161



**DOSIMETRIA TERMOLUMINESCENTE DE NÉUTRONS TÉRMICOS
COM $\text{CaF}_2 + \text{KBr}$ E $\text{CaSO}_4: \text{Dy} + \text{KBr}$**

Ana Maria Pinho Leite

**DISSERTAÇÃO E TESE - IEA 103
IEA - DT - 103**

MARÇO/1979

CONSELHO DELIBERATIVO

MEMBROS

Klaus Reinach – Presidente

Roberto D'Utra Vaz

Helcio Modesto da Costa

Ivano Humbert Marchesi

Admar Cervellini

PARTICIPANTES

Regina Elisabete Azevedo Beretta

Flávio Gori

SUPERINTENDENTE

Rômulo Ribeiro Pieroni

DOSIMETRIA TERMOLUMINESCENTE DE NÉUTRONS TÉRMICOS
COM $\text{CaF}_2 + \text{KBr}$ E $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{KBr}$

Ana Maria Pinho Leite

Dissertação para obtenção do Título de "Mestre em Ciências - Área de Concentração Tecnologia Nuclear" - Orientador Dr. Reginaldo Mucclio. Apresentada e defendida em 31 de Março de 1978, no Instituto de Energia Atômica

Série DISSERTAÇÃO E TESE IEA

INIS Categories and Descriptors

B25

E41

Thermoluminescent dosimetry

Calcium fluorides

Calcium sulfates

Neutron detection

Thermoluminescence

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

SUMÁRIO

Página

CAPÍTULO I

INTRODUÇÃO	1
1.1 – Importância da Dosimetria de Nêutrons Térmicos	1
1.2 – Dosimetria de Nêutrons Térmicos	2
1.3 – Objetivos	4

CAPÍTULO II

PARTE EXPERIMENTAL	4
11.1 – Amostras	4
11.2 – Sistemas de Medida de Emissão TL	6
11.3 – Tratamentos Térmicos	8
11.4 – Fontes de Irradiação	10

CAPÍTULO III

RESULTADOS E DISCUSSÃO	11
111.1 – Preparação e Estudos de Discos Dosimétricos de $\text{CaF}_2 \cdot \text{nat} + \text{KBr}$ e de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{KBr}$..	11
a – Otimização da Proporção Relativa dos Componentes	11
b – Emissões TL dos Componentes	21
c – Dependência da Intensidade de Emissão TL com a Pressão de Confeção dos Discos Dosimétricos	26
d – Dependência da Intensidade de Emissão TL com a Exposição à Radiação Incidente ..	29
111.2 – Identificação das Contribuições Relativas dos Isótopos na Auto-Irradiação	31
111.3 – Detecção de Nêutrons Térmicos em Campos Mistos n-gama	44
CONCLUSÕES	57
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	58

DOSIMETRIA TERMOLUMINESCENTE DE NÉUTRONS TÉRMICOS

COM $\text{CaF}_2 + \text{KBr}$ E $\text{CaSO}_4: \text{Dy} + \text{KBr}$

Ana Maria Pinho Leite

RESUMO

Amostras compactadas de CaF_2 nat + KBr e $\text{CaSO}_4: \text{Dy} + \text{KBr}$ com 100 mg de um dos fósforos e 80 mg de KBr demonstraram ser adequadas na detecção de nêutrons empregando-se a técnica da termoluminescência (TL) auto-induzida.

A medida do sinal TL realizada em tempos iguais, demonstrou que a atividade induzida nessas amostras, é devida principalmente ao ^{80}Br formado pela reação de captura de nêutrons $^{79}\text{Br}(n,\gamma)^{80}\text{Br}$.

O efeito TL devido à radiação gama presente no campo neutrônico é eliminado com adequado tratamento térmico pós-irradiação. A seguir as amostras são armazenadas por um tempo, quando a termoluminescência é induzida.

A distinção entre os efeitos TL devido a nêutrons térmicos (energia menor que 0,4 eV) e apitérmicos (0,4 eV - 10 KeV) procedeu-se pelo método da diferença de Cd.

Experiências sistemáticas foram feitas variando a exposição a raios gama e R-X a fim de se estudar algumas características TL das amostras compactadas, como por exemplo: pico de emissão, sensibilidade TL, e diferenças entre emissões TL de amostras compactadas e na forma de pó.

As amostras foram irradiadas na Est-1 e Est-4 do reator IEAR-1 e em uma fonte de ^{252}Cf (400 μg) submersa na água, com fluxos térmicos determinados pelo método da auto-ativação de folhas de Au. Esta experiência foi utilizada na detecção de nêutrons com energia abaixo de 0,4 eV. A relativamente alta sensibilidade da intensidade TL com a fluência de nêutrons térmicos permite sugerir o método na monitoração de áreas onde há emprego de fontes de nêutrons, numa faixa ampla de fluxos ($10^5 \text{ n.cm}^{-2} \text{ seg}^{-1}$ - $10^{12} \text{ n.cm}^{-2} \text{ seg}^{-1}$).

Tendo-se a relação entre a intensidade TL e a fluência de nêutrons foi possível determinar as mínimas fluências de nêutrons térmicos: 10^9 n.cm^{-2} e 10^6 n.cm^{-2} , para discos de CaF_2 nat + KBr e $\text{CaSO}_4: \text{Dy} + \text{KBr}$, respectivamente.

Esses resultados permitem propor também o uso de discos de $\text{CaSO}_4: \text{Dy} + \text{KBr}$ na monitoração de áreas onde ocorram baixas fluências neutrônicas.

I - INTRODUÇÃO

1.1 - Importância da Dosimetria de Nêutrons Térmicos

As diferenças na natureza das radiações conduz a diversas formas de interação que resultam em: atenuação (absorção), espalhamento (mudança em direção), ionização e excitação dos átomos ou a conversão de um tipo de radiação em outro (efeito fotoelétrico). Esses fenômenos ocorrem depois da colisão da radiação com o núcleo e os elétrons orbitais com a partícula livre ou com o campo em volta

da partícula. Nessa colisão podem ocorrer variações de momento, energia, carga e de propriedades químicas e físicas do sistema que está interagindo. Isto é mais que suficiente para justificar a necessidade de investigar e medir os efeitos provocados na passagem da radiação em qualquer meio. Devido às diferentes formas de interação da radiação com o meio, um dispositivo detector a ser utilizado dependerá de uma ou mais propriedades da radiação que se está medindo.

A existência de um processo capaz de moderar a energia do nêutron ("termalizar" nêutrons de energia superior a 0,4 eV), combinado com o fato dos mesmos existirem em grande abundância em reatores nucleares e em outras fontes, garante uma discussão separada sobre a detecção de nêutrons no intervalo de energia térmico. A especificação exata da região de energia térmica depende da temperatura do meio que o nêutron se encontra em equilíbrio térmico. As partículas constituintes de um meio assumem um espectro de energia que é descrito por uma distribuição Maxwelliana determinada pela sua temperatura. Para um meio em equilíbrio térmico a 20°C, a energia mais provável dos nêutrons térmicos é de 0,025 eV (2.200 m/seg)⁽³⁾.

A interação dos nêutrons com o meio pode ser resumida em duas categorias: absorção e espalhamento. Normalmente, para nêutrons no intervalo de energia térmica (energia menor que 0,4 eV)⁽¹⁾ e intermediária (0,4 eV – 10⁶ eV)⁽¹⁾ o processo principal de interação é o de absorção por captura radiativa⁽⁴⁾. Nesse processo ocorre a emissão de radiação gama e o núcleo residual é geralmente radioativo (emite partículas beta seguido por algumas emissões de R- γ)⁽⁵⁾. Esse decaimento do núcleo residual possui suas próprias características de meia-vida (que é descrito pela lei do decaimento radioativo). O mesmo pode ser utilizado juntamente com uma técnica para detectar nêutrons térmicos.

Fisicamente, a dose absorvida para a maioria dos tipos de radiação é definida em unidades de energia absorvida por unidade de massa do absorvedor (erg/grama ou rad). Para dosimetria de nêutrons, devido à natureza complexa da seção de choque de nêutrons, é mais comum tratar-se com fluxo no lugar de dose absorvida⁽⁶⁾. Quando estamos falando de dosimetria (especialmente no tecido) o problema não fica inteiramente resolvido ao descrever-se somente o campo neutrônico através do fluxo de nêutrons. A explicação é porque idênticos fluxos de nêutrons com diferentes espectros podem iniciar processos diferentes no tecido. Isso é devido à existência de diferentes probabilidades de reações neutrônicas nas diferentes faixas de energia. No entanto, isso não será discutido nesse trabalho, por tratar-se do campo da dose biológica devida a nêutrons.

1.2 – Dosimetria de Nêutrons Térmicos

Dos diversos métodos de dosimetria de nêutrons térmicos existentes cada um apresenta as suas vantagens e desvantagens mas nenhum deles é aceito como definitivo.

Uma das técnicas largamente usada, que utilize a reação de captura radiativa, é o método da ativação de folhas finas de um material com adequada seção de choque para a reação (n,γ) ⁽¹⁶⁾. A detecção de nêutrons é feita através de medidas da radioatividade induzida no material irradiado. Normalmente, utilizam-se folhas de Au, Dy, Cu para as medidas de nêutrons térmicos e intermediários⁽¹⁾. A informação obtida diretamente destes detectores, quando expostos a um fluxo de nêutrons, é a atividade específica induzida (desintegração $\text{seg}^{-1} \cdot \text{g}^{-1}$)⁽¹⁾. Se a seção de choque para a reação que ocorre e o espectro de nêutrons são conhecidos, então o fluxo pode ser determinado a partir da atividade induzida⁽¹⁾. Esta técnica requer a utilização de um detector auxiliar e vários instrumentos são úteis para esse propósito e entre eles tem-se os cintiladores. No entanto, esse método de ativação de folhas, devido ao caráter transitório, não dá informações sobre as diferentes doses recebidas pelo corpo de prova. O método é bem adequado para altas fluências de nêutrons (acima de $10^{21} \text{ n.cm}^{-2}$)⁽⁸⁾ e precisa utilizar-se folhas que não contenham impurezas a fim de não ocorrer reações interferentes nas medidas⁽⁸⁾.

Um outro método para medir fluxo de nêutrons é através da deposição e armazenamento de

parte da energia resultante da interação dos mesr:os com o meio. Essa energia armazenada é acumulada e posteriormente pode ser medida e relacionada com o fluxo de nêutrons. Entre esses métodos, tem-se o da termoluminescência (TL), que envolve a ativação térmica de portadores de carga anteriormente armadilhados por meio de processos fornecedores de energia tal como irradiação (direta ou indiretamente), e sua recombinação radiativa com emissão de fótons na faixa espectral do visível e do ultravioleta. O formalismo da TL foi proposto por vários autores; entre eles Urbach⁽¹⁰⁾, que se baseou nos trabalhos de Randall e Wilkins⁽¹⁹⁾. No presente trabalho não se pretende estudar o fenômeno TL em si, isto é, os processos de formação de defeitos responsáveis por captura de portadores de carga ou as cinéticas de destruição desses defeitos, mas sim caracterizar as amostras para o processo de detecção de nêutrons. Fundamentalmente o que ocorre quando um cristal TL é exposto à radiação ionizante é o aprisionamento de portadores de carga em níveis meta-estáveis de energia ou existentes no cristal e/ou produzidos pela radiação incidente. Devido à natureza estatística do processo, as cargas em cada grupo de armadilhas não serão liberadas à mesma temperatura. Surge daí um pico de intensidade TL conforme aumenta-se a temperatura do cristal. O processo de transferência de energia aos portadores de carga armadilhados se dá pela interação de fonons provenientes da estimulação térmica quando o cristal é aquecido. Dessa forma, o princípio desse método é baseado no fato de que certos cristais luminescentes (fósforos) são excitados à uma temperatura T mas produzem luminescência a temperaturas T' relativamente mais altas. Normalmente T é a temperatura ambiente e T' varia entre T e 500°C. Caso T' ocorra em temperaturas relativamente baixas ou maiores que 500°C, o fósforo não é considerado adequado para a dosimetria. Isso é devido a processos de desarmadilhamento à temperatura ambiente provocados pela agitação térmica no cristal e efeitos preponderantes de emissões infra-vermelhas, respectivamente. Conclui-se portanto que, registrando-se a intensidade luminescente em função do tempo de aquecimento, tem-se a curva de emissão TL. Se diferentes tipos de armadilhas estão presentes, a curva de emissão contém vários máximos.

Como a energia armazenada, é proporcional à luminescência total emitida, que por sua vez é proporcional à dose de radiação, pode-se fazer uma correlação entre elas e se determinar a intensidade de radiação a que foi exposto o cristal.

A escolha do cristal a ser usado por esse método requer que o mesmo apresente os requisitos adequados para um bom dosímetro termoluminescente, sendo os principais os seguintes⁽²⁾: não dependência com a energia da radiação, reprodutibilidade, não dependência com a direção do feixe de radiação incidente, etc.

A dosimetria de nêutrons depende de mecanismos de excitação indireta, ou seja, depende não somente da quantidade de fósforo TL mas também da abundância relativa do elemento sensível a nêutrons. Esse elemento pode estar no fósforo ou em um ativador misturado ao fósforo.

Uma das possíveis reações usadas na dosimetria de nêutrons térmicos é ${}^6\text{Li}(n,\alpha)\text{T}$. O ${}^6\text{Li}$ tem uma seção do choque de 945 b para essa reação⁽¹²⁾ e as partículas alfa resultantes induzem a TL no fósforo ${}^6\text{LiF:Mg}$.

Um outro trabalho proposto para a dosimetria TL de nêutrons baseia-se na ativação do fósforo $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ apresentando a desvantagem principal da baixa sensibilidade⁽¹¹⁾.

Em 1970 já havia sido proposto esse método para a dosimetria de nêutrons térmicos com CaF_2 natural⁽¹²⁾ com a ativação do ${}^{44}\text{Ca}$ cujo núcleo residual emite raios beta com $T_{1/2}$ de 165 dias (σ_{cap} é igual a 0,7 barns) e induz a TL no fósforo. Tem-se a desvantagem de uma relativamente baixa seção de choque de captura com baixa porcentagem isotópica do núcleo considerado (2,08%).

Posteriormente, outros trabalhos foram desenvolvidos seguindo essa linha de TL auto-induzida^(14,15). Fundamentalmente, essa técnica propõe um método onde utiliza-se as propriedades termoluminescentes de fósforos só que a TL é induzida através das ionizações produzidas pelas partículas beta provenientes do decaimento radioativo de um ou mais elementos do fósforo, que possui uma

relativamente alta seção do choque de captura. Esse método ainda apresenta a vantagem de poder eliminar os efeitos TL devido a radiação gama presente no campo neutrônico, através de um adequado tratamento térmico pós-irradiação. A medida TL feita posteriormente está relacionada com o decaimento dos núcleos radioativos formados quando irradia-se a amostra com nêutrons. Assim a TL é proporcional ao número de átomos ativados, que é proporcional à fluência de nêutrons.

No presente trabalho, estuda-se a dosimetria de nêutrons térmicos por meio da técnica da TL auto-induzida, onde alguns aprimoramentos são introduzidos: o material ativador (Br) apresenta uma seção de choque de captura para nêutrons térmicos e uma porcentagem isotópica bem maior do que o ^{44}Ca . Além disto, a meia-vida do isótopo de interesse produzido, sendo da ordem de horas, se presta mais a essa técnica. O material utilizado como ativador (KBr) apresenta uma sensibilidade termoluminescente relativamente baixa não interferindo nas características TL da mistura.

1.3 – Objetivos

Esse trabalho estuda portanto misturas de fósforos TL com ativador e relaciona a luz emitida na TL auto-induzida com a fluência de nêutrons térmicos.

As etapas a serem seguidas para se atingir o objetivo proposto pressupõe o conhecimento das características TL de alguns fósforos que já demonstraram possuir boa sensibilidade TL em experiências anteriores de dosimetria. Escolhidos os materiais adequados para a dosimetria TL, estudam-se os efeitos e as modificações ocorridas nas propriedades TL ao acrescentar-se a esses fósforos um outro componente com relativamente alta seção de choque de captura para nêutrons térmicos.

Como amostras compactadas são muito úteis para fins dosimétricos (evita a perda de material e facilita o manuseio), deve-se também estudar os efeitos provocados devido a compactação da mistura do fósforo com ativador.

Após os estudos acima relacionados, inicia-se a parte mais importante do trabalho: testes que revelam a proporção otimizada e a sensibilidade da mistura a nêutrons térmicos. Finalmente, procede-se às irradiações com diferentes fluxos neutrônicos, onde obtêm-se as curvas de emissão TL e as intensidades de emissão TL para diferentes tempos de irradiação, onde pode-se constatar a validade do sistema e da técnica utilizados na detecção de nêutrons térmicos.

II – PARTE EXPERIMENTAL

II.1 – Amostras

Os fósforos dosimétricos termoluminescentes utilizados são o sulfato de cálcio (CaSO_4) e o fluoreto de cálcio natural (CaF_2 nat). Ambos foram escolhidos por preencherem os requisitos básicos exigidos para medidas de termoluminescência já discutidos anteriormente.

Um dos mais sensíveis fósforos entre os sulfatos de cálcio é aquele dopado com disprósio (0,1% em mol.⁽²¹⁾). Esse material termoluminescente pode ser preparado pelo método de evaporação baseado na técnica descrita por T. Yamashita⁽¹⁶⁾. Os cristais de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ resultantes são lavados com álcool para remover o H_2SO_4 residual (proveniente da solução que deu origem a esses cristais) e logo a seguir é dado um aquecimento em torno de 100°C . Posteriormente o $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ é triturado, peneirado e um selecionamento dos grãos entre $85\ \mu$ e $185\ \mu$ torna-se necessário a fim de garantir uma maior homogeneização da amostra. O pó resultante é então aquecido a $600^\circ\text{C}/2\text{h}$ em um cadinho de porcelana aberto, queimando traços de resíduos orgânicos e destruindo defeitos responsáveis por picos de emissão termoluminescentes de temperaturas relativamente baixas.

Uma primeira análise do $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ por fluorescência de R-X (na CEQ-APE do IEA) revelou a existência de Cu (0,05%), Zn (0,02%), e Fe (0,03%) como principais impurezas neste material. Testes do espectro de emissão termoluminescente (200 nm – 900 nm), que foram feitos com proporções de diferentes evaporações coletadas ao acaso, constata-se para os principais picos do Dy (480 nm – 571 nm) iguais intensidades, indicando que o fósforo preparado pelo método citado anteriormente é homogêneo no que diz respeito à concentração de dopante nas amostras.

O Fluoreto de Cálcio natural é proveniente de Criciúma, Santa Catarina. Foi escolhido o mineral de coloração verde, sendo cortado em pequenos pedaços para serem submetidos a um banho de água régia fraca para eliminar as impurezas tais como ferro, retidas nos planos de clivagem; após 12 horas de imersão, os cristais são lavados em água corrente. Cada pedaço, por ser composto de policristais, retém em seu interior uma certa quantidade de água, que é eliminada por meio de um tratamento térmico de $400^\circ\text{C}/1\text{ h}$ ⁽¹³⁾. Também seleciona-se o pó de CaF_2 natural entre 85 e 185 microns, e então procede-se a um novo tratamento térmico de $600^\circ\text{C}/20\text{ min}$ sem que se perca a sensibilidade termoluminescente da amostra⁽²⁾.

Por meio de análise por ativação neutrônica em uma pequena quantidade de amostra, selecionada ao acaso, determina-se as seguintes impurezas no fluoreto de cálcio natural: manganês, alumínio e magnésio⁽¹³⁾. Nessa análise não foram incluídas as terras raras.

As perdas de grande quantidade de material quando usado na forma de pó, bem como a maior facilidade de se obter uma distribuição homogênea e reprodutiva para misturas de materiais, conduziram à opção de se trabalhar com pequenos discos prensados a frio, sendo ainda mantidas as características termoluminescentes essenciais dos fósforos em questão.

Na confecção dos discos empregou-se duas prensas de características diferentes. Em uma primeira fase de trabalho, a prensa é mecânica da Caver Laboratory com um molde de aço inox de 13 mm de diâmetro, compactando uma amostra de cada vez, com carga opcional variando até um máximo de 25.000 libras, sendo no caso mantida fixa em 20.000 libras por um período de 3 min. A outra, correspondendo a uma segunda fase, é hidráulica, pressão fixa de 1.200 libras por polegada quadrada, com um molde apropriado para a fabricação simultânea de nove discos de 10 mm de diâmetro, sendo que também manteve-se a pressão constante por 3 min em cada prensagem. As amostras serão especificadas pelo seu diâmetro característico.

Ambos os fósforos apresentam pouca plasticidade e quando compactados nas condições especificadas tornam-se quebradiços. Portanto, é necessário acrescentar-se outro componente que funciona como aglutinante dos discos. O material escolhido foi o KBr o qual entra para compor os discos nas mesmas condições de granulação que o fósforo. Após triturado e peneirado, o KBr devido à sua relativamente alta higroscopicidade, é guardado em uma estufa (Fanem Ltda) a aproximadamente 100°C para eliminar o alto teor de água absorvido durante o seu manuseio e, já na forma de disco composto, é guardado em um dessecador com sílica-gel. O KBr é fornecido pela Merck, 99,5% puro, para análise, apresentando Cl (0,1%); SO_4 (0,02%); BrO_3 (0,01%); N (0,001%); Pb (0,001%); Ba (0,002%); Na (0,02%); Fe (0,0005%) e Ca (0,01%).

Os discos apresentam uma massa total de 300 mg e 180 mg, para os de 13 mm e 10 mm de diâmetro, respectivamente. Estas quantidades, juntamente com pressão e tempo de prensagem, foram fixadas principalmente devido a testes de resistência mecânica baseados na possibilidade de serem usadas várias vezes sem perda de material e de sua forma.

A mistura do fósforo com KBr é sensível a nêutrons térmicos porque os raios beta (e/ou positrons) emitidos pelos núcleos ativados (antes de perderem a sua energia) provocam ionização em sua passagem, causando, como especificado anteriormente, excitação no material termoluminescente, com posterior emissão termicamente estimulada. Basicamente a sensibilidade para nêutrons térmicos, nesse caso, está relacionada com a relativamente alta seção de choque de ativação do ^{79}Br e ^{81}Br , isótopos naturais do Br, e que apresentam as características especificadas na Tabela II.1⁽⁷⁾.

Tabela II.1

Seções de Choque de Ativação para os Isótopos Naturais do Br, % Isotópica, Radioisótopo Produzido e Meias-Vidas dos Radioisótopos Produzidos

Br	% Isotópica	Isótopo produzido	Meia-Vida	σ_{ATIV} (barn)
^{79}Br	50,5	^{80}Br	18 min	$8,5 \pm 1,4$
		^{80m}Br	4,6 h	$2,9 \pm 0,5$
^{81}Br	49,5	^{81}Br	35,9 h	$3,3 \pm 0,4$

As amostras confeccionadas são novamente pesadas e aquelas cuja massa situa-se abaixo de 1% da massa total são rejeitadas. As restantes são guardadas em um dessecador que evita a absorção excessiva de água. Antes de serem usadas são tratadas termicamente a $400^{\circ}\text{C}/1\text{ h}$ a fim de eliminar efeitos tais como a termoluminescência provocada tanto durante o processo de prensagem ou manuseio da amostra (triboluminescência) quanto pela absorção de radiação ultravioleta. Imediatamente após o tratamento térmico os discos são resfriados rapidamente em uma placa de alumínio, mantendo uma idêntica configuração de defeitos na rede cristalina para todas as amostras. Por fim, as mesmas são seladas em papel preto, evitando interferência do efeito da luz.

II.2 – Sistemas de Medida de Emissão TL

O diagrama de blocos esquemáticos do equipamento para a medida quantitativa de emissão luminosa termicamente estimulada encontra-se na Figura 2.1. O sistema é composto principalmente de dois instrumentos: o modelo 2000 A, que contém o elemento aquecedor e o detector de fótons (válvula fotomultiplicadora) e o modelo 2000 B, que consta basicamente do eletrômetro e do integrador da corrente elétrica proveniente da conversão luminosa. Os resultados em cada medida são obtidos na forma de curva de emissão luminescente em função do tempo e/ou temperatura com o auxílio de registradores gráficos conectados com o modelo 2000 B.

A fonte de alta tensão, que fornece a potência para a fotomultiplicadora, pode ser ajustada continuamente entre 500 V e 1500 V.

A válvula fotomultiplicadora apresenta uma resposta do tipo S-11 (com sensibilidade relativamente alta na região espectral do visível) com uma corrente de fundo relativamente baixa devido à estabilidade de temperatura na mesma. Entre o fósforo e foto-cátodo é usado um filtro, que além de absorver a emissão infra-vermelha proveniente do aquecimento do porta-amostra (prancheta de aquecimento) e da própria amostra, seleciona o comprimento de onda desejável na região espectral de emissão TL do fósforo. A válvula fotomultiplicadora está localizada de forma que o elemento aquecedor e a amostra estão posicionados para a medida com a sua área útil recebendo a totalidade do feixe de fótons, após esse passar pelo filtro e por um sistema de lentes e colimadores.

A área útil da prancheta (liga metálica) apresenta um diâmetro da ordem de 13 mm e uma profundidade de aproximadamente 1 mm (espessura da amostra no caso). A prancheta está em contato

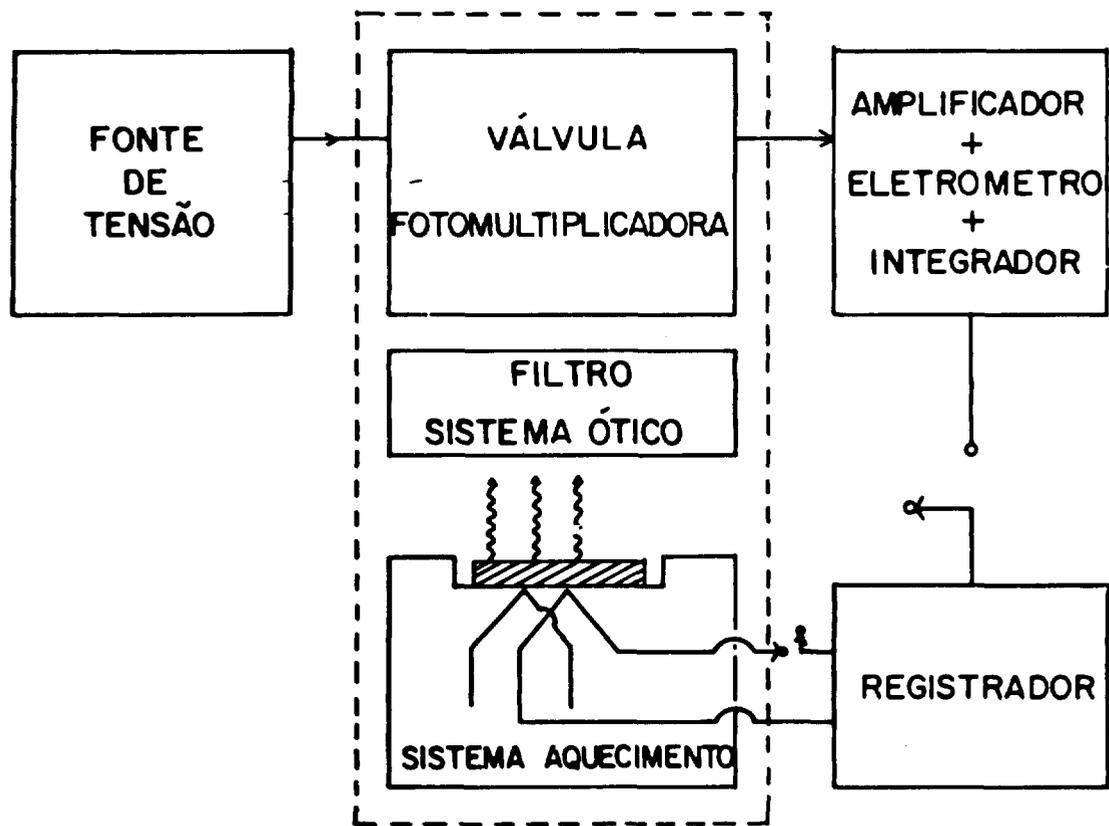


Figura 2.1 – Diagrama de Blocos Esquemático do Equipamento para a Medida Quantitativa da TL

com dois termo-pares de Cromel-Alumel: um deles é ligado diretamente a um registrador para se ter o perfil de aquecimento no intervalo de tempo em que é feita a medida, dessa maneira pode-se sempre conferir e confrontar as velocidades de aquecimento; o outro termopar é ligado ao próprio sistema de aquecimento e serve para assegurar que a temperatura da prancheta alcança o valor desejável através de uma comparação da força eletro-motriz gerada, com a voltagem de controle da potência de aquecimento. Escolhida uma velocidade de aquecimento, pode-se mantê-la aproximadamente constante para as medidas subsequentes.

A corrente da fotomultiplicadora é amplificada, medida e integrada em um intervalo de 10^{-13} A a 10^{-6} A, com mudança de escala automática ou manual.

Pelo que foi descrito, têm-se duas formas de comparar o efeito TL da amostra: pela corrente integrada durante o tempo de medida, e pela curva de emissão tomando-se como padrão de medida, por exemplo, a amplitude máxima de um dos picos.

Ao sistema descrito resta acrescentar as modificações que foram feitas nas duas etapas da experiência: na primeira delas não utilizou-se o sistema de aquecimento interno do modelo 2000 A, mas foi feita uma adaptação colocando-se um sistema externo controlado por um Variac, sendo a prancheta de aquecimento de Níquel-Cromo. O registrador (Varian, modelo G 2500) usado em intervalos de tempos regulares entre as medidas para certificar-se da reprodutibilidade da velocidade de aquecimento, também registra a curva de emissão, que foi usada como padrão de medida (sistema detector 1). Na segunda etapa da experiência, trocou-se os módulos 2000 A e 2000 B por outro conjunto semelhante com fotomultiplicadora de sensibilidade relativamente maior para amostras iguais expostas à mesma dose de radiação (sistema detector 2). Também não utiliza-se, como no caso anterior, o filtro de banda passante centrada em 400 nm (Oriel Optics Corporation) mas um filme que transmite na região entre 350 nm a 550 nm e 700 nm a 1000 nm. Nessa etapa, mantém-se o fluxo de 6 l/min de nitrogênio para evitar a rápida oxidação da prancheta e eliminar a termoluminescência espúria⁽⁹⁾. Nesse caso, embora utilizando-se o circuito de aquecimento do modelo 2000 A, foram feitas algumas modificações introduzindo-se resistências em paralelo. Assim, em vez de um único aquecimento linear durante um determinado intervalo de tempo, tem-se diferentes opções de velocidade de aquecimento e de pré-aquecimento. Essas resistências têm por função modificar a corrente que passa através da prancheta, mudando portanto o aquecimento produzido na mesma por efeito joule. As curvas de aquecimento nas duas etapas da experiência encontram-se na Figura 2.2, B e A para a primeira e segunda etapa, respectivamente.

11.3 – Tratamentos Térmicos

As amostras na forma de discos são tratadas termicamente a $400^{\circ}\text{C}/1$ h, sendo em seguida resfriadas rapidamente com o auxílio de placas de alumínio. Esse processo de resfriamento rápido se faz necessário para manter os defeitos da rede cristalina homoganeamente distribuídos. Por outro lado, o tratamento térmico pré-irradiação é feito com a finalidade de esvaziar as armadilhas previamente preenchidas por efeitos produzidos pela luz que, nas faixas espectrais do visível e do ultravioleta, podem excitar os portadores de carga normalmente presentes ou capturados em defeitos da rede, principalmente nas amostras de CaF_2 nat onde esses efeitos são maiores do que no $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ ⁽¹⁸⁾.

No entanto, também leva-se em conta o compromisso entre o esvaziamento das armadilhas mais profundas (as mesmas requerem temperatura mais alta) e as possíveis mudanças permanentes nas propriedades TL das amostras. O intervalo de tempo e a temperatura do tratamento térmico foram escolhidos com base em trabalhos anteriores⁽¹³⁾, os quais estudam os efeitos acima indicados.

As amostras são manuseadas com a menor exposição possível à luz ambiente, sendo guardadas em papel preto após o resfriamento. Esses cuidados são indispensáveis quando pretende-se irradiar as amostras com nêutrons, pois as mesmas são tratadas termicamente após a irradiação. Cada disco, antes

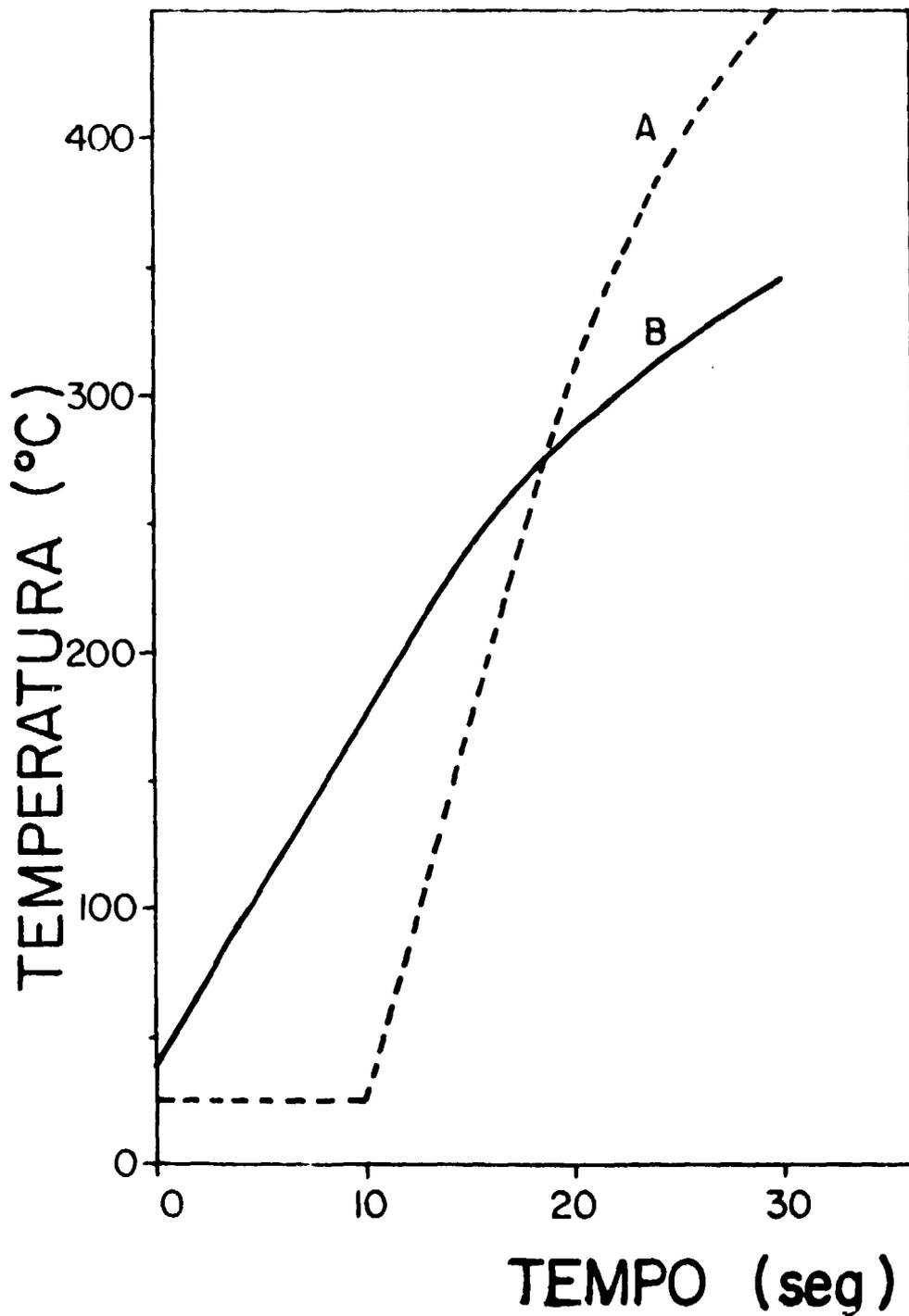


Figura 2.2 – Curvas de Aumento de Temperatura em Função do Tempo para Velocidades de Aquecimento Diferentes. (A) Sistema Detector 2. (B) Sistema Detector 1

de ser exposto a um fluxo neutrônico, é aquecido por 60 seg na própria prancheta de aquecimento do modelo 2000 A. Esse procedimento garante uma uniformidade de condição para as amostras irradiadas com nêutrons.

Ao irradiar-se com nêutrons, quer seja do reator ou da fonte de ^{252}Cf , além do efeito produzido pelo decaimento dos isótopos radioativos de meias-vidas curta e longa, tem-se também efeitos produzidos pela radiação gama presente no campo neutrônico. Dessa maneira, a finalidade do tratamento térmico pós-irradiação (entre 20 min e 50 min) após o término da irradiação) de $600^\circ\text{C}/30\text{ min}$ é de fornecer energia térmica suficiente para liberar os portadores de carga provenientes da ionização, que tenham sido armadilhados no intervalo de tempo entre irradiação e fim do tratamento térmico. Finalmente, os discos são mantidos em ambiente escuro em porta amostra de alumínio para manter sempre constante a influência do retro-espalhamento, quando então, após um período de vinte e quatro horas de auto-irradiação, é feita a medida. Esse período foi escolhido por corresponder a aproximadamente o tempo necessário para a saturação da atividade do ^{80}Br que possui meia vida de 4,6 h. Nessas condições, as amplitudes dos sinais TL são suficientemente altas para poder-se desprezar os efeitos da radiação de fundo durante o tempo de armazenamento.

11.4 – Fontes de Irradiação

As irradiações foram feitas com raios gama, R-X e nêutrons.

A TL devida a nêutrons termicos é obtida pelo método da diferença: as amostras são irradiadas aos pares, em condições idênticas sendo que uma é envolta em cádmio (1 mm de espessura).

Quando deseja-se medir, através de alguma propriedade característica de uma dada substância, os efeitos produzidos por nêutrons na região definida como térmica (energia abaixo de 0,4 eV), utiliza-se o método acima. Colocando-se uma folha de Cd entre o feixe e a amostra, 80% dos nêutrons com energia abaixo de 0,4 eV são absorvidos pelo Cd. O resultado procurado é o proveniente da diferença entre o obtido com a amostra sem e com o envoltório de Cd.

As exposições gama foram feitas com uma fonte isotópica de ^{60}Co de aproximadamente 37,16 mCi onde as amostras são colocadas atrás de placas de lucite de 5 mm de espessura em círculos concêntricos à fonte.

As irradiações com nêutrons deram-se no reator IEAR-1, e com nêutrons provenientes da fissão espontânea de uma fonte de ^{252}Cf de aproximadamente 400 μg .

O fluxo de nêutrons térmicos foi calibrado pela AFN, pelo método de ativação de folha de ^{197}Au envolta com Cd e sem Cd. As condições de irradiação foram idênticas àquelas feitas com as próprias amostras e os fluxos são de $1,65 \times 10^6 \text{ n.cm}^{-2}.\text{seg}^{-1}$, $6,66 \times 10^{11} \text{ n.cm}^{-2}.\text{seg}^{-1}$ e $5,00 \times 10^{12} \text{ n.cm}^{-2}.\text{seg}^{-1}$ para fonte de ^{252}Cf , Est-1 e Est-4, respectivamente.

Para se evitar influência da depressão local do fluxo ocasionada pela presença de um material com alta seção de choque de absorção para nêutrons térmicos (Cd), procurou-se primeiro confeccionar o envoltório com as dimensões aproximadamente iguais às da amostra. Além dessa precaução, tanto as amostras com envoltório de Cd quanto as sem Cd devem ser irradiadas com espaçamento adequado. A fim de se evitar o mútuo efeito de sombra no fluxo, esse espaçamento deve ser no mínimo o dobro do diâmetro das amostras. Devido à impossibilidade de manter-se a distância requerida, as amostras são irradiadas separadamente nas estações do reator, sendo enviadas em cápsulas de polietileno por meio de um tubo pneumático.

A fonte de ^{252}Cf encontra-se submersa em um tanque de água e pode ser retirada da blindagem para exposição por meio de um tubo de PVC, ainda dentro do tanque de água. O arranjo utilizado para

as irradiações com essa fonte (Figura 2.3) consiste de um porta amostra cilíndrico de lucite, que pode ser situado a diferentes distâncias da fonte. Nessa série de experiências, irradiou-se ao mesmo tempo 4 amostras suficientemente separadas para que se possa desprezar os efeitos de sombreamento de fluxo. A posição utilizada está localizada a 2,5 cm da fonte de ^{252}Cf quando totalmente exposta.

Para irradiações com R-X, utilizou-se o gerador Rigaku Denki de tubo gerador com janela de W operando à potência máxima de 2 KW.

III – RESULTADOS E CONCLUSÃO

As experiências descritas neste capítulo visam a obtenção de pastilhas dosimétricas (compostas de fósforo termoluminescente, agregante e ativador) e o estudo da possibilidade de utilizá-las como detectores de nêutrons na região de energia térmica. Tem-se o estado de equilíbrio térmico cuja velocidade mais provável do nêutron de $2.200 \text{ m}\cdot\text{seg}^{-1(3)}$ tomar-se-á como referência.

Para facilitar a exposição e discussão dos resultados obtidos, torna-se necessário uma sub-divisão dos mesmos em três partes:

- Preparação e estudo dos discos dosimétricos de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ e $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$, onde se estuda a otimização da proporção relativa dos componentes, as emissões TL dos componentes, e as dependências da intensidade de emissão TL com a pressão de confecção de discos dosimétricos e com a exposição à radiação incidente.
- Identificação das contribuições relativas dos isótopos na auto-irradiação, e
- detecção de nêutrons térmicos em campos mistos n-gama.

III.1 – Preparação e Estudos de Discos Dosimétricos de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ e de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$

a) Otimização da Proporção Relativa dos Componentes

A finalidade pretendida nesta fase inicial da experiência é a de padronizar a amostra para as medidas subsequentes; seleciona-se a proporção de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ compactada que tenha suficiente sensibilidade à radiação neutrônica e ao mesmo tempo boa resistência ao manuseio diário.

Uma série de experiências foi realizada para se determinar o efeito da adição de KBr no comportamento termoluminescente de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$. A Figura 3.1 mostra o resultado obtido para a amplitude do pico II do $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ em função da massa relativa de KBr para os discos ($\phi = 10 \text{ mm}$) confeccionados com $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$ sob a pressão de 1200 Lb/pol^2 , irradiadas com uma fonte de ^{60}Co , sendo expostas a 12,50 R.

Como se pode verificar, maior a proporção de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$, maior a emissão termicamente estimulada, visto que a sensibilidade termoluminescente do $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ é mais que 2 ordens de grandeza que a do KBr (Vide Figura 3.10).

Espera-se que o compromisso entre a massa de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ e massa de KBr para a compactação de pastilhas dosimétricas seja somente do ponto de vista da consistência mecânica. Considerando-se unicamente a dosimetria da radiação gama o KBr deve ser adicionado na quantidade mínima o possível para se ter uma resistência mecânica que permita o manuseio do dosímetro.

Um outro detalhe da Figura 3.1 é a estrutura apresentada entre 80 mg e 100 mg de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$.

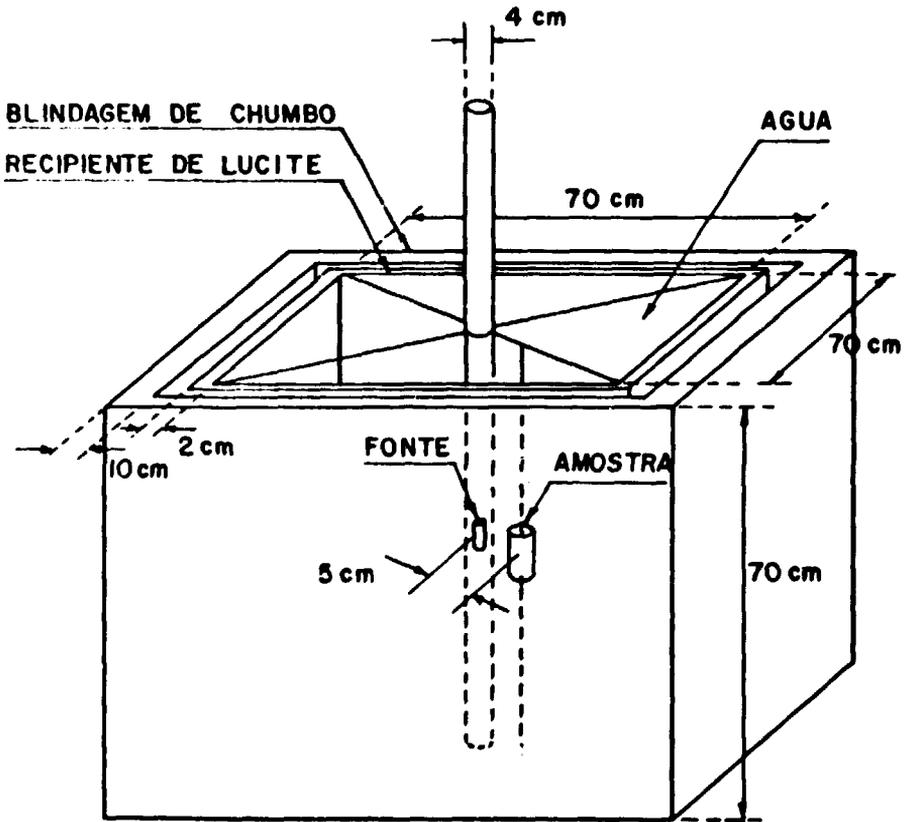


Figura 2.3 – Arranjo Experimental onde Observa-se a Fonte de ^{252}Cf Relativamente ao Porta Amostra

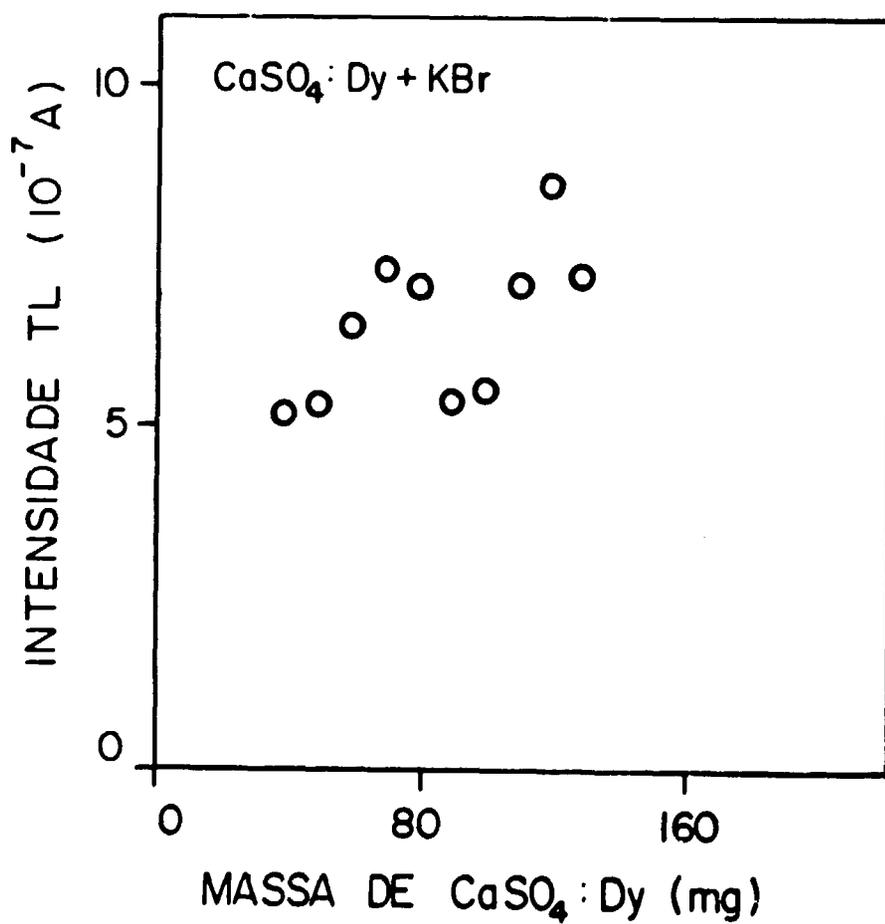


Figura 3.1 - Variação na Amplitude Máxima do Pico Termoluminescente II de Pastilhas de CaSO₄:Dy + KBr (Massa Total de Pastilha: 180 mg) com a Quantidade Relativa de CaSO₄:Dy na Mistura Exposição à Radiação Gama do ⁶⁰Co: 12,50R

Esse mesmo comportamento ocorre entre 180 mg e 260 mg de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ para amostras com espessura idêntica às anteriores mas com massa total de 300 mg ($\phi = 13$ mm), como pode ser visto na Figura 3.2.

Considerando-se o efeito de auto-absorção de fótons e a igualdade da espessura das amostras de diferentes diâmetros, os pontos de máximo da curva de emissão termoluminescente em função da quantidade relativa de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$, deveriam ocorrer para uma mesma proporção relativa de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ independente do diâmetro das amostras. No entanto, para amostras de massa total de 300 mg os pontos de máximo não estão localizados em uma mesma proporção de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ que nas amostras de massa total de 180 mg, mas para uma proporção relativamente menor. Esses resultados foram confirmados em várias experiências sistemáticas. Uma explicação é a possibilidade de ocorrer o envolvimento de algum tipo de reação química entre os componentes dessa pastilha, sob a presença de vapor d'água, favorecida pelos tratamentos térmicos (400°C), uma vez que para amostras de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ tal comportamento não é observado. O produto resultante dessa suposta reação química, inibiria a termoluminescência através de absorção de fótons a partir de uma determinada concentração de KBr, aliada à opacidade da amostra. Então, surgiria o primeiro pico da intensidade termoluminescente em função das proporções relativas de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ e de KBr na amostra, até que a quantidade de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ seria suficientemente alta, quando então esse efeito deixaria de ser importante e teria-se o segundo pico, ocasionado por efeitos de absorção devido à relativamente alta opacidade dos discos. Conclui-se então que o KBr nessas pastilhas comporta-se não só como um componente responsável pela resistência mecânica como também pela variação na opacidade.

O mesmo procedimento experimental foi realizado para $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$. Os resultados são mostrados na Figura 3.3, onde tem-se a amplitude máxima do pico III para diferentes proporções de CaF_2nat (massa total dos discos de 180 mg). A exposição à radiação gama para cada uma das amostras foi mantida constante (12,5 R).

Verifica-se que para o intervalo entre 40 mg e 130 mg de CaF_2nat , a emissão termoluminescente aumenta linearmente com a quantidade total de CaF_2nat .

Medidas semelhantes com amostras idênticas, apresentam uma flutuação de até 30%. Existem várias explicações para essa flutuação: i) diferenças na velocidade de aquecimento de medida para medida; ii) diferenças no posicionamento das amostras em relação à fonte de radiação gama; e iii) não uniformidade na compactação das amostras (essa não uniformidade pode ser verificada visualmente).

A forma da curva de emissão é pouco alterada pela mudança na velocidade de aquecimento mas ela é deslocada para mais altas temperaturas, quando a velocidade de aquecimento aumenta. Isto foi verificado experimentalmente e encontra-se na Figura 3.4.

Constata-se que as medidas feitas na primeira fase de experiências (sistema detector 1) apresentam a velocidade de aquecimento de $7^\circ\text{C}.\text{seg}^{-1}$ e $9^\circ\text{C}.\text{seg}^{-1}$ para a posição máxima dos picos dosimétricos de pastilhas de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ e de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$, respectivamente. As temperaturas máximas (T_m) correspondentes à posição da amplitude máxima destes picos é de 290°C e de 242°C para amostras de menor diâmetro ($\phi = 10$ mm). Ainda na mesma figura tem-se para as amostras idênticas, na segunda fase de experiência (sistema detector 2), que aumentando-se as velocidades de aquecimento para $16^\circ\text{C}.\text{seg}^{-1}$ e $19^\circ\text{C}.\text{seg}^{-1}$, respectivamente para discos de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ e $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$, as temperaturas máximas (T_m) aumentam, respectivamente, para 403°C e 343°C . Também pode-se ressaltar nesta figura que o pico I das amostras de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ não aparece nas medidas realizadas com o sistema detector 2 devido à rápida velocidade de aquecimento.

Uma série de medidas consecutivas de emissão TL foi realizada a fim de se determinar possíveis variações nas condições experimentais (velocidade de aquecimento, por exemplo). A máxima variação detectada foi de 5% na temperatura, que pode acarretar variações de amplitude de até 30%, que está de acordo com os resultados obtidos (Vide Figura 3.3).

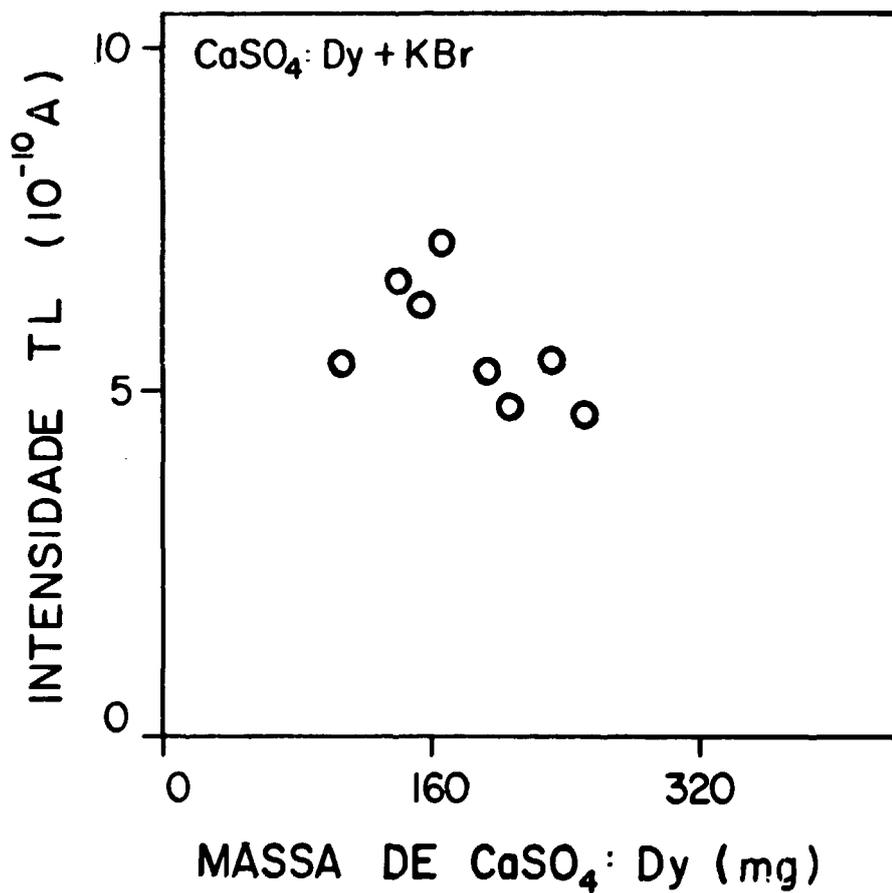


Figura 3.2 - Variação da Amplitude Máxima do Pico Termoluminescente II de Pastilhas de CaSO₄:Dy + KBr (Massa Total da Pastilha: 300 mg) com a Porcentagem de Agregante (KBr) na Mistura; Exposição à Radiação Gama do ⁶⁰Co: 3,15R

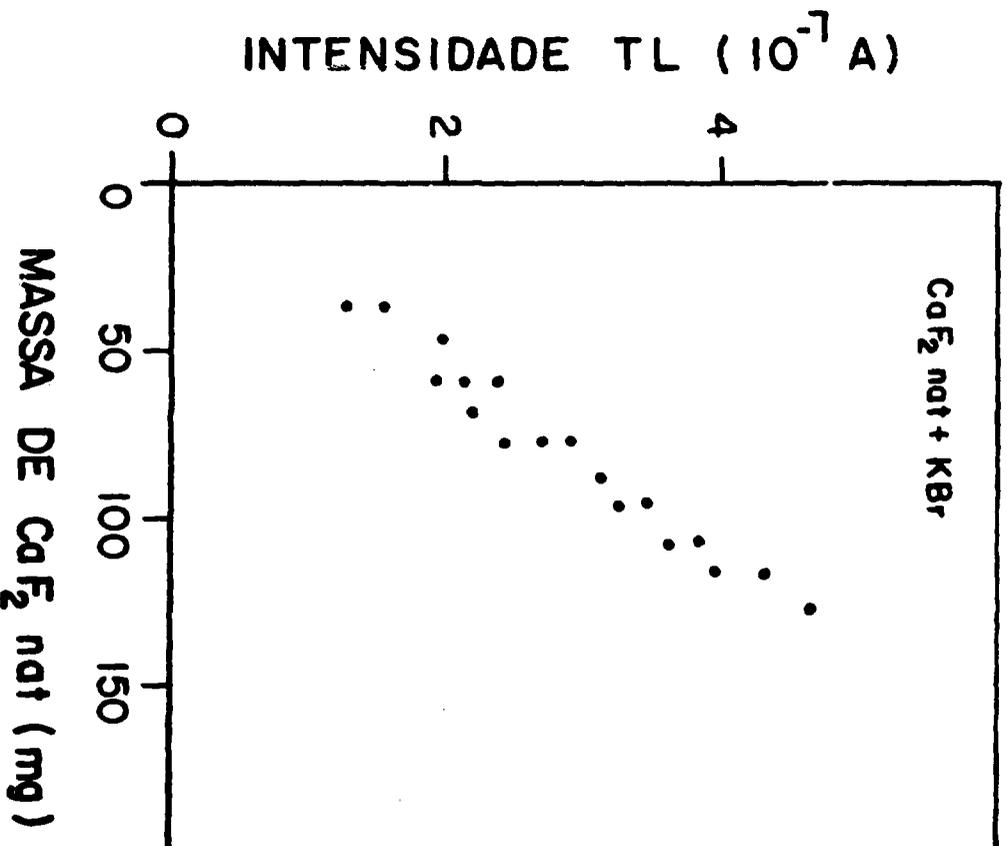


Figura 3.3 - Amplitude Máxima do Sinal Termoluminescente do Pico III de Pastilhas de CaF_2 net + KBr (Massa Total: 180 mg) em Função da Porcentagem de CaF_2 net na Mistura; Exposto à Radiação Gamma do ^{60}Co : 12,5R

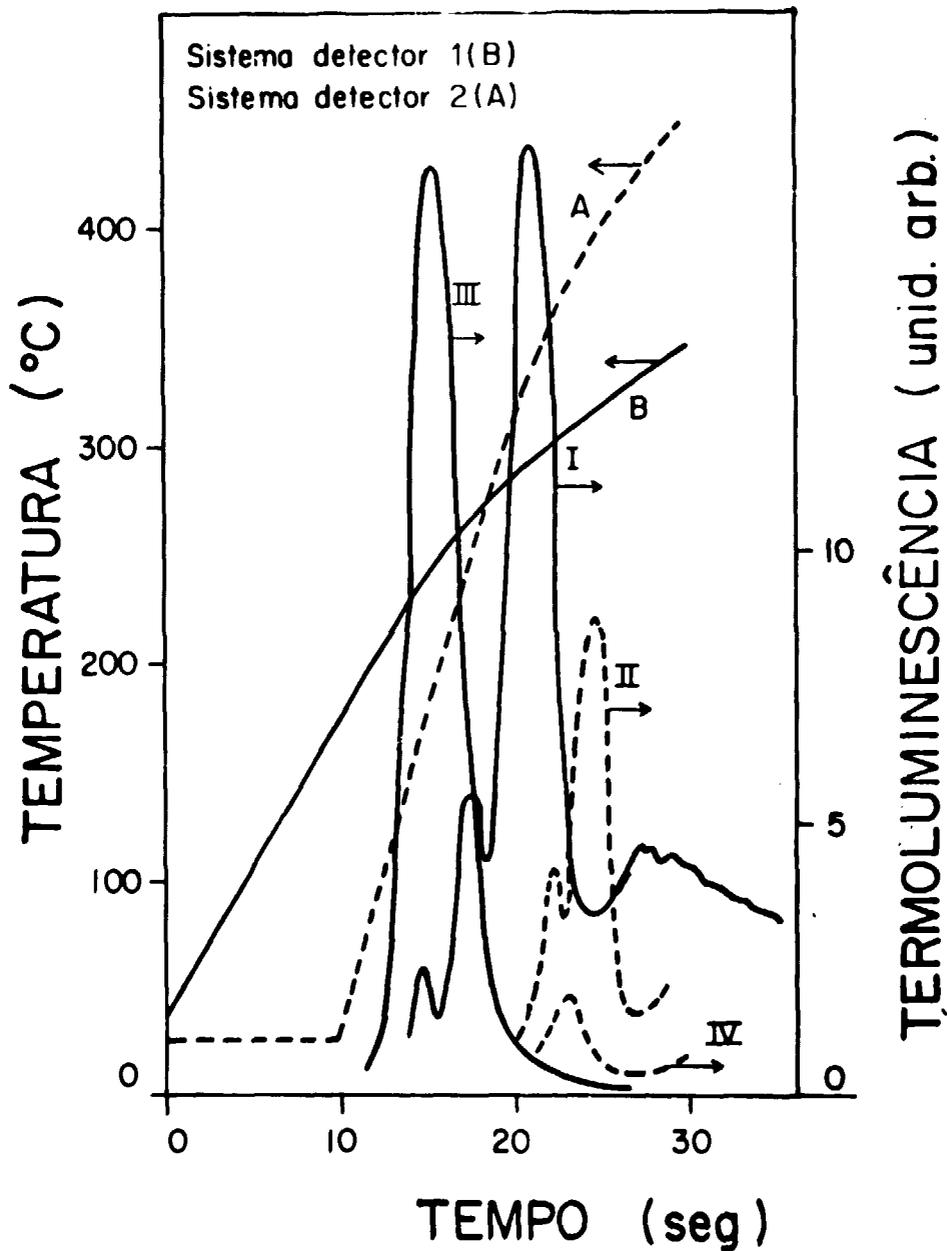


Figura 3.4 - Curvas de Emissão Termoluminescente de Amostras de $\text{CaF}_2 \cdot \text{nat} + \text{KBr}$ (I e II) e de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{KBr}$ (III e IV) para Medidas Realizadas no Sistema Detector 1 e 2 com Velocidades de Aquecimento B e A, Respectivamente

O aumento do sinal termoluminescente com a quantidade relativa de CaF_2nat indica que efeitos de auto-absorção de fótons pela amostra podem ser desprezados para pastilhas de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ ($\phi = 10 \text{ mm}$) nas proporções utilizadas.

O mesmo procedimento experimental foi repetido para pastilhas com massa total de 300 mg ($\phi = 13 \text{ mm}$) e espessura de aproximadamente 1 mm. Os resultados são mostrados na Figura 3.5.

A estrutura da curva demonstra que a amplitude do sinal TL não depende linearmente da quantidade relativa de fósforo. Esse efeito está relacionado com a alta pressão aplicada nesses discos (1200 Lb/pol^2) que reduz a sensibilidade TL do CaF_2nat , acentuando-se essa redução para amostras com maior quantidade do fósforo TL.

O estudo da variação na amplitude máxima dos picos termoluminescentes para amostras compactadas é, do ponto de vista de detecção de nêutrons, a análise da competição entre os radioisótopos formados (^{80}Br e ^{82}Br) e a sensibilidade termoluminescente dos fósforos nas amostras.

Na Figura 3.6 tem-se os resultados obtidos para as amostras compactadas de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ de diferentes proporções, quando irradiadas com nêutrons do reator IEAR-1 (fluência térmica da ordem de $10^{13} \text{ n.cm}^{-2}$).

Observa-se que tanto a amplitude máxima do pico II quanto a do pico III tem comportamentos semelhantes. A proporção otimizada corresponde àquela com massa de 100 mg de CaF_2nat e 80 mg de KBr.

A emissão termoluminescente de amostras irradiadas com nêutrons não depende nesse caso somente da quantidade relativa do fósforo, mas também da massa do elemento com uma relativamente alta seção de choque de ativação para nêutrons térmicos. O ativador KBr apresenta isótopos com seção de choque de ativação relativamente alta para nêutrons térmicos: ^{79}Br e ^{81}Br .

A atividade induzida, através das partículas betas emitidas, atua como agente excitador e é a responsável pelo armadilhamento dos portadores de carga.

Considerando o pico III para amostras de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ observa-se que qualquer uma das amostras, após terem sido submetidas a um feixe da ordem de $10^{11} \text{ n.cm}^{-2}.\text{seg}^{-1}$, apresentarem sensibilidade adequada para serem consideradas como padrões de medida. A estrutura da curva obtida indica que existe uma tendência de se obter um ponto de máxima sensibilidade com o aumento da quantidade relativa de CaF_2nat (apresenta sensibilidade TL muito maior do que a do KBr; Vide Figura 3.10).

Esse resultado mostra que se atinge um compromisso entre as quantidades relativas otimizadas de substância termoluminescente e de ativador.

O espalhamento nos resultados obtidos com amostras de 75 mg e de 180 mg de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ indica que a perda de transparência espectral, para maior quantidade de CaF_2nat relativamente à KBr, começa a influenciar os resultados obtidos quando a irradiação é feita com nêutrons.

O aumento da quantidade do fósforo (CaF_2nat) acarreta um aumento na emissão termoluminescente da pastilha. Como existe um compromisso entre a sensibilidade TL do fósforo e a dose de radiação devida aos isótopos do Br, atinge-se um ponto de saturação da amplitude do sinal TL. Daí em diante o sinal TL começa a diminuir até que a quantidade de fósforo seja relativamente alta, tal que haja um aumento considerável na probabilidade de armadilhamento de portadores de carga. Isso é suficiente para compensar a muito menor atividade do Br nas amostras compactadas com quantidade relativamente menor de KBr.

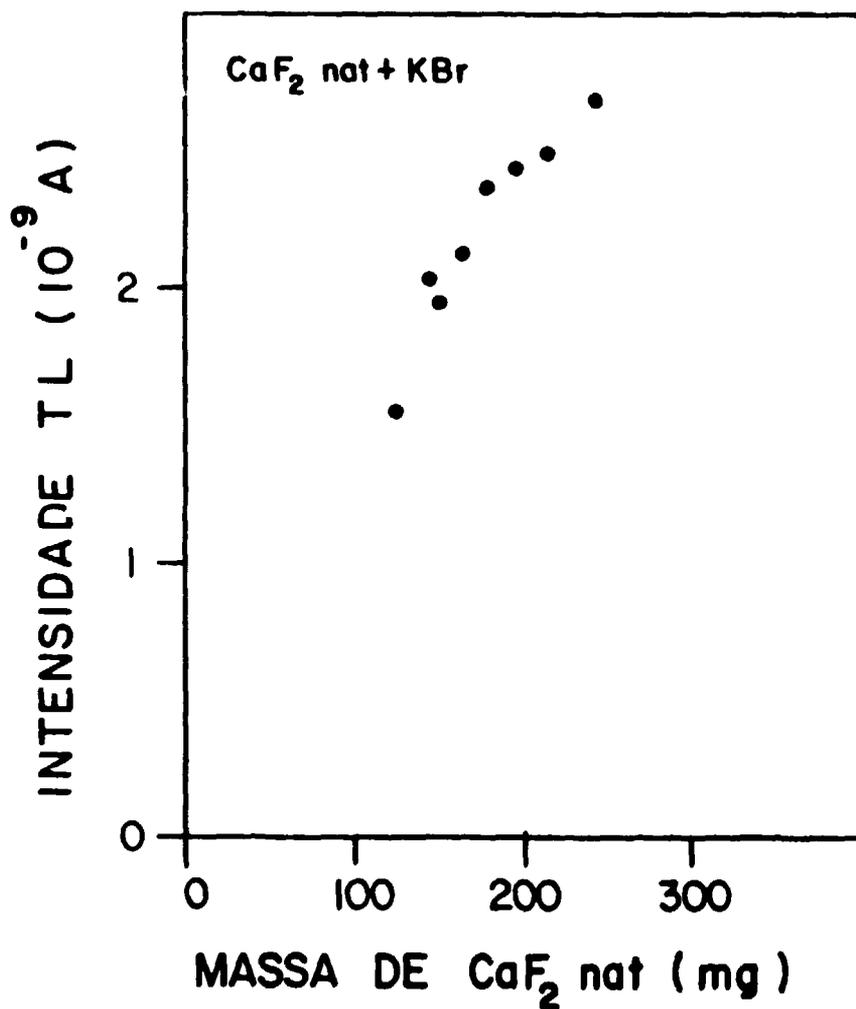


Figura 3.5 - Amplitude Máxima do Sinal Termoluminescente para o Pico III de CaF₂ nat na Mistura (Massa Total: 300 mg); Exposição à Radiação Gama do ⁶⁰Co: 3,15R

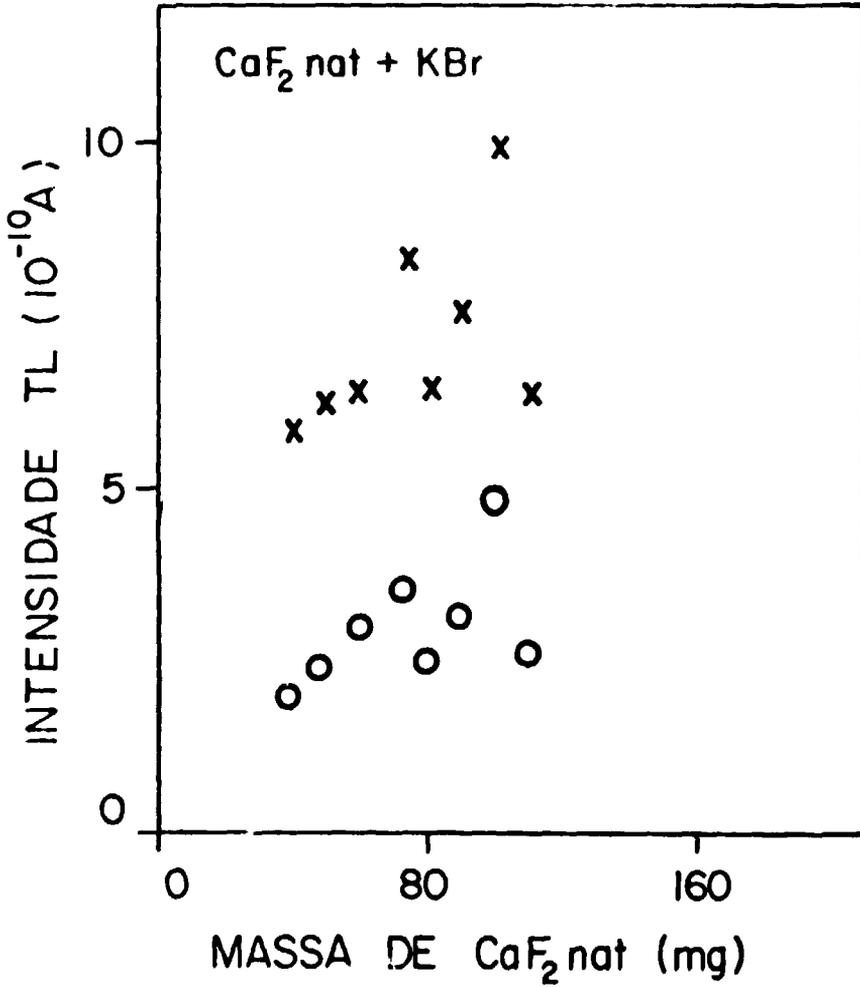


Figura 3.6 - Amplitude Máxima do Pico II(O) e III(x) para Diferentes Proporções de $\text{CaF}_2 \text{ nat}$ em Amostras de $\text{CaF}_2 \text{ nat} + \text{KBr}$ Prensadas a Frio (Massa Total da Pastilha: 180 mg); Tempo de Irradiação na Est 1 do Reator IEAR-1: 20 seg; Fluxo Térmico: $6,66 \times 10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ seg}^{-1}$

Esse efeito também verifica-se ao irradiar-se, nas mesmas condições, amostras de massa total de 300 mg compactadas com proporções idênticas das mesmas substâncias citadas acima.

A curva da Figura 3.7 é semelhante à obtida para discos de menor diâmetro. A proporção otimizada dos discos de maior diâmetro é de 140 mg de CaF_2nat . Esta proporção otimizada está localizada na primeira parte da curva cuja tangente é nula, ao contrário do que ocorre para os discos de menor diâmetro cuja intensidade de emissão TL máxima corresponde a proporção de CaF_2nat responsável pela última parte da curva cuja tangente é nula. Isso vem confirmar uma vez mais a influência da pressão relativamente alta (1200 Lb/pol^2) com que foram compactados os discos de maior diâmetro. Esta influência é considerável pois reduz a sensibilidade TL do CaF_2nat . Quanto maior a quantidade de CaF_2nat nas pastilhas, mais marcante será a redução da sensibilidade TL das pastilhas. Esta é a razão porque a emissão TL ocorre para uma menor proporção de CaF_2nat para os discos de maior diâmetro do que ocorre para os discos menores.

Experiências idênticas foram realizadas para diferentes proporções relativas de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ e de KBr (Figura 3.8). Também obtém-se a tendência de ao aumentar-se a quantidade relativa do fósforo termoluminescente ($\text{CaSO}_4:\text{Dy}$), alcançar-se uma maior sensibilidade. Em relação ao mesmo estudo com amostras de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$, os dois pontos de máximo da intensidade TL em função da quantidade relativa do fósforo não são visualizados. Esse fato provavelmente ocorreria se fossem realizadas experiências para proporções com maior quantidade relativa de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$. As amostras com massa total de 300 mg ($\phi = 13 \text{ mm}$) também foram analisadas (Figura 3.9). O resultado concorda com o já feito para as mesmas proporções de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$, indicando que para discos dos dois tipos de fósforos TL de diferentes diâmetros existe um compromisso entre auto-irradiação e sensibilidade TL.

b) Emissões TL dos Componentes

Medidas visando estudar a sensibilidade termoluminescente relativa dos componentes das pastilhas foram feitas através dos seguintes passos: i) preparou-se amostras na forma de pó das três substâncias existentes nas pastilhas, em igual quantidade à existente nos discos otimizados, submetendo-as aos devidos tratamentos térmicos; ii) cada uma foi exposta à radiação X (20 KV, 2 mA, 20 seg); iii) após 5 min. do início da irradiação procedeu-se à medida da emissão TL. A curva de emissão obtida para cada um dos componentes encontra-se na Figura 3.10. Os três picos que são detectados para o KBr apresentam uma sensibilidade termoluminescente de 2 a 3 ordens de grandeza menor do que as devidas ao CaF_2nat e ao $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$, respectivamente. Para o CaF_2nat , os dois primeiros picos aparecem sobrepostos devido à velocidade de aquecimento utilizada. Foram feitas medidas de amostras irradiadas nas mesmas condições, algumas horas após o início da irradiação. O pico I para o CaF_2nat decresce sensivelmente em relação ao das amostras submetidas a uma mesma dose de radiação, mas que são medidas imediatamente após o término da irradiação.

Um terceiro pico de emissão identificado nas medidas com CaF_2nat tem sua amplitude máxima posicionada em aproximadamente 400°C . A amplitude máxima do pico III foi escolhida como padrão de medida, devido à sua maior estabilidade em relação aos outros, muito embora o primeiro pico de emissão seja preenchido preferencialmente em relação ao terceiro. No entanto, devido à sua relativamente baixa temperatura de máximo, algumas horas após a irradiação quase não é mais detectável.

Para o $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ identifica-se um único pico de emissão, com uma temperatura máxima de 367°C . Em outras medidas obteve-se para esse mesmo material um outro pico, com amplitude máxima a uma temperatura mais baixa, razão pela qual o pico de 367°C é denominado pico II.

A análise das temperaturas e das intensidades termoluminescentes para cada um dos picos de emissão das três substâncias revela a possibilidade de utilizar-se as misturas $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ e $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$. Isto significa que os picos do KBr do ponto de vista unicamente da influência de emissão termicamente estimulada não acarretará mudanças sensíveis no sinal TL das misturas utilizadas.

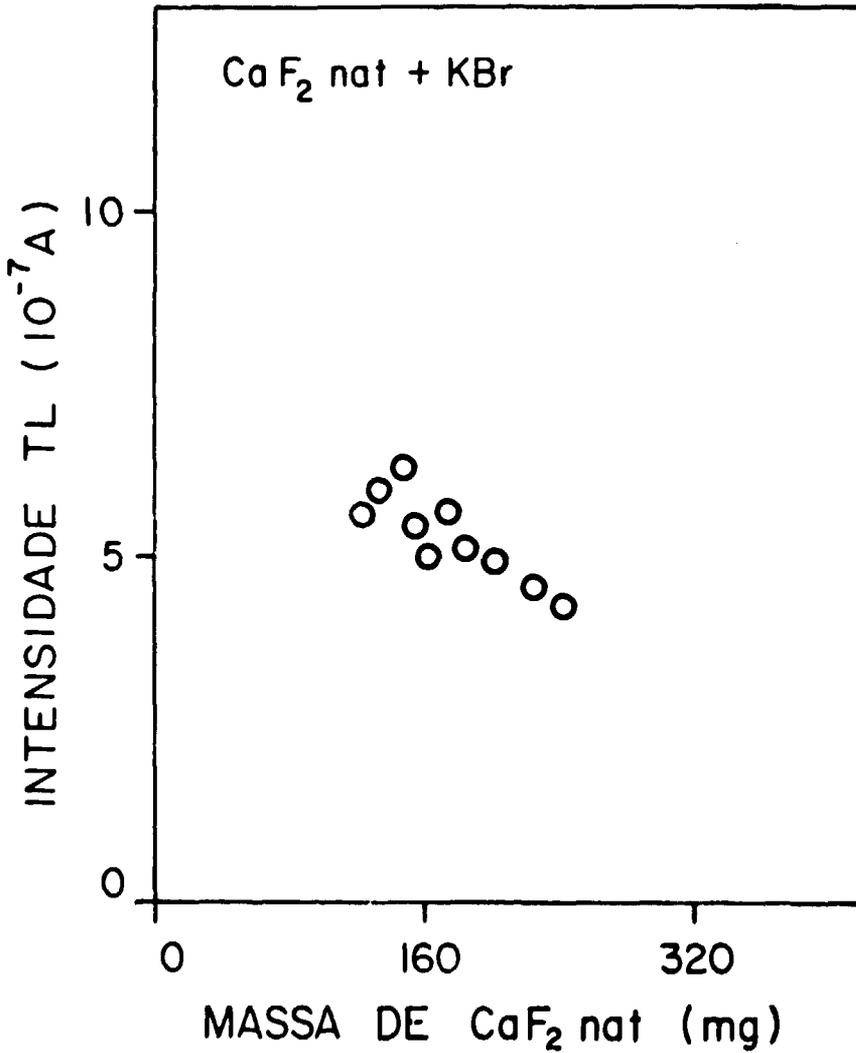


Figura 3.7 – Amplitude Máxima do Pico III para Diferentes Proporções de CaF₂ nat + KBr Prensadas a Frio (Massa Total das Pastilhas: 300 mg); Tempo de Irradiação na Est-1 do Reator IEAR-1: 20 seg; Fluxo Térmico: $6,66 \times 10^{11} \text{ n.cm}^{-2}.\text{seg}^{-1}$

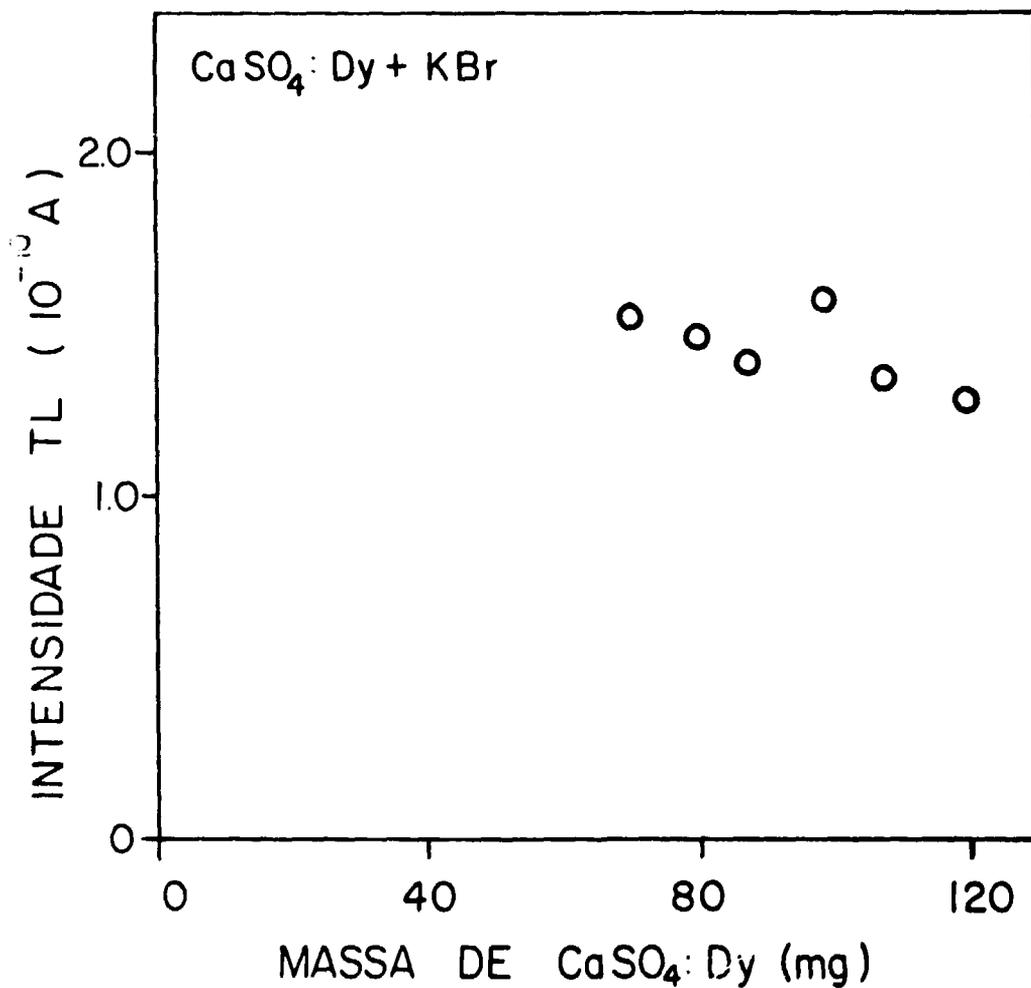


Figura 3.8 - Amplitude Máxima do Pico II para Amostras de Diferentes Proporções de CaSO₄:Dy + KBr Compactadas a Frio (Massa Total das Pastilhas: 180 mg); Tempo de Irradiação na Est-1 do Reator iEAR-1: 20 seg. Fluxo Térmico: $6,66 \times 10^{11} \text{ n.cm}^{-2}.\text{seg}^{-1}$

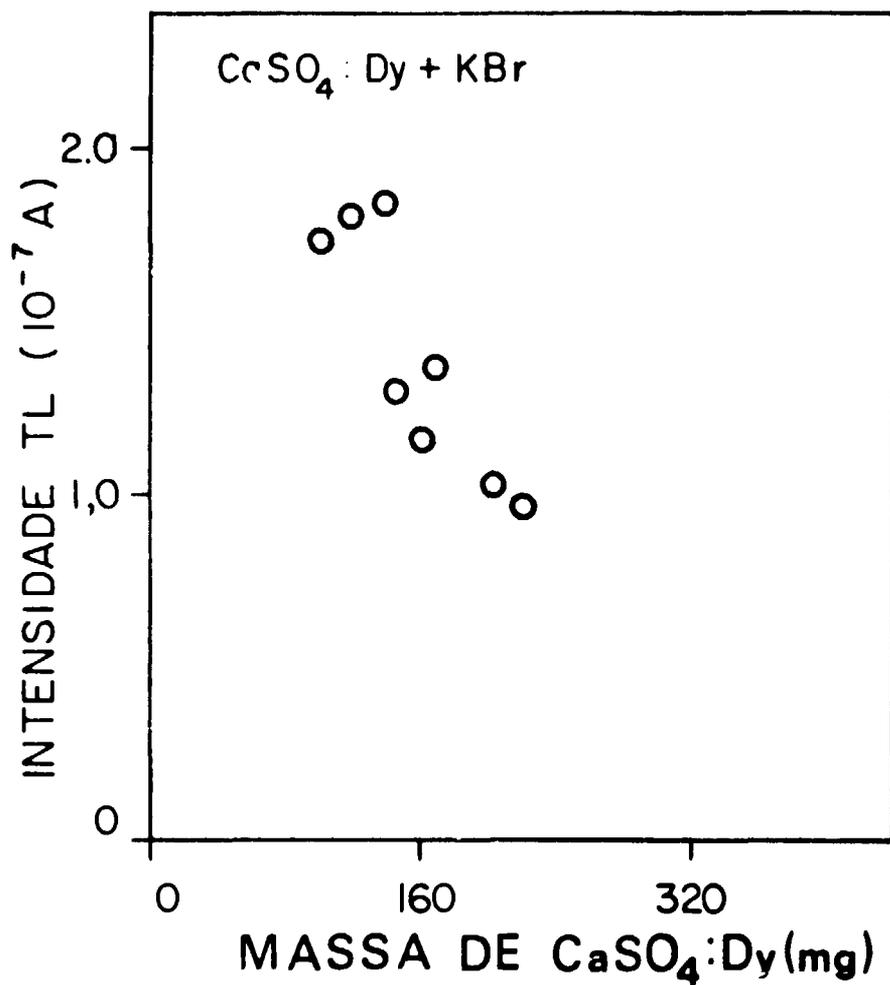


Figura 3.9 – Amplitude Máxima do Pico II para Amostras de Diferentes Proporções de CaSO₄:Dy + KBr Compactados a Frio (Massa Total das Pastilhas: 300 mg); Tempo de Irradiação na Est-1 do Reator IEAR-1: 20 seg. Fluxo Térmico: $6,66 \times 10^{11} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{seg}^{-1}$

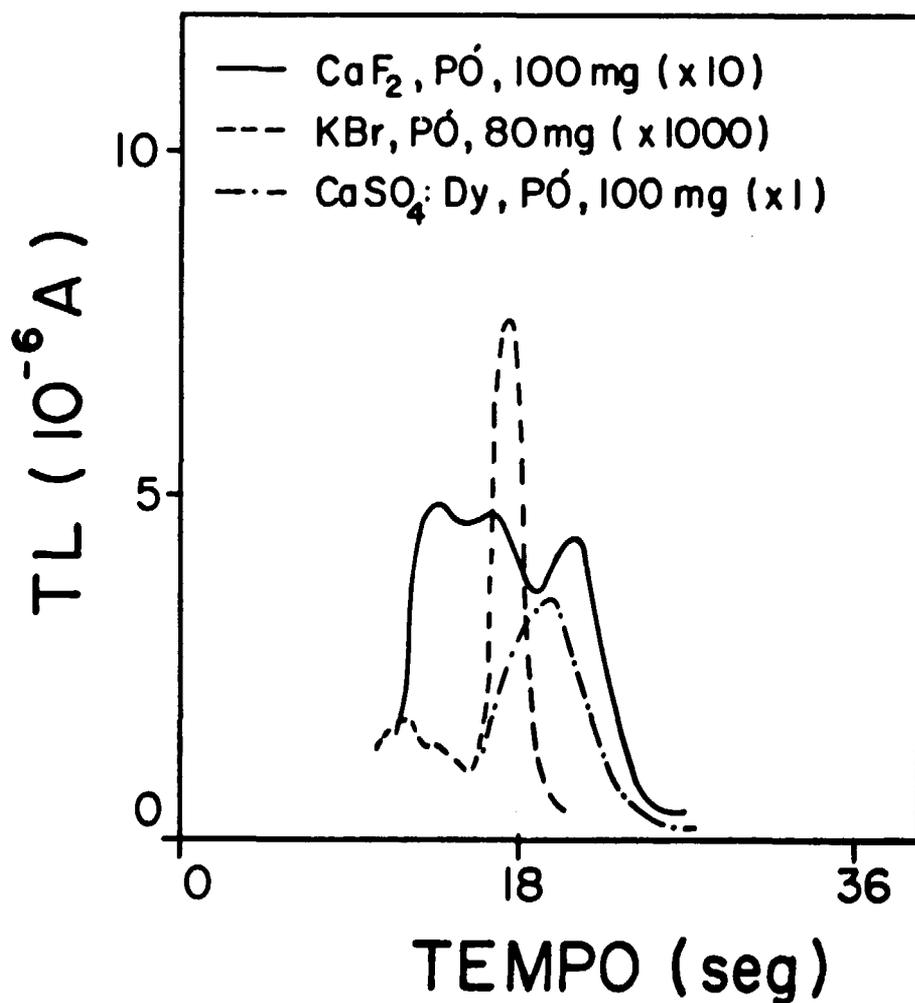


Figura 3.10 – Curva de Emissão Termoluminescente dos Componentes em Pó das Pastilhas Otimizadas. 100 mg de CaSO_4 :Dy (—); 100 mg de CaF_2 nat (—); 80 mg de KBr (— —). Condições de Operação do R-X: 20K V e 2 mA. Tempo de Irradiação: 20 seg

Finalmente, da análise dos resultados obtidos para CaF_2nat e $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$, observa-se que sem a influência dos mecanismos de deformação (pressão) o $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ é o mais sensível dos fósforos utilizados.

c) Dependência da Intensidade da Emissão TL com a Pressão de Confeção dos Discos Dosimétricos

Os mesmos picos termoluminescentes observados para amostras na forma de pó de CaF_2nat também ocorrem para as pastilhas compactadas de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$. Nestas amostras compactadas, não identifica-se nenhum dos picos de KBr porque sua intensidade é muito menor que a do CaF_2nat . Para amostras em pó, a intensidade termoluminescente dos picos do KBr são da ordem de cem vezes menores do que a intensidade termoluminescente dos picos de CaF_2nat (Vide Figura 3.10).

A forma da curva de emissão TL de amostras em pó de CaF_2nat e de pastilhas compactadas de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ é a mesma. No entanto, as temperaturas em que ocorrem as amplitudes máximas de cada um dos três picos são diferentes. Para amostras compactadas ocorre um deslocamento para temperaturas um pouco mais altas (Vide Figuras 3.10 e 3.11). Este efeito está provavelmente relacionado com a diferença nas propriedades das amostras compactadas de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ em relação à de CaF_2nat na forma de pó. Os discos apresentam uma composição de duas substâncias com condutividades térmicas diferentes, implicando num diferente gradiente térmico.

Para os discos de maior diâmetro, devido ao seu conteúdo de KBr relativamente maior (160 KBr e 140 CaF_2), o deslocamento das temperaturas máximas de cada pico ainda é maior do que para discos de menor diâmetro. Esse deslocamento para mais altas temperaturas está de acordo com a diferença em condutividade térmica entre o KBr e o CaF_2nat ou seja: i) a distribuição da temperatura nos diversos pontos da amostra não é isotrópica; ii) quando a face da amostra que está em contacto com a prancheta de aquecimento atinge a temperatura máxima (T_m) responsável pelo aparecimento de um determinado pico, a outra face ainda se encontra a uma temperatura $T < T_m$; quando a parte de cima da amostra alcança a temperatura T_m , a amostra e a prancheta tem uma temperatura média maior do que T_m . Tem-se ainda que levar em conta que a sensibilidade termoluminescente, para uma mesma dose de radiação X, de discos submetidos a diferentes pressões, é menor, maior é a pressão.

A pressão relativamente alta com que foram confeccionados os discos de maior diâmetro, afetaram de forma mais acentuada a sensibilidade termoluminescente do $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ do que a dos discos de menor diâmetro, que foram submetidos a uma pressão relativamente menor do que os primeiros. Essa é a razão pela qual as amostras de menor diâmetro são as mais sensíveis a uma mesma dose de radiação do que os discos grandes, quando as medidas são efetuadas nas mesmas condições.

Um estudo idêntico do comportamento termoluminescente de discos compactados de dois tamanhos diferentes foi feito para amostras de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$, irradiando-as por 20 seg com R-X e fazendo-se a medidas 5 min. após o início da irradiação.

Os mesmos efeitos já mencionados, para amostras compactadas de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ também ocorreram no caso de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$ (Figura 3.12). O resultado pode ser sumarizado: i) amostras com maior diâmetro apresentam um menor sinal termoluminescente para uma mesma dose de radiação do que aquelas de diâmetro relativamente menor. Isso é explicado pela maior redução na sensibilidade de amostras de maior diâmetro ocasionados pela relativamente alta pressão a que foram submetidos; ii) o deslocamento para mais altas temperaturas obtido para a máxima amplitude do pico deve-se ao fato de nas amostras compactadas estarem misturados dois componentes com propriedades diferentes, principalmente suas condutividades térmicas.

Como existe uma analogia entre coloração e luminescência, é natural esperar-se que após o término da medida termoluminescente, a amostra voltasse à sua cor natural (branca). Isto significa que a

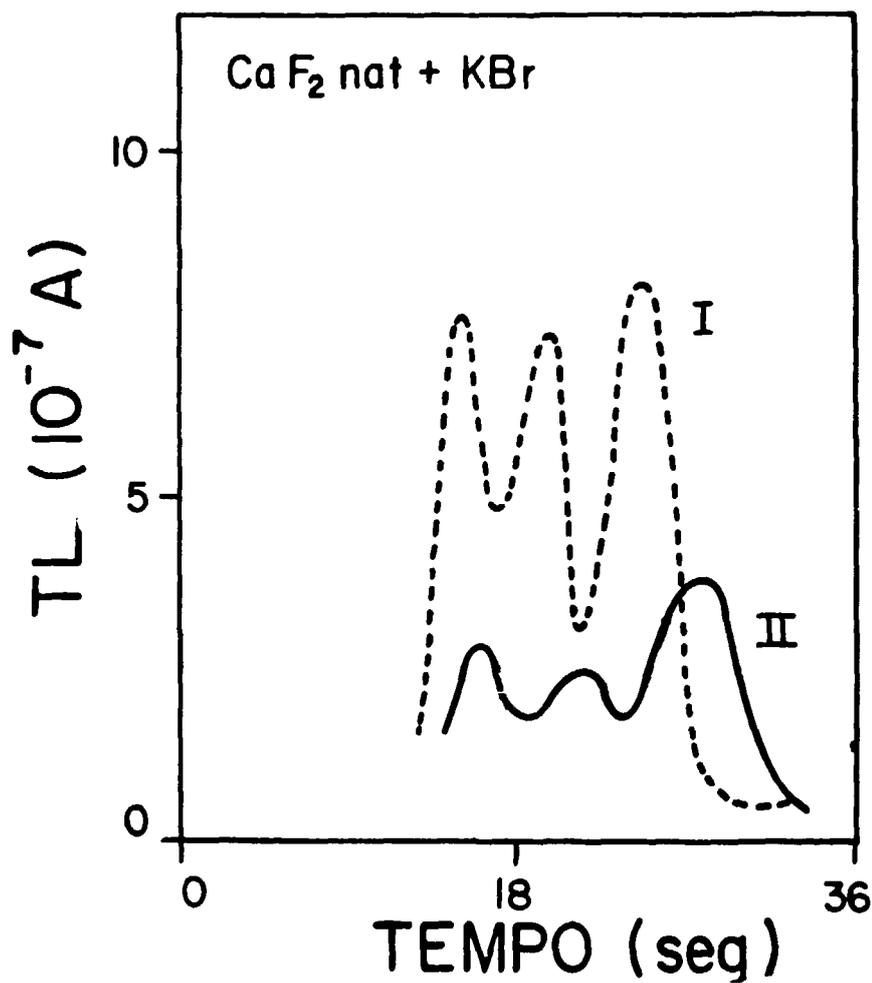


Figura 3.11 - Comparação da Sensibilidade Termoluminescente de Amostras de Diferentes Diâmetros. (I) Amostra Compactada de CaF₂ nat + KBr com $\phi = 10$ mm. (II) Amostra Compactada de CaF₂ nat + KBr com $\phi = 13$ mm. Condições de Operação do Raio-X: 20KV e 2mA; Tempo de Irradiação: 20 seg

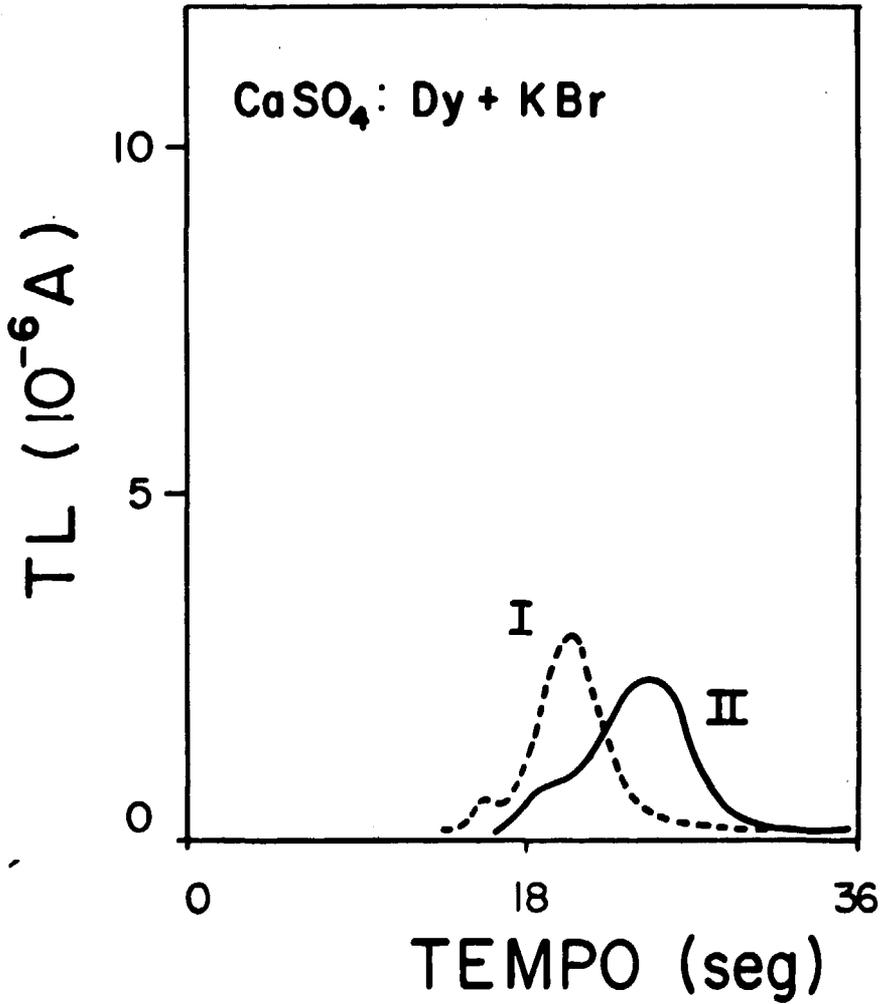


Figura 3.12 – Comparação de Sensibilidade Termoluminescente para Amostras de Diferentes Diâmetros. (I) Amostra Compactada de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$ com $\phi = 10 \text{ mm}$. (II) Amostra Compactada de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$ com $\phi = 13 \text{ mm}$. Condição de Operação do Raio-X: 20 KV e 2mA; Tempo de Irradiação: 20 seg

amostra ao ser aquecida perderia a sua cor levemente azulada, adquirida devido à produção de defeitos por irradiação.

As amostras de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$ no entanto, após o término da medida termoluminescente, adquirem uma cor levemente acinzentada. Observações experimentais, demonstraram que amostras contendo unicamente $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ ou KBr não adquirem essa cor acinzentada após o término das medidas termoluminescentes. Esse efeito indica que a cor adquirida pelos discos não deve estar relacionada com a formação de centros de cor, e fortalece a suposição de que uma determinada reação química deve estar ocorrendo entre os componentes dessa amostra no decorrer dos tratamentos térmicos. Esta suposta reação química seria a responsável pela cor acinzentada permanentemente adquirida pelas amostras de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$ após sucessivos tratamentos térmicos a temperaturas maiores que 400°C .

Conclui-se, portanto, da investigação do comportamento TL após exposição a nêutrons, R-X ou raios gama, que é mais vantajoso utilizar-se amostras de menor diâmetro por duas razões: menor quantidade de material TL tornando-se portanto mais econômico, e maior sensibilidade TL em relação aos discos de maior diâmetro.

d) Dependência da Intensidade de Emissão TL com a Exposição à Radiação Incidente

Quando uma ou mais substâncias são expostas a um feixe de raios gama ou raio-X, ocorrem principalmente três efeitos: fotoelétrico, Compton e produção de pares. Em cada um deles ocorre a liberação de elétrons com suficiente energia para produzir ionizações através de reações secundárias com os átomos que compõe o material. Uma parte dos elétrons liberados no decorrer das ionizações sofre recombinação. Os elétrons restantes vagueiam pelo cristal até que sejam aprisionados em defeitos estruturais existentes na rede cristalina, ou produzidos pela própria irradiação. Consequentemente, deverá ocorrer uma determinada relação entre a liberação térmica de elétrons armadilhados e a exposição à radiação incidente sobre as amostras.

A Figura 3.13 representa o resultado obtido para amostras na proporção otimizada. Na ordenada tem-se a amplitude máxima do pico considerado como padrão de medida e na abscissa a exposição a que foi submetida a amostra. Este é um importante resultado pois caracteriza o comportamento termoluminescente no intervalo de 1R até 100R dos dois diferentes tipos de amostras: retas I e II no quadro B para os discos compactados de $\text{CaF}_2:\text{nat} + \text{KBr}$ e $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$, respectivamente. O quadro A representa a variação do sinal TL no intervalo 1R-10R.

O sinal termoluminescente para amostras de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$ aumenta muito mais rapidamente com a exposição à radiação gama do que para as amostras de $\text{CaF}_2:\text{nat} + \text{KBr}$. Calculando-se os coeficientes angulares das duas retas, no quadro A, para o intervalo entre 1R a 10R obtém-se 0,75 e 0,85 para os discos de $\text{CaF}_2:\text{nat} + \text{KBr}$ e $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$, respectivamente. Fazendo-se o mesmo cálculo para valores da exposição entre 10R e 100R obtém-se para a reta I um valor de 1,15 para o coeficiente angular, indicando uma mudança na sua inclinação. Para as amostras de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$ o valor do coeficiente angular obtido para o intervalo entre 10R e 100R é de 1,25 o que significa que também ocorreu uma variação idêntica no ângulo de inclinação da reta II que relaciona a intensidade TL e a exposição à radiação gama. Esse comportamento traduz uma diferença significativa para os dois tipos de amostras, quando expostas a radiação gama no intervalo de 1R até 100R, indicando que discos compactados de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$ apresentam uma sensibilidade TL maior do que aqueles de $\text{CaF}_2:\text{nat} + \text{KBr}$ e que a relação entre suas respectivas sensibilidades é aproximadamente constante.

Esse procedimento experimental foi repetido utilizando-se radiação X. Como um tubo de raio-X, operando em uma dada energia, produz as radiações segundo um espectro característico de energia, os raios-X de mais baixa energia foram atenuados, interpondo-se entre o feixe e a amostra uma placa de alumínio de 1 mm de espessura, evitando-se que os mesmos produzissem uma excitação em excesso na camada superficial das amostras.

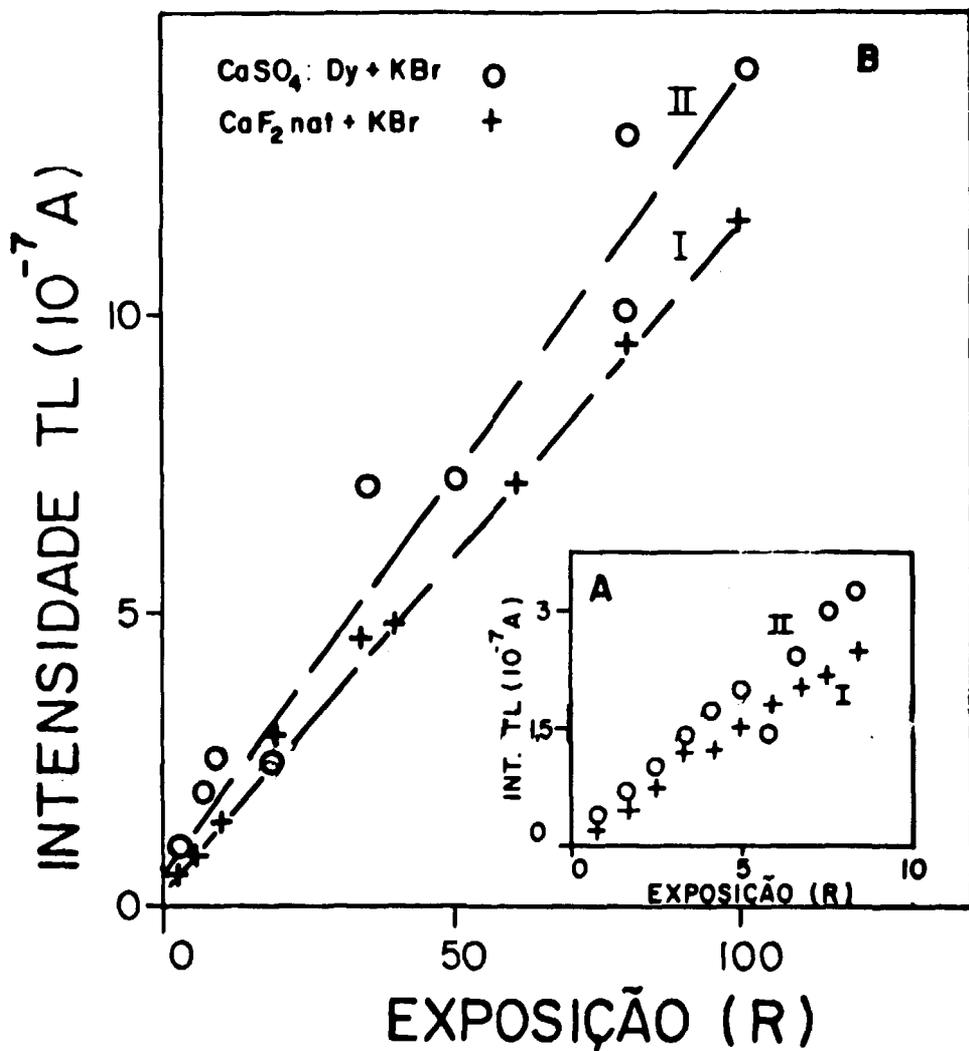


Figura 3.13 - Dependência da Intensidade de Emissão TL com a Exposição Gamma de uma Fonte de ^{60}Co para Amostras Compactadas de CaF_2 nat + KBr e CaSO_4 : Dy + KBr nas suas Proporções Otimizadas. (A) Intervalo de Exposição de 1R-10R, (B) Intervalo de Exposição de 1R-100R

A Figura 3.14 apresenta a variação do sinal TL para medidas efetuadas em amostras de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$ e $\text{CaF}_2:\text{nat} + \text{KBr}$ (retas I e II, respectivamente) em diferentes intervalos de tempo de irradiação. Cada uma das medidas procedeu-se após 5 min. do início da irradiação. A análise das inclinações das retas I e II na Figura 3.14 mostra que, para os discos de $\text{CaF}_2:\text{nat} + \text{KBr}$, excitados por R-X, a emissão termicamente estimulada cresce muito lentamente no intervalo entre 5 seg e 60 seg de exposição. Ainda para as amostras de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$, embora seja mais sensível do que as de $\text{CaF}_2:\text{nat} + \text{KBr}$, também nesse intervalo de tempo de exposição, não ocorre uma mudança na inclinação da reta, como acontece para raios gama.

Esses diferentes comportamentos para raios-X e raios gama provém da própria maneira como interagem com as amostras. Na interação de R-X com a matéria ocorrem muito mais efeitos de superfície do que na interação dos raios gama, devido ao alto grau de atenuação dos R-X na matéria. Este fato foi comprovado experimentalmente para os dois tipos de amostras através dos resultados obtidos em duas séries de experiências: i) irradiou-se quatro amostras de cada tipo, duas com R-X e duas com raios gama. Em ambos os casos, a primeira irradiação procedeu-se tal que a face perpendicular ao feixe de irradiação correspondia àquela que estava voltada para a fotomultiplicadora no aparelho de medida TL; ii) a seguir, irradiou-se mais duas amostras, com a face perpendicular ao feixe voltada contra a válvula fotomultiplicadora. Os resultados (Figuras 3.15 e 3.16) constataam somente diferenças de medidas para experiências com R-X, indicando a importância em observar-se a superfície do disco que está em contato com a prancheta de aquecimento. Estabelecida a face que ficará voltada para a válvula fotomultiplicadora, mantém-se fixa sempre esta disposição em cada medida.

III.2 – Identificação das Contribuições Relativas dos Isótopos na Auto-Irradiação

O crescimento do sinal TL pode ser estudado pela curva que revela o comportamento da amplitude máxima do pico de emissão TL em função de diferentes tempos de auto-irradiação. O resultado mostrado na Figura 3.17 pode ser assim explicado: os radioisótopos formados, ao expor-se as amostras a um fluxo de nêutrons, contribuem de forma relativa para a emissão termicamente estimulada por meio das ionizações produzidas pelas partículas beta provenientes do decaimento radioativo; sendo a TL um processo acumulativo, no caso de auto-irradiação, a saturação do crescimento do sinal TL corresponde diretamente à saturação da atividade efetiva da amostra. Portanto, em analogia com o fenômeno da saturação da atividade efetiva de uma amostra radioativa, a curva de crescimento do sinal termoluminescente pode ser representada por uma expressão do tipo

$$i = i_0 (1 - e^{-u \cdot t}) \quad (1)$$

que reproduz o crescimento do sinal TL com o tempo de auto-irradiação, onde i representa a amplitude máxima do pico dosimétrico após um tempo t de auto-irradiação na amostra; i_0 a sua amplitude máxima após a saturação — cujo valor obtido experimentalmente é de $1,35 \times 10^{-6}$ A (Figura 3.17) — e u o parâmetro característico da mistura, com a dimensão de uma constante de desintegração, calculado por meio do ajuste dos valores experimentais i e i_0 .

Por meio de uma análise dos resultados experimentais que revelam o crescimento do sinal termoluminescente até um valor de saturação (Figura 3.17), pode-se construir a tabela III.2.

A partir dos n valores u_n pode-se obter o valor médio $u = 0,14 \pm 0,01$. Tendo-se esse valor pode-se obter os valores de i para diferentes tempos de auto-irradiação (Tabela III.3).

Esses pontos fornecem o melhor ajuste das curvas de crescimento, permitindo uma interpolação para a obtenção de quaisquer valores de i .

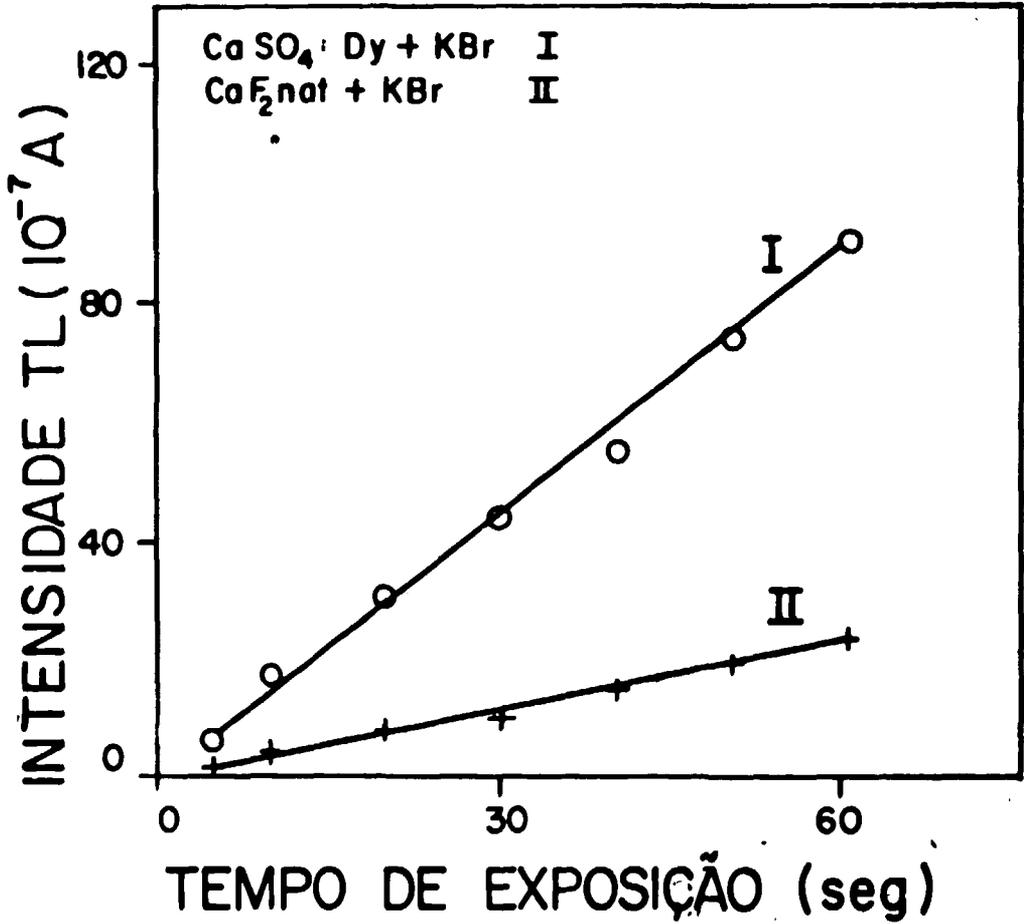


Figura 3.14 - Intensidade TL para Amostras de CaSO₄:Dy + KBr (I) e CaF₂ nat + KBr (II) Submetidas a Exposição a um Feixe de Raio-X por Diferentes Tempos. Condições de Operação: 20KV e 2mA

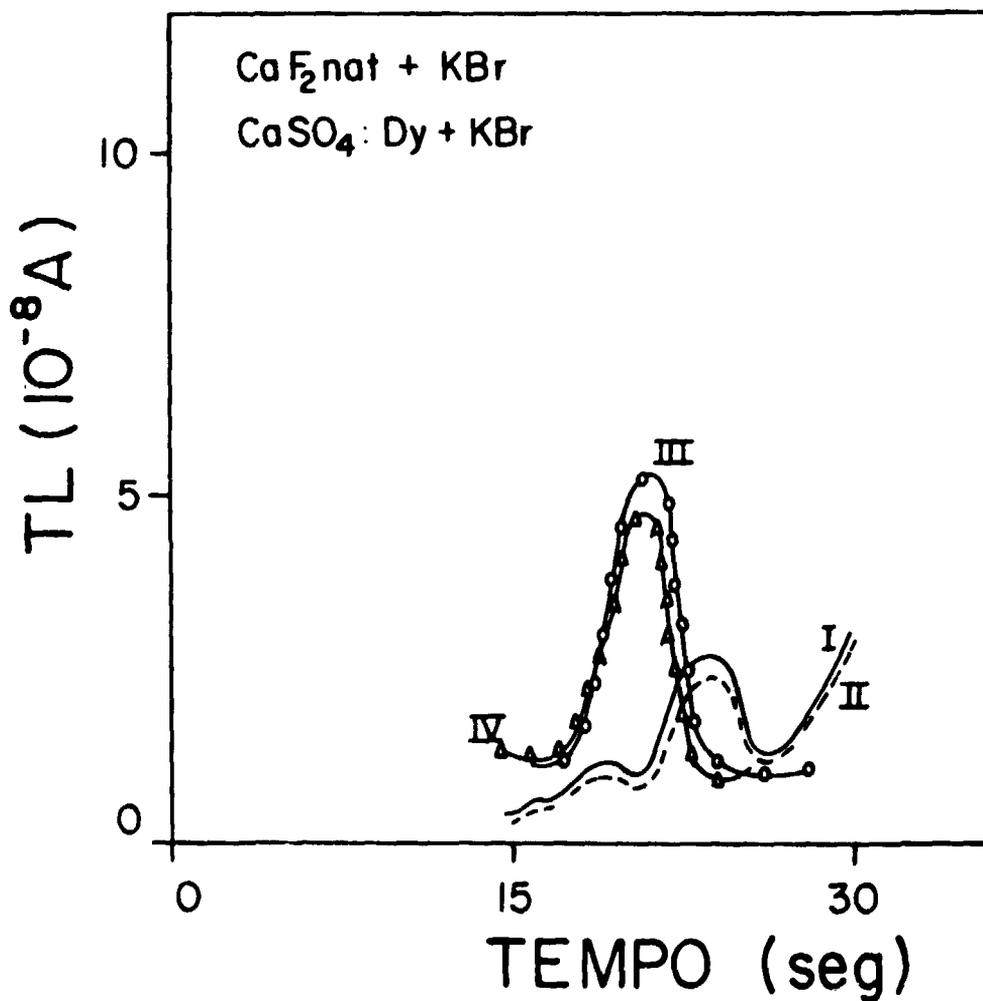


Figura 3.15 – Curvas de Emissão Termoluminescente para Amostras de CaF₂ nat + KBr (I e II) e CaSO₄: Dy + KBr (III e IV) para Amostras Irradiadas com Raios Gama de uma Fonte de ⁶⁰Co em Duas Posições Diferentes (0° e 180°)

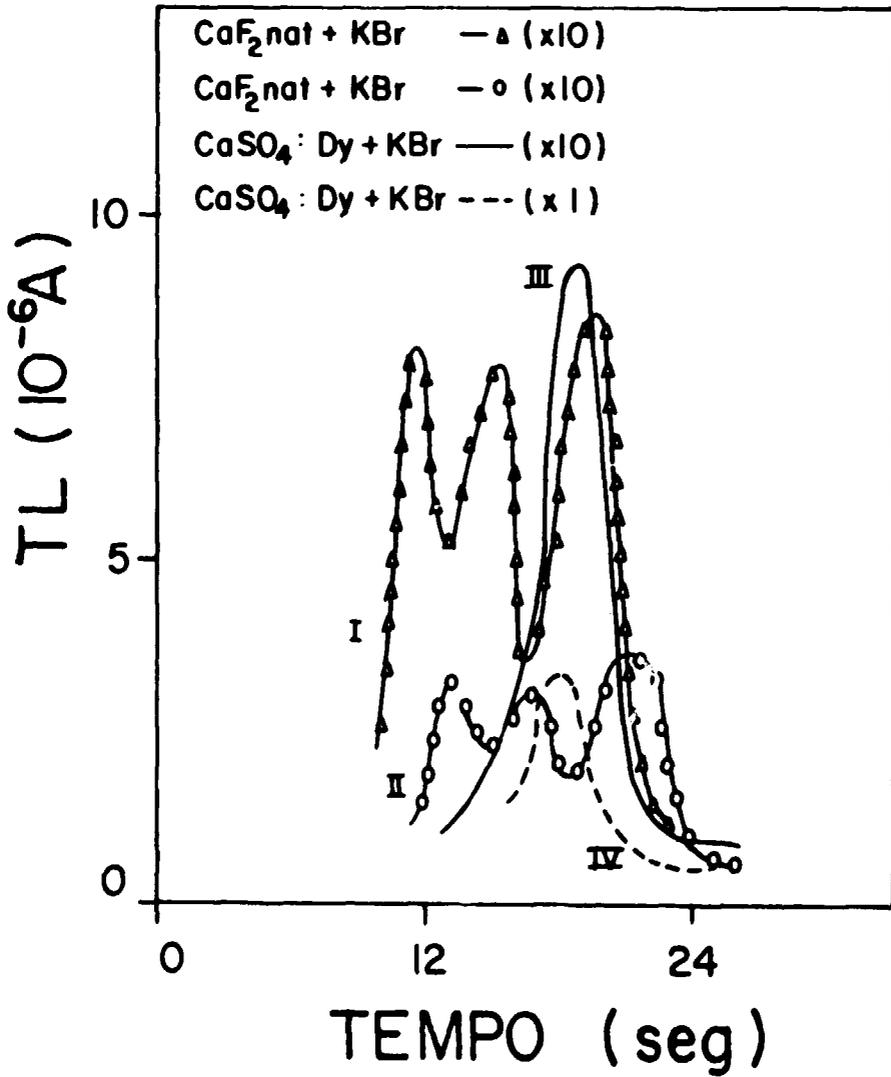


Figura 3.16 - Curvas de Emissão Termoluminescente de Amostras de CaF₂ nat + KBr (I e II) e CaSO₄: Dy + KBr (III e IV) Irradiadas com R-X em Duas Posições Diferentes (0° e 180°).

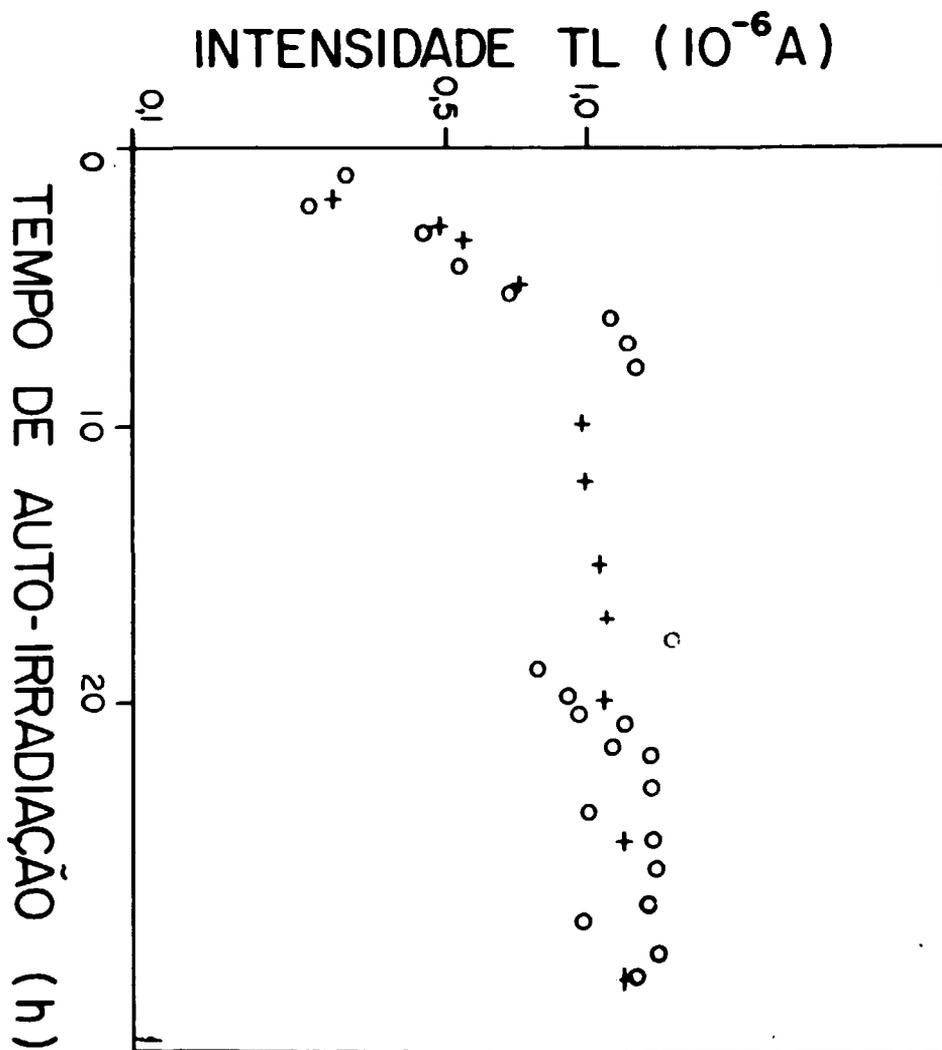


Figura 3.17 - Amplitude Máxima do Pico de Emissão Termoluminescente em Função do Tempo de Auto-Irradiação para Amostras de CaF_2 na: + KEr (Massa Total: 180 mg) Irradiadas com Nêutrons; fluxo Térmico: $6,66 \times 10^{11} \text{ n.cm}^{-2}.\text{seg}^{-1}$

Tabela III.2

Conjunto de Pares de Valores de Tempo de Auto-Irradiação t_n (2ª coluna) e Amplitude TL i_n (3ª coluna), e Valores de Parâmetro u_n da Equação (1)

n	t_n (h)	i_n (10^{-7})	u_n (h^{-1})
1	1,25	2,9	0,19
2	2,25	3,5	0,13
3	3,25	4,3	0,12
4	4,25	5,4	0,12
5	5,25	6,7	0,13

Tabela III.3

Valores Representativos da Expressão que Relaciona a Amplitude TL com o Tempo de Auto-Irradiação

n	t_n (h)	i_n (10^{-6} A)
1	0,5	0,09
2	1,0	0,17
3	2,0	0,33
4	3,0	0,46
5	3,5	0,52
6	5,0	0,68
7	10,0	1,02
8	12,0	1,09
9	15,0	1,18
10	17,0	1,22
11	20,0	1,27
12	25,0	1,30
13	30,0	1,32

Os valores experimentais da intensidade de emissão TL com o tempo de auto-irradiação apresentam erros devido à variação no fluxo de nêutrons com o tempo e para diferentes posições de irradiação. No caso de reatores tipo piscina ocorrem altos gradientes de fluxo (da ordem de $10\%/cm$)⁽⁵⁾. Para um fluxo de nêutrons térmicos da ordem de $10^{11} n.cm^{-2}.seg^{-1}$, uma variação na contagem de tempo de exposição de 1 seg ocasiona uma variação em fluência suficiente para causar uma relativamente alta variação no número de radioisótopos produzidos, e conseqüentemente na amplitude do sinal TL detectado posteriormente.

A equação $i = i_0 e^{-u.t}$ pode representar o decaimento do sinal TL. Nesse caso, u é o parâmetro já calculado para a curva de crescimento (em analogia com a curva de decaimento radioativo), i_0 representa a amplitude máxima inicial do pico dosimétrico (aquela que obteríamos para uma medida feita logo após o término da exposição à radiação, sem a contribuição devida à radiação gama), e i a amplitude máxima do pico dosimétrico em um tempo t .

Para $i = i_0/2$ obtém-se um tempo de irradiação efetivo médio $T_{1/2}$ necessário para que a amplitude termoluminescente decaia para a metade de seu valor inicial. Dessa forma obtém-se $T_{1/2} = 4,7$ h.

Analisando-se os possíveis radioisótopos produzidos e o efeito da saturação ocorrido entre 24 h e 28 h, desde o início da irradiação, conclui-se que o decaimento do ^{80}Br ($T_{1/2} = 4,8$ h) é o principal responsável pela indução de termoluminescência nas pastilhas nesse intervalo. Deve-se levar em conta, na curva de crescimento do sinal TL, a possibilidade de contribuição de outros radioisótopos pois, além daqueles formados devido às impurezas na mistura, ocorrem outras reações tais como $^{19}F(n,2n)^{18}F$ (Vide Figura 3.22) com $T_{1/2} = 2,9$ h, além do $^{81}Br(n,\gamma)^{82}Br$ com $T_{1/2} = 35,9$ h. A emissão TL devida aos radioisótopos de meia-vida curta é desprezada, pois seus efeitos TL são eliminados com adequado tratamento térmico.

Para estudar-se a influência produzida na TL pela auto-irradiação devido ao ^{82}Br precisaria ser feito um estudo por um período de aproximadamente 250 h (tempo necessário para decair 99% da atividade desse radioisótopo). Este estudo mostrou ser desnecessário, pois entre 24 h e 28 h de auto-irradiação, as medidas TL apresentam-se facilmente detectáveis com um pico de emissão TL suficientemente sensível para fins de detecção neutrônica. Ainda deve-se acrescentar que neste intervalo, para uma mesma fluência de nêutrons, ocorre uma mesma intensidade TL, para que se possa desprezar influências marcantes, tais como pequenas variações ocorridas no intervalo de tempo de auto-irradiação e radiação de fundo.

A atividade total de uma mistura de dois ou mais isótopos radioativos de amostras irradiadas com nêutrons é a soma das atividades individuais dos radioisótopos que compõe a amostra. Representa-se a atividade total em função do tempo e determina-se as meias-vidas de cada radioisótopo produzido através da análise da curva resultante.

A técnica da ativação de amostras termoluminescentes pode ser usada para detectar nêutrons, desde que se utilize um fósforo TL que contenha um ou mais elementos com alta seção de choque de ativação para nêutrons (na faixa de energia que se quer detectar) ou uma mistura do fósforo TL com um ativador (que pode ser um dopante, um agregante ou mesmo um componente a mais na mistura).

A medida pode ser feita comparando-se as amplitudes máximas de um pico de emissão termoluminescente devido à auto-irradiação dos discos irradiados previamente com nêutrons.

Quando a medida termoluminescente de amostras ativadas da mistura fósforo termoluminescente e ativador é feita em intervalos iguais de tempo de auto-irradiação, observa-se o decaimento da TL. Essa TL é proporcional à integral da atividade no intervalo de tempo considerado. Cada medida pode ser feita tomando-se como origem do tempo o início da irradiação (despreza-se o intervalo de tempo de irradiação por ser muito pequeno: 20 seg). Após o tratamento térmico, onde

todos os efeitos da radiação são eliminados, procede-se à determinação da termoluminescência em intervalos de tempos iguais, tomando-se o devido cuidado para que esse intervalo não seja grande em relação a meia-vida do radioisótopo, para que não ocorram erros nos valores obtidos. Como consequência, decresce a emissão termicamente estimulada, medida em intervalos de tempos iguais após o início da irradiação.

Os cinco gráficos que seguem referem-se aos resultados obtidos na identificação dos radioisótopos produzidos quando cinco amostras foram irradiadas com nêutrons no reator IEAR-1.

As curvas I nas Figuras 3.18, 3.19, 3.20 e 3.21 representam a amplitude máxima do sinal termoluminescente para tempos iguais de auto-irradiação, em amostras de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$ e $\text{CaF}_2 \text{ nat} + \text{KBr}$ envoltas em cádmio ou em papel preto.

As concavidades das curvas I estão relacionadas com as atividades dos radioisótopos de meia-vida curta. Às atividades dos radioisótopos de meia-vida relativamente maior deve-se a parte final da curva, obtida muitas horas após o término da irradiação.

Os valores das meias-vidas presentes em cada caso obteve-se da seguinte maneira: i) extrapola-se cada uma das retas que compõe a curva I até o eixo $t = 0$; ii) subtrai-se a primeira componente (reta II), que representa a soma de todas as atividades presentes, da segunda componente, que representa todas as atividades presentes menos aquela de meia-vida mais curta; como resultado tem-se uma reta (traçada A) que representa a termoluminescência devida à desintegração do radioisótopo de meia-vida curta. Através de subtrações sucessivas, consegue-se eliminar a contribuição à termoluminescência de radioisótopos de meia-vida mais curta, e obtém-se, separadamente, a contribuição à termoluminescência de cada radioisótopo (retas A, B, C, ...).

Ainda que em princípio o método possa ser aplicado para uma curva de decaimento da termoluminescência devida a vários radioisótopos, o método é limitado devido às dificuldades práticas. De posse do conhecimento dos radioisótopos presentes, que estariam de forma mais acentuada irradiando as pastilhas, estabelece-se um intervalo de tempo de auto-irradiação mínimo que dará uma máxima sensibilidade termoluminescente.

Pode-se também fixar o intervalo de tempo que deve-se esperar entre o final de irradiação e início de tratamento térmico, que irá ser responsável pela eliminação dos defeitos interferentes provocado nas pastilhas pelos radioisótopos de meia-vida curta.

Através dos valores obtidos experimentalmente, constrói-se as curvas I das Figuras 3.18 e 3.19 para amostras de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$ envoltas em papel preto e cádmio, respectivamente. As medidas foram efetuadas de 1 h em 1 h durante dois dias seguidos, com interrupção no período entre 14 horas e 22 horas no início da irradiação. Foram desprezadas as primeiras medidas de cada dia, pois teriam um erro relativamente maior do que as outras, devido à contribuição de efeitos como o próprio manuseio da amostra 1 h após o tratamento térmico pós-irradiação e, no caso da primeira medida realizada após a interrupção, representaria a contribuição da termoluminescência acumulada durante esse intervalo de interrupção.

As meias-vidas de aproximadamente 20 min. e 4,7 h obtidos para amostras de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$ correspondem às dos radioisótopos do bromo. Não foi possível determinar-se a meia-vida de 35,9 h nas medidas, pois o tempo não foi suficiente para decair uma fração acentuada dos isótopos radioativos produzidos (decaíram menos de 50%).

A concordância dos resultados obtidos com as meias-vidas presentes e a indução de TL nas amostras apresenta um outro aspecto significativo: no intervalo de tempo em que as medidas são feitas, não ocorre outros efeitos que não as de TL induzida pela auto-irradiação.

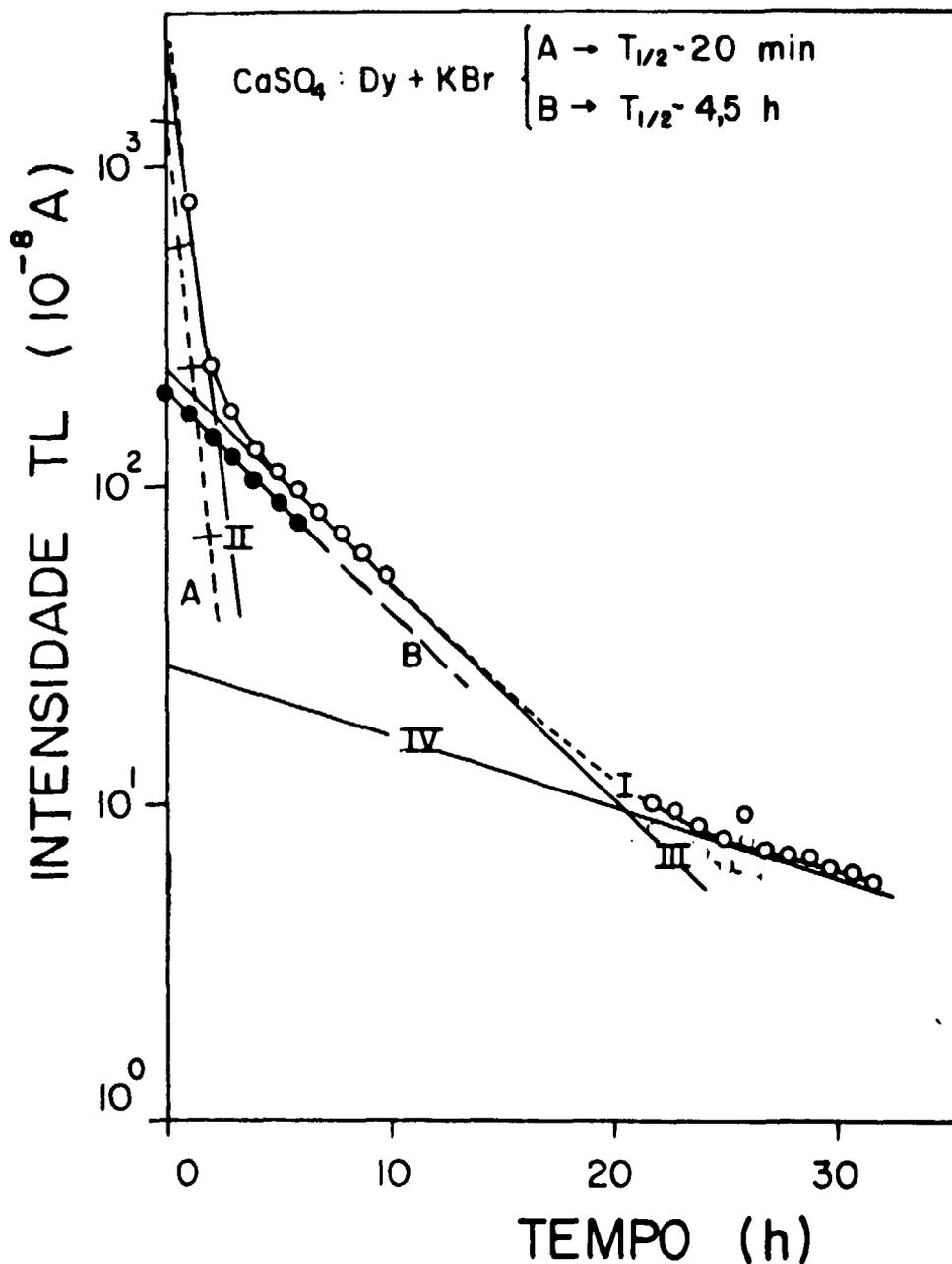


Figura 3.18 – Amplitude Máxima do Pico Dosimétrico da Emissão Termicamente Estimulada Devido à Auto-Irradiação (Intervalos de Tempos Iguais) em Função do Tempo entre Irradiação e Medidas, para Amostras de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{KBr}$ Irradiadas com Nêutrons do Reator (Curva I). As Retas II, III e IV Foram Determinadas por Extrapolação das Partes Lineares que Compõe a Curva I. As Retas A e B Resultam das Subtrações das Retas II e III, e III e IV, Respectivamente

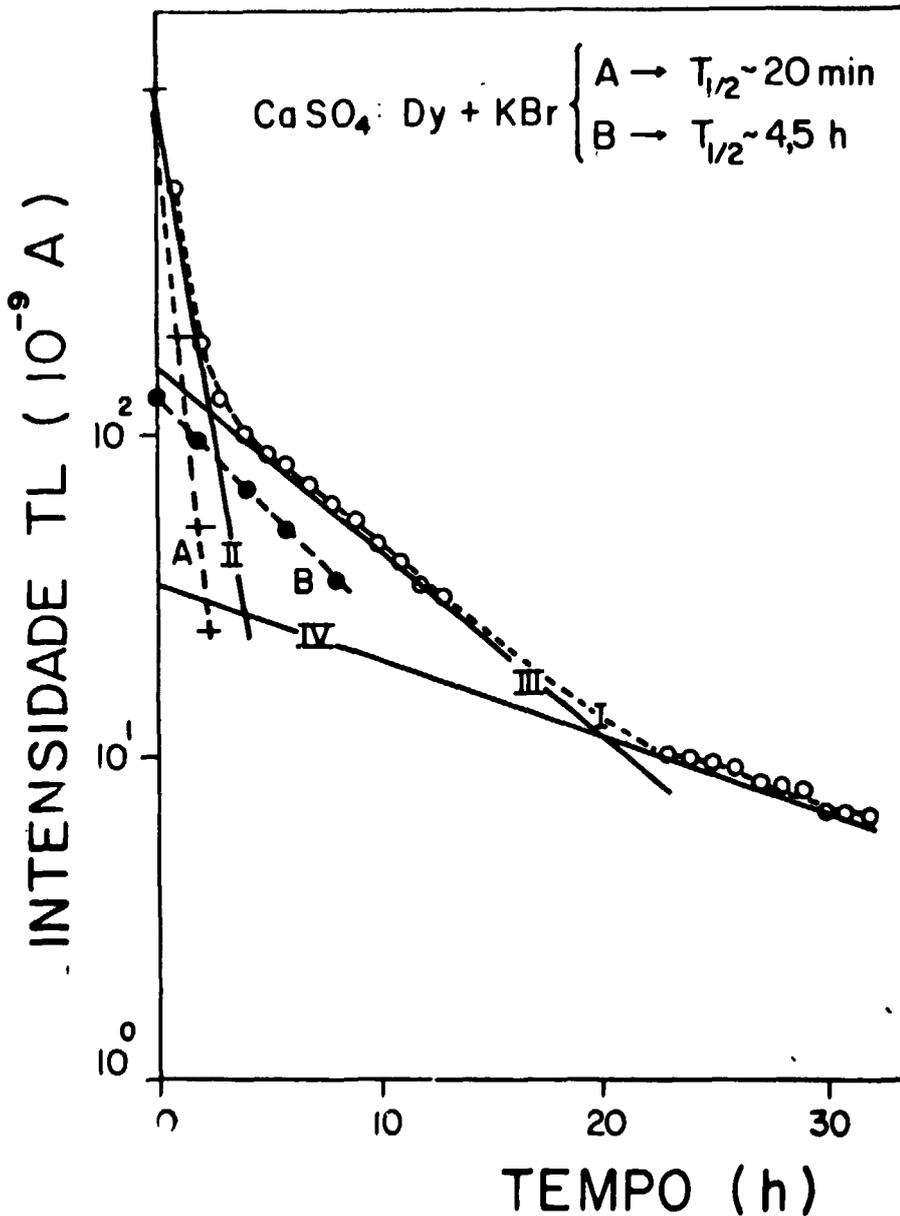


Figura 3.19 – Amplitude Máxima do Pico Dosimétrico da Emissão Termicamente Estimulada Devido à Auto-Irradiação (em Intervalos de Tempos Iguais) em Função do Tempo entre Irradiação e Medida, para Amostras de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$, Envoltas em Cádmiu e Irradiadas com Nêutrons do Reator (Curva I). As Retas II, III e IV Foram Determinadas por Extrapolação das Partes Lineares da Curva I. As Retas A e B Resultam das Subtrações das Retas II e III, e III e IV, Respectivamente

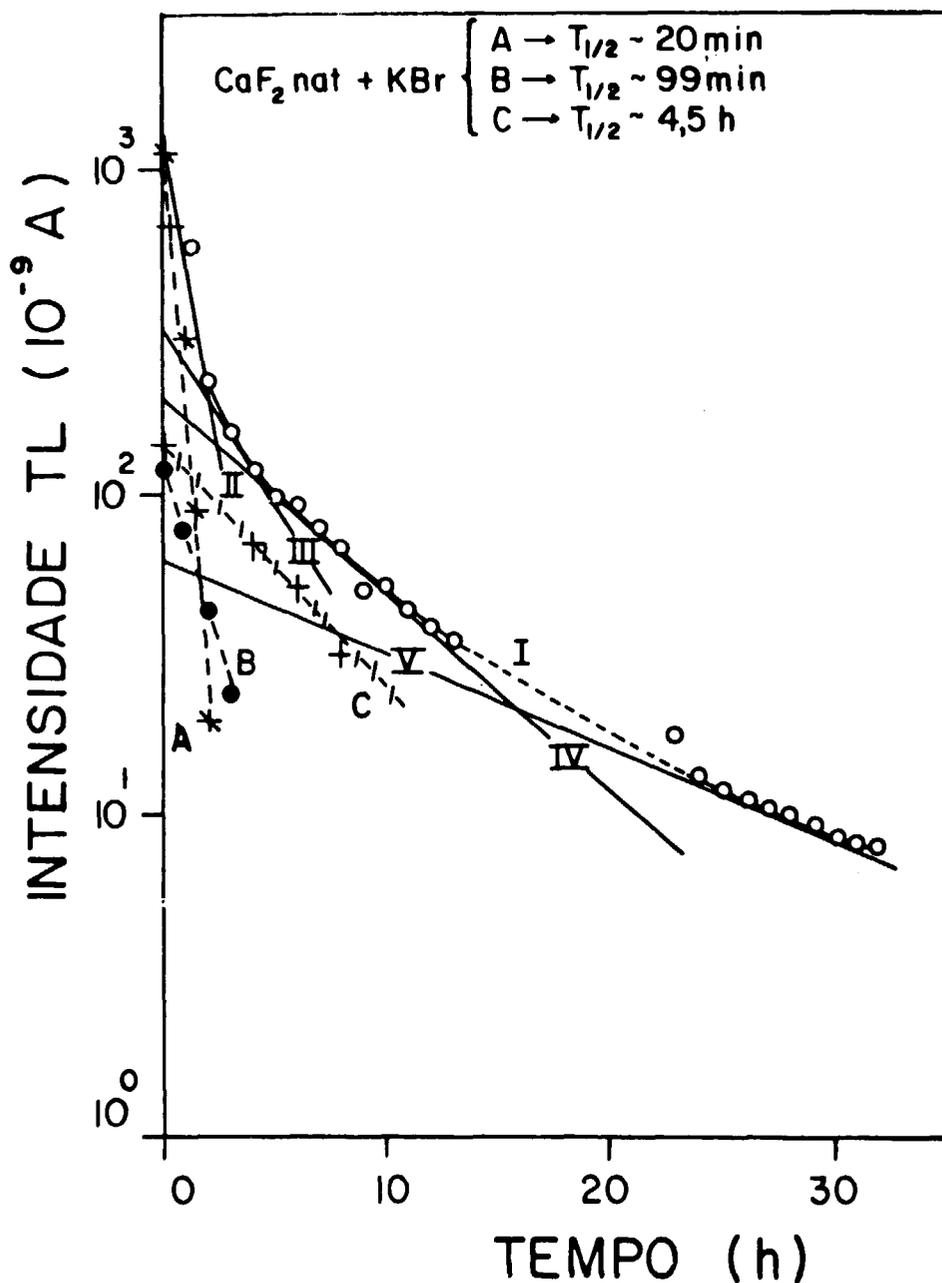


Figura 3.20 - Amplitude Máxima do Pico Dosimétrico da Emissão Termicamente Estimulada Devido à Auto-Irradiação (em Intervalos de Tempo Iguais) em Função do Tempo entre Irradiação e Medidas, para Amostras de CaF₂ nat + KBr (Envolta em Papel Preto) Quando Irradiadas com Nêutrons do Reator (Curva I). As Retas II, III e IV Foram Determinadas por Extrapolação das Partes Lineares que Compõe a Curva I. As Retas A, B e C Resultam das Subtrações das Retas II e III, III e IV, e IV e V, Respectivamente

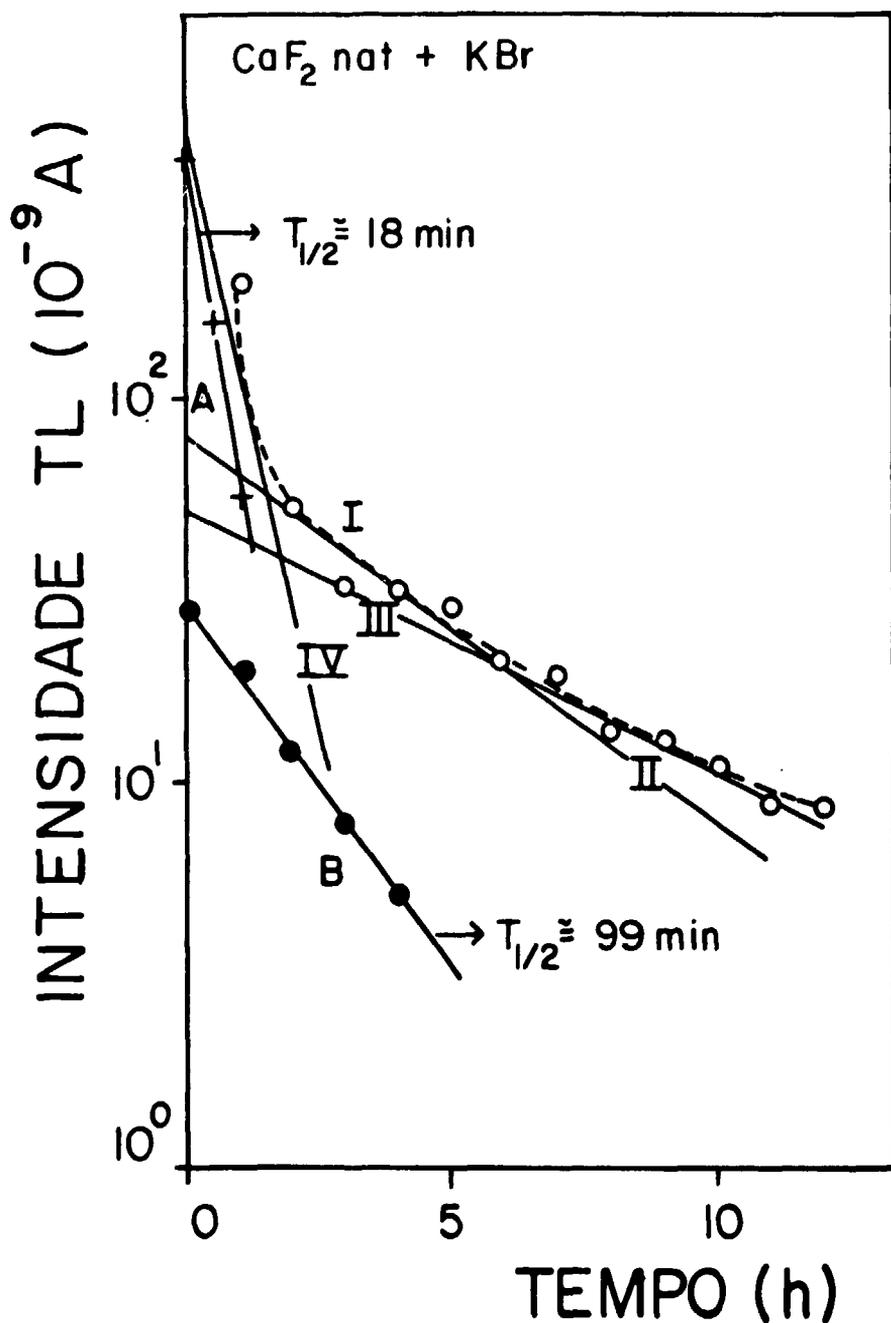


Figura 3.21 - Amplitude Máxima do Pico Dosimétrico da Emissão Termicamente Estimulada Devido a Auto-Irradiação (em Intervalos de Tempos Iguais) em Função do Tempo entre Irradiação e Medidas, para Amostras de CaF₂ nat + KBr (Envoltas em Cádmio) e Irradiadas com Nêutrons do Reator (Curva I). As Retas II, III e IV Foram Determinadas por Extrapolação das Partes Lineares que Compõe a Curva I. As Retas A e B Resultam das Subtrações das Retas II e III, e III e IV, Respectivamente

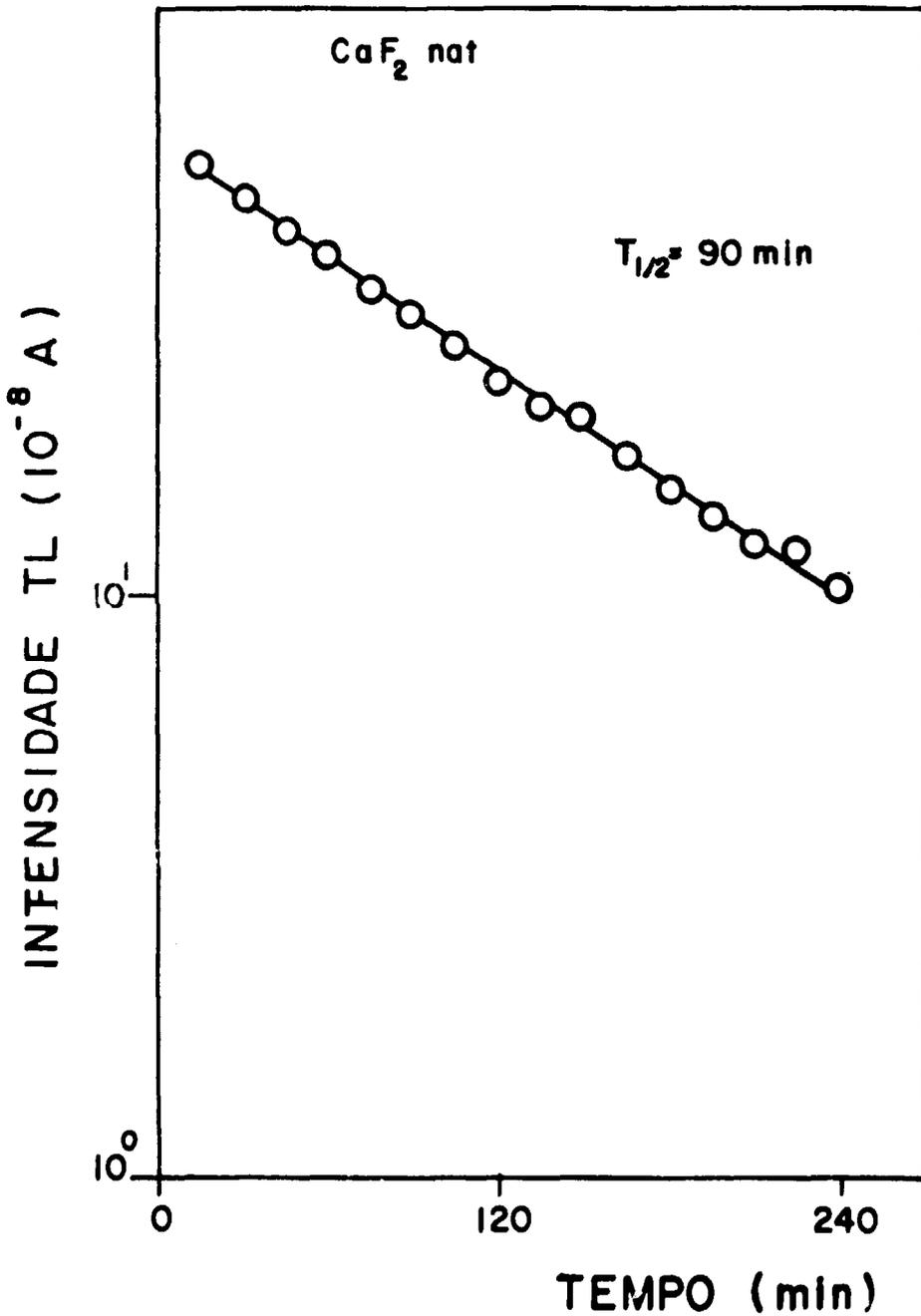


Figura 3.22 – Amplitude Máxima do Pico Dosimétrico de Emissão Termicamente Estimulada Devido à Auto-Irradiação (em Intervalos de Tempo Iguais), em Função do Tempo entre Irradiação e Medidas, para Amostras Irrradiadas com Nêutrons do Reator (Fluxo Térmico: $\phi = 6,66 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \text{ seg}$)

III.3 – Detecção de Nêutrons Térmicos em Campos Mistos n-Gama

A técnica da termoluminescência induzida por auto-irradiação e a determinação da intensidade de emissão TL com o tempo de exposição em um determinado fluxo de nêutrons pode ser usada na detecção de nêutrons, desde que se tenha uma região de fluxo de nêutrons conhecida para que se possa fazer a calibração. Também deve-se conhecer o espectro da fonte utilizada, porque a alta blindagem e os efeitos de interação produzidos depende do espectro de nêutrons. Para um determinado espectro pode ocorrer predominantemente absorção ressonante e para outros não.

Os resultados que se expõe a seguir são relativos aos espectros de nêutrons de fissão de uma fonte de ^{252}Cf e do reator IEAR-1. Esta parte foi dividida em dois itens:

- a) Curvas de emissão TL características de amostras de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ e de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{KBr}$ expostas a nêutrons. O efeito devido aos gamas presentes no campo magnético é eliminado através de um tratamento térmico, e a termoluminescência medida é devida à auto-irradiação das amostras.
- b) Dependência da intensidade de emissão TL com o tempo de exposição a um determinado fluxo de nêutrons. Também elimina-se os efeitos devido aos gamas presentes no campo neutrônico.

a) Curvas de Emissão TL

A variação das características termoluminescentes pode ser utilizada no estudo do preenchimento das armadilhas pelos portadores de carga, quando pastilhas de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ e $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{KBr}$ são submetidas a diferentes fluxos de nêutrons. Cada pastilha é irradiada à temperatura ambiente com diferentes fluências neutrônicas. Após a amostra ser removida do feixe de nêutrons, submetida a tratamentos térmicos e auto-irradiação, a curva de emissão TL é medida. Estas curvas são mostradas nas Figuras 3.23, 3.24 e 3.25 para a Est-1 e Est-4 do reator IEAR-1 e fonte de ^{252}Cf , respectivamente. A área sob a curva é proporcional ao número de portadores de carga inicialmente armadilhados.

Nessas três figuras, as temperaturas correspondentes às amplitudes máximas de emissão TL são independentes do tipo e da intensidade da radiação.

A Figura 3.23 mostra curvas de emissão típicas para amostras de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ e de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy}$ com e sem envoltório de cádmio (curvas I, II, III e IV, respectivamente). Essas amostras foram submetidas a irradiação com nêutrons no campo misto nêutron-gama da Est-1 durante 20 seg (fluência de $1,22 \times 10^{13} \text{ n.cm}^{-2}$).

As curvas de emissão TL obtidas representam a termoluminescência induzida pelo decaimento beta dos núcleos ativados, no intervalo de tempo de 1 h de auto-irradiação após a primeira medida (1 h após o término do tratamento térmico pós-irradiação).

Analogamente, tem-se as curvas de emissão TL na Figura 3.24 para irradiação de 2 seg na Est-4 (fluência de $1,0 \times 10^{13} \text{ n.cm}^{-2}$).

Também na Figura 3.25 observa-se as curvas de emissão de pastilhas de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ e de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{KBr}$ com e sem envoltório de cádmio. Essas amostras foram irradiadas por 4,5 h a $\sim 2,5 \text{ cm}$ da fonte de ^{252}Cf (fluência de $2,5 \times 10^{10} \text{ n.cm}^{-2}$). Nessa figura não detecta-se o pico III para amostras de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ ocorre mudança na forma de curva de emissão TL). Isso evidencia que tanto o pico I como o pico II dessas pastilhas são preenchidos preferencialmente em relação ao pico III, que fica sobreposto pela emissão incandescente da prancheta de aquecimento da amostra.

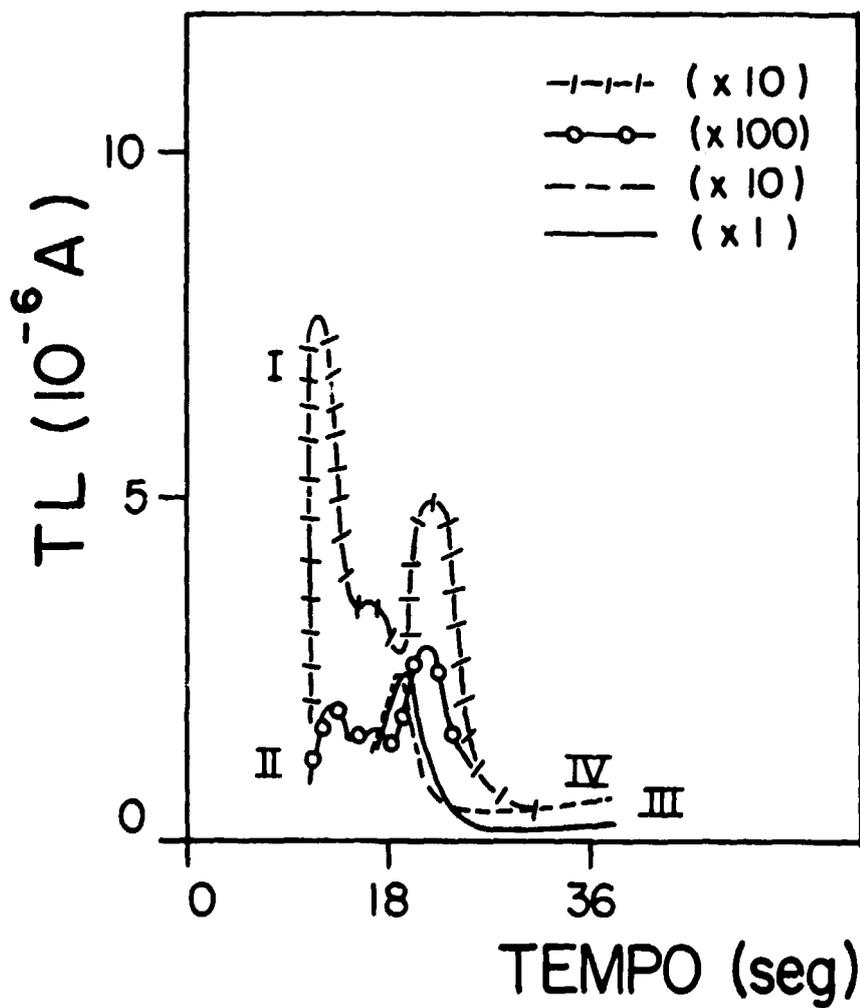


Figura 3.23 - Curvas de Emissão Termoluminescente de Amostras de CaF_2 nat + KBr e $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ + KBr Com e Sem Envolvório de Cádmiu, Após a Exposição à Radiação Neutrônica ($\phi_{n_t} \sim 6,66 \times 10^{11} \text{ n.cm}^{-2}.\text{seg}^{-1}$)

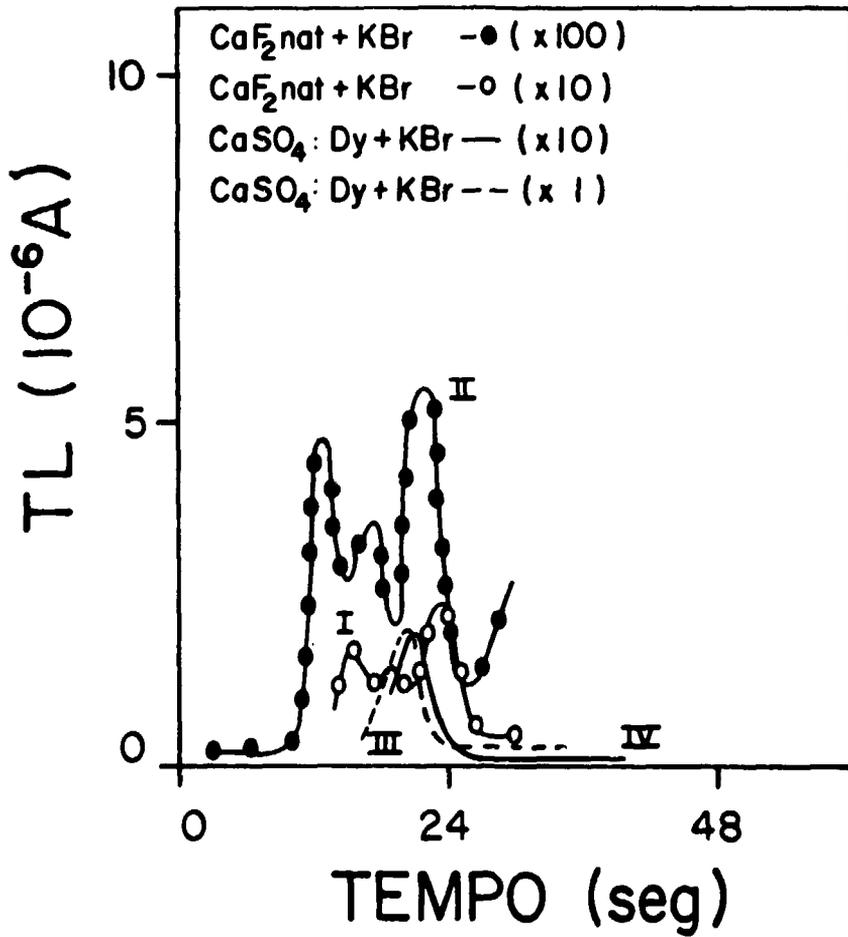


Figura 3.24 - Curvas de Emissão Termoluminescente de Amostras de CaF₂ nat + KBr e CaSO₄:Dy + KBr Com e Sem Envolvêrio de Cádmió, Após a Exposição à Radiação Neutrônica ($\phi_{n_t} \sim 5.10^{12} n.cm^{-2}.seg^{-1}$)

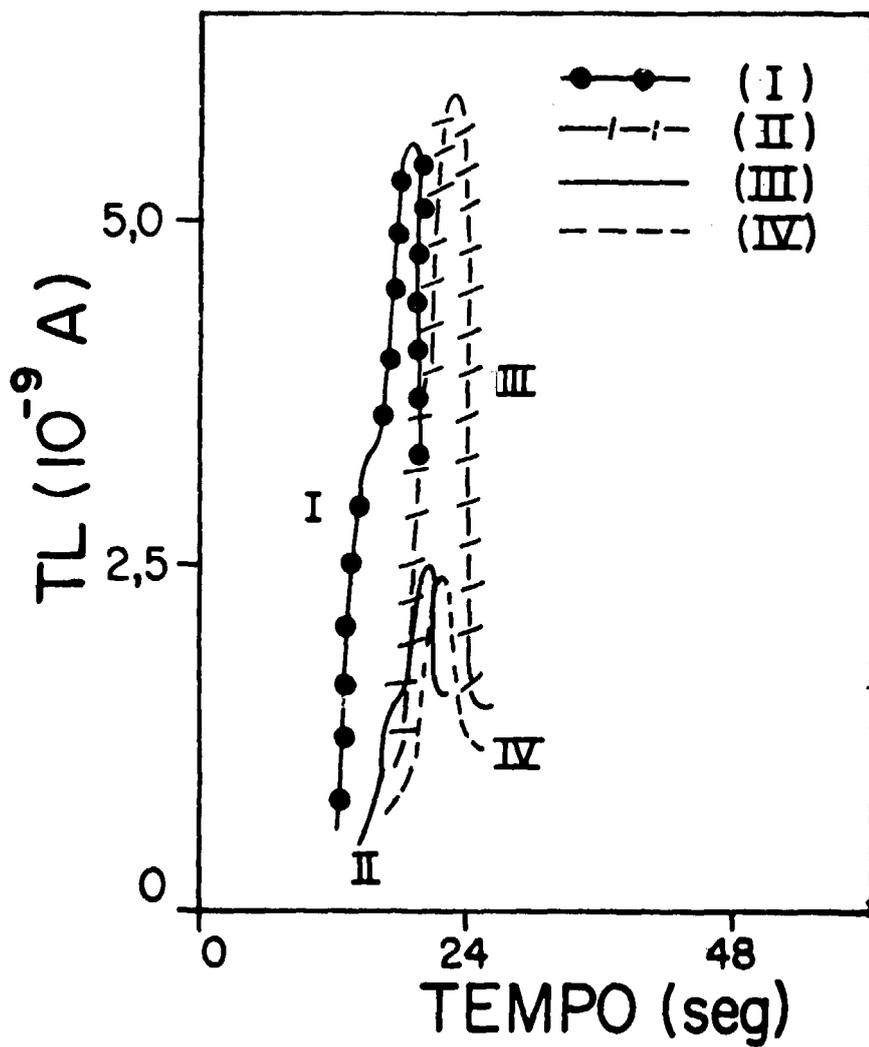


Figura 3.25 - Curvas de Emissão Termoluminescente de Amostras de CaF_2 nat + KBr e $\text{CaSC}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$ Com e Sem Envolvimento de Cádmiu, Após a Exposição à Radiação Neutrônica ($\phi_{n_1} \sim 1.66 \cdot 10^6 \text{ n.cm}^{-2}.\text{seg}^{-1}$)

Comparando-se as curvas de emissão TL das três figuras, constata-se que para fluências relativamente menores (amostras irradiadas na fonte de ^{252}Cf) a diferença na intensidade TL das amostras (com e sem cádmio) torna-se acentuadamente menor. Isso poderia ser devido a efeitos de retro-espalhamento de nêutrons, uma vez que as amostras irradiadas na fonte de ^{252}Cf só são envoltas com cádmio, na parte posterior (entre amostra e fonte). Uma experiência foi realizada a fim de se verificar a importância relativa do processo de retro-espalhamento nessas medidas. Duas amostras foram irradiadas: com cádmio em ambos os lados da amostra e com cádmio entre o feixe e a amostra. O resultado encontra-se na Figura 3.26. A amplitude dos dois picos de emissão TL mostra que não ocorreu variação significativa de uma medida para outra, não podendo se concluir que essa aproximação das intensidades TL para amostras com e sem cádmio para baixas fluências, seja ocasionada por retro-espalhamento.

Convém salientar que para baixas fluências, a importância relativa de nêutrons térmicos torna-se reduzida, em face da existência de nêutrons em outra faixa de energia.

A determinação da intensidade de emissão TL com o tempo de exposição em um determinado fluxo de nêutrons (reator, fonte de ^{252}Cf , etc.) permite estudar tanto a possibilidade de utilizar-se as pastilhas de $\text{CaSO}_4 \cdot \text{Dy} + \text{KBr}$ e $\text{CaF}_2 \text{ nat} + \text{KBr}$ na detecção de nêutrons térmicos, quanto a faixa útil de detecção.

Nestes testes, sabe-se que a intensidade termoluminescente é consequência predominante da auto-irradiação proveniente dos raios beta emitidos pelos ^{80}Br de meia vida de $\sim 4,5$ h e que 96% a 97% dos mesmos decaem após um período de tempo aproximadamente cinco a seis meias-vidas. Realizou-se a medida da termoluminescência induzida, 24 horas após a exposição ao fluxo de nêutrons. As amostras, na sua proporção otimizada, foram expostas a diferentes fluências de nêutrons em campos mistos nêutron-gama. Novamente, nas amostras foi dado um tratamento térmico pós-irradiação (estudo realizado previamente).

Os resultados que se expõe a seguir foram obtidos após exposição no reator IEAR-1 (Est-1 e 4) e em uma fonte de ^{252}Cf , respectivamente.

A Figura 3.27 mostra o comportamento da amostra de $\text{CaF}_2 \text{ nat} + \text{KBr}$ quando irradiada por um período de tempo entre 5 seg e 90 seg na Est-1 do reator (fluxo de nêutrons térmicos de aproximadamente $6,66 \times 10^{11} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{seg}^{-1}$). A curva I (+) representa a intensidade TL em função do tempo de irradiação devido à atividade induzida nas amostras sem cádmio. Ainda nessa figura tem-se a curva II (0) que foi obtida de maneira análoga para amostras envoltas em cádmio. Essa curva deveria representar principalmente a influência na TL devido a atividade induzida por nêutrons na faixa de energia acima da dos nêutrons térmicos. No entanto, a razão de cádmio ($R_{\text{Cd}} = 17,38$) nesta posição de irradiação exigiria o uso de uma blindagem de cádmio de aproximadamente 1,5 mm de espessura⁽¹⁷⁾, a fim de absorver no mínimo 80% dos nêutrons térmicos. Dessa forma, para irradiações tanto na Est-1 como na Est-4, em ambas as amostras (com e sem cádmio), considerou-se a dependência da termoluminescência com o tempo de irradiação. Embora não seja possível comparar esses resultados para fluências de nêutrons térmicos, obtém-se uma ordem de grandeza das sensibilidades relativas das amostras irradiadas com envoltório de cádmio e das envoltas em papel preto. Para mesmas condições de irradiação, amostras submetidas a um fluxo de nêutrons, sem absorvedores de nêutrons térmicos, apresentam uma sensibilidade de ~ 10 vezes superior àquelas envolvidas em cádmio. Isto evidencia a possibilidade de se utilizar essas amostras como detectores de nêutrons térmicos, desde que é possível separar-se os resultados devidos à auto-irradiação obtida com nêutrons térmicos daqueles obtidos com nêutrons de energia superior (utilizando-se um absorvedor de nêutrons com seção de choque de absorção na região térmica).

Também realizaram-se irradiações na Est-4 com um fluxo térmico de $6,0 \times 10^{12} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{seg}^{-1}$ (Figura 3.28). Como o fluxo nessa posição de irradiação é bem maior do que na Est-1, as amostras ficaram muito ativas. Como resultado, a emissão termicamente estimulada produzirá uma corrente bem

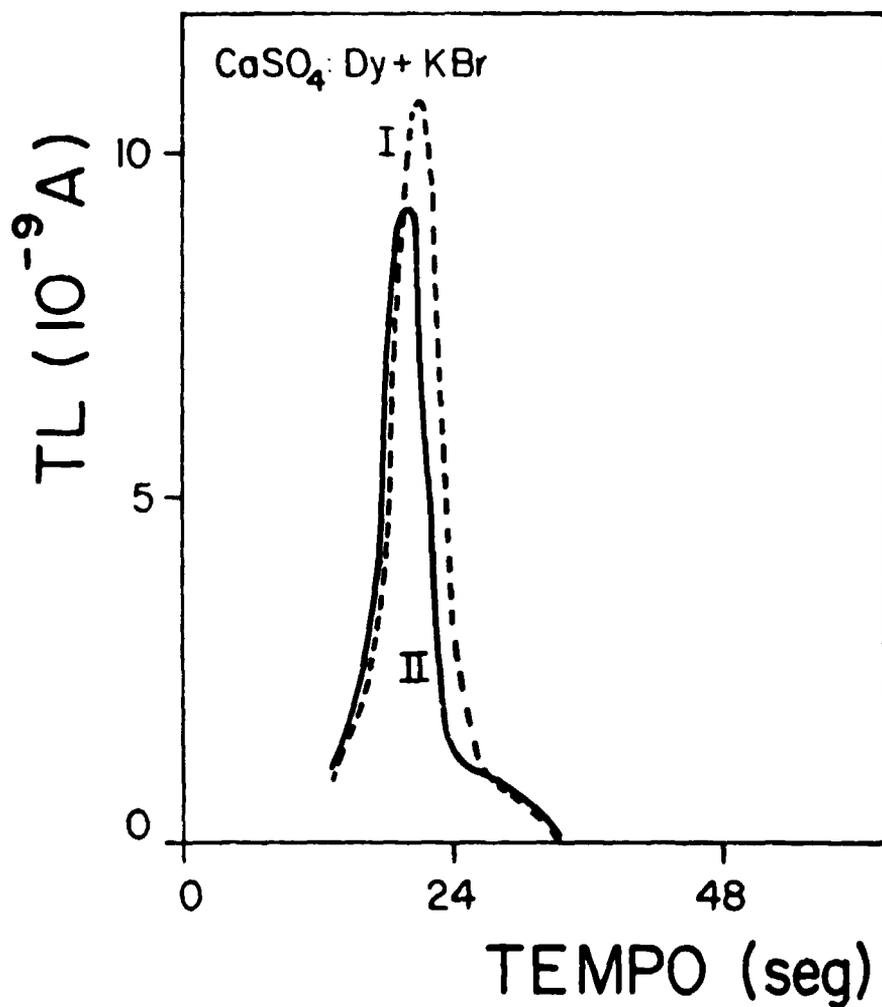


Figura 3.26 . Curvas de Emissão Termoluminescente para Amostras de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$: (I) Envoltas em Cádmi em Ambos os Lados . (II) Cádmi entre a Fonte e a Amostra

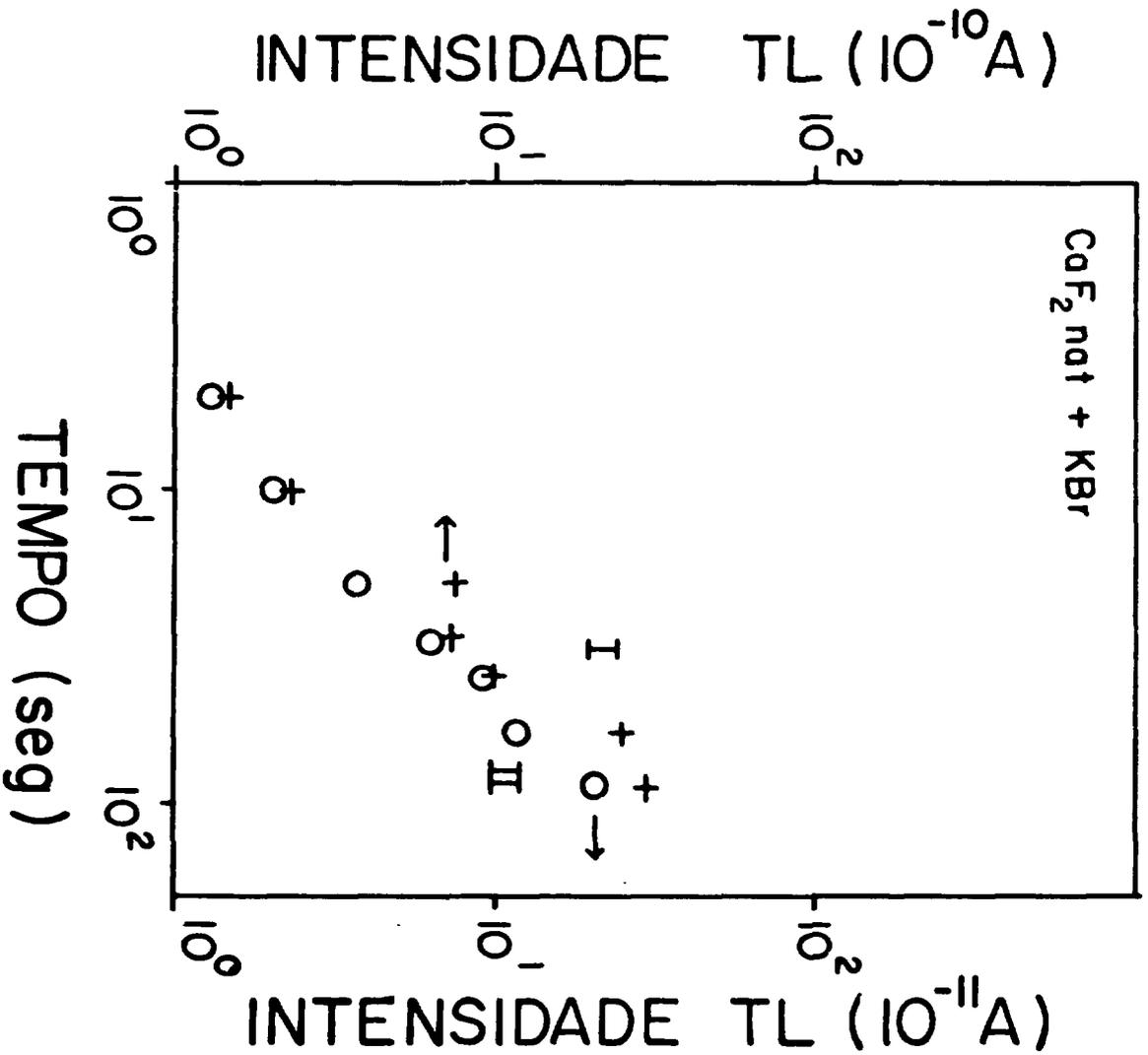


Figura 3.27 - Intensidade TL em Função do Tempo de Irradiação na Est-1 do Reator IEAR-1 para Amostras de CaF₂ nat + KBr: (I) Sem Cádmio ; (II) Com Envolório de Cádmio

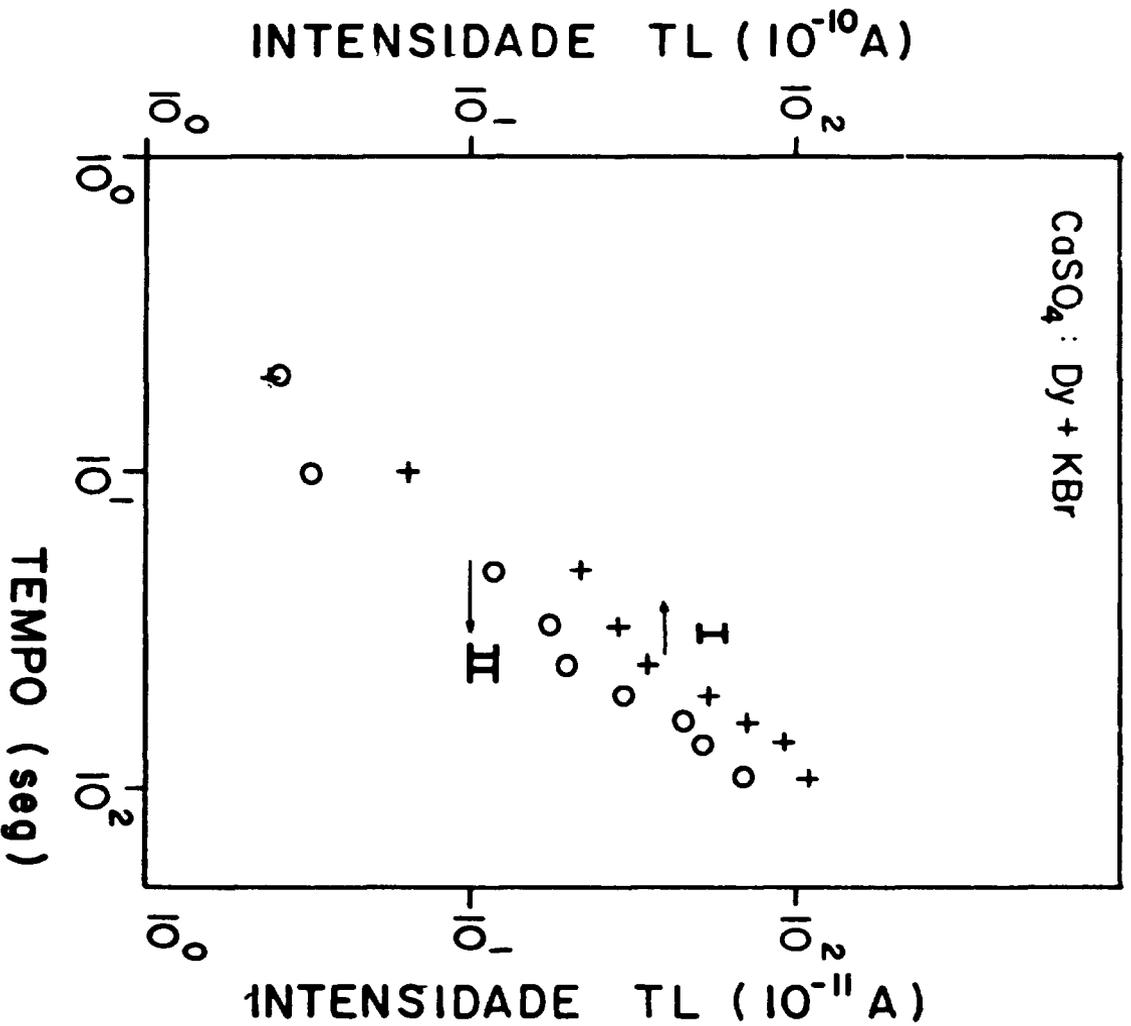


Figura 3,28 - Intensidade TL em Função do Tempo de Irradiação na Est-4 do Reator IEAR-1 para Amostras de CaF₂ nat + KBr; Tempos de Auto-Irradiação: 24h (I) e 1h (II)

maior do que 10^{-6} A (ordem de grandeza da máxima corrente detectável) no sistema detector 2, após 24 horas de auto-irradiação, não podendo, portanto ser feita esta medida também nesse sistema detector. Optou-se então pelo sistema detector 1, que dispõe de uma válvula fotomultiplicadora comparativamente menos sensível.

Ainda para relativamente altas frequências de nêutrons térmicos, ocorre uma relação linear entre intensidade termoluminescente e tempo de irradiação. Estas medidas foram realizadas unicamente com amostras envoltas em papel preto, pois, como especificado anteriormente, para irradiações no reator e para a espessura de cádmio utilizada (1 mm), o sinal TL é da ordem de 10 vezes menor.

Após cada uma das medidas, as amostras foram guardadas por um período de 1 hora de auto-irradiação no meio de recipientes esféricos de amulínio, para homogeneizar fatores de retro-espalhamento e uma nova detecção do sinal TL foi realizada no sistema detector 2. Após as irradiações nas Ests-1 e 4 com amostras de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$, procedeu-se às irradiações com amostras de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{KBr}$ (Figuras 3.29 e 3.30). Os resultados obtidos são semelhantes, com a ressalva que essas últimas apresentam um sinal TL de 3 a 10 vezes superior aos dos discos de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$, aumentando com o tempo de exposição (cu seja, com a fluência). Esse resultado está de acordo com aquele que se obtém para irradiações gama (Figura 3.13) onde, para maior dose, maior a diferença de sensibilidade entre os dois tipos de amostras. Como a quantidade de agregante e fósforo TL são iguais em ambos os tipos de amostras, uma possível explicação é que para $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{KBr}$ ocorre uma maior probabilidade de aprisionamento dos portadores de carga pelos defeitos já existentes na rede cristalina ou produzidos durante o processo de irradiação, do que para $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$, conforme aumenta-se o tempo de exposição à radiação. As amostras de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ lentamente alcançam o seu limite de saturação. Pode-se levantar a possibilidade de análise desse processo em outro estudo, na medida em que ele pode significar um entrave na detecção de nêutrons para altas fluências por esse método, com essas amostras.

O procedimento usado para obter-se a curva II das Figuras 3.28 e 3.30 e o comportamento análogo das curvas I e II, permitem propor que para altos fluxos, as amostras sejam guardadas por um período de 24 horas, e então sejam submetidas a tratamento térmico. Depois de 1 hora de auto-irradiação pós-tratamento térmico, realiza-se a detecção da termoluminescência.

Esses resultados nos permitem propor portanto um método para a detecção de fluência de nêutrons térmicos, em que o manuseio do detector (no caso $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ e $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{KBr}$) durante o seu transporte desde o local de irradiação até o aparelhamento da detecção da emissão TL, não incorra em exposição à radiação do pessoal envolvido nesse trabalho.

Na aplicação da termoluminescência induzida por auto-irradiação na detecção de nêutrons, pode-se estabelecer o limite para a mínima fluência detectável de nêutrons térmicos. Esse cálculo visa determinar a sensibilidade do método para baixas fluências, e requer o conhecimento da variação do sinal termoluminescente com o tempo de exposição a um dado fluxo de nêutrons. Nesta etapa, as experiências realizaram-se com nêutrons provenientes de uma fonte de ^{252}Cf . O fluxo de nêutrons térmicos da fonte de ^{252}Cf é da ordem de 10^5 vezes menor do que o fluxo de nêutrons térmicos da Est-1 do Reator IEAR-1. Então, quando deseja-se calcular o limite inferior da fluência detectada utilizou-se a fonte de ^{252}Cf . O valor da mínima fluência detectada é obtido através dos processos que seguem: i) irradia-se as amostras por diferentes tempos e procede-se à mesma sequência experimental adotada nas experiências anteriores com nêutrons (tratamento térmico, armazenamento das amostras por 24 horas, e medida); ii) contrói-se o gráfico da intensidade TL em função do tempo de irradiação para amostras irradiadas com e sem envoltório de cádmio; iii) subtrai-se a reta média obtida para os pontos que representam a intensidade do sinal TL de amostras irradiadas sem envoltório de cádmio, daquela proveniente de amostras envoltas em cádmio. O resultado é uma terceira reta que representa a intensidade termoluminescente induzida por auto-irradiação devido a reações com nêutrons térmicos (Figuras 3.31 e 3.32); iv) considera-se que o mínimo sinal TL que pode ser medido é cinco vezes maior que a corrente de fundo do sistema detector (maior que $1,5 \times 10^{-10}$ A); por extrapolação, obtém-se a fluência mínima detectável. Os quadros A e B da Figura 3.31 para amostras de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{KBr}$,

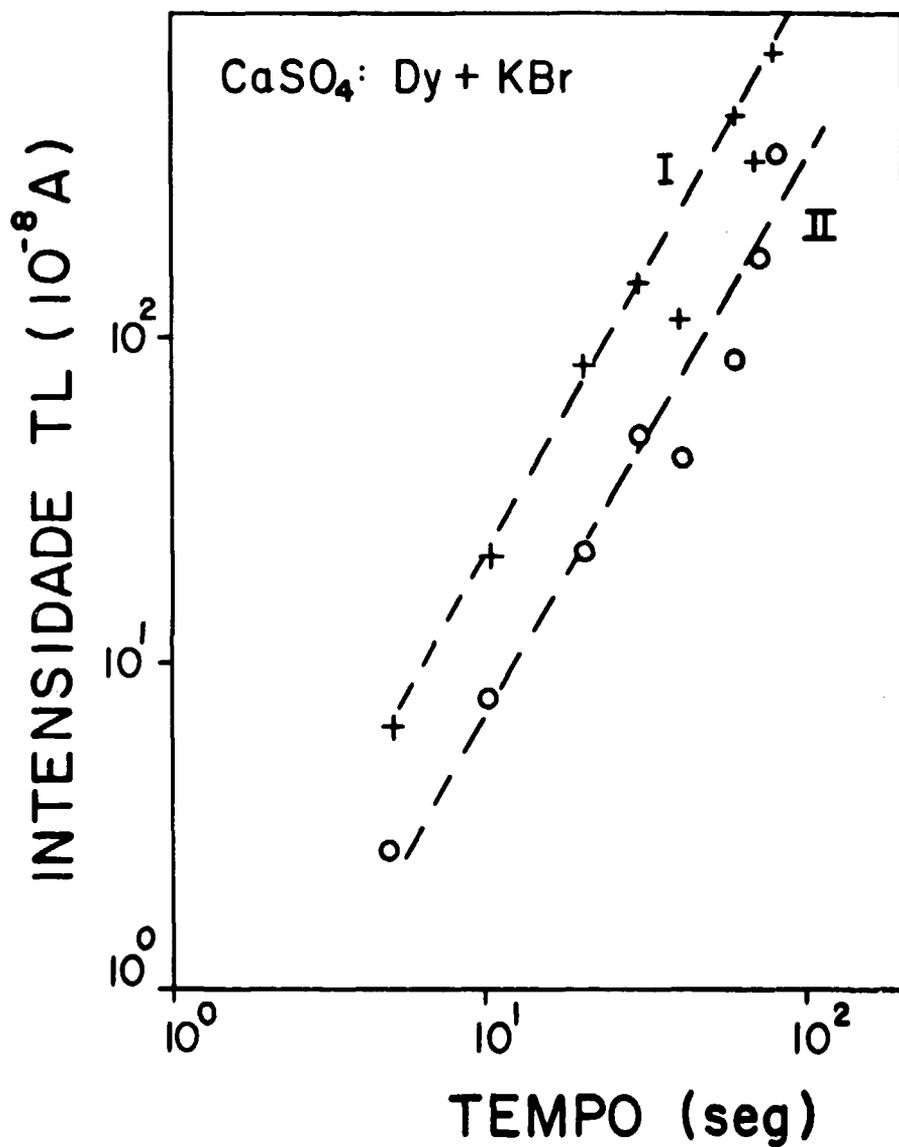


Figura 3.30 - Intensidade TL em Função do Tempo de Irradiação na Est-4 do Reator IEAR-1 para Amostras de CaSO₄:Dy; Tempos de Auto-Irradiação: 24 (I) e 1h (II)

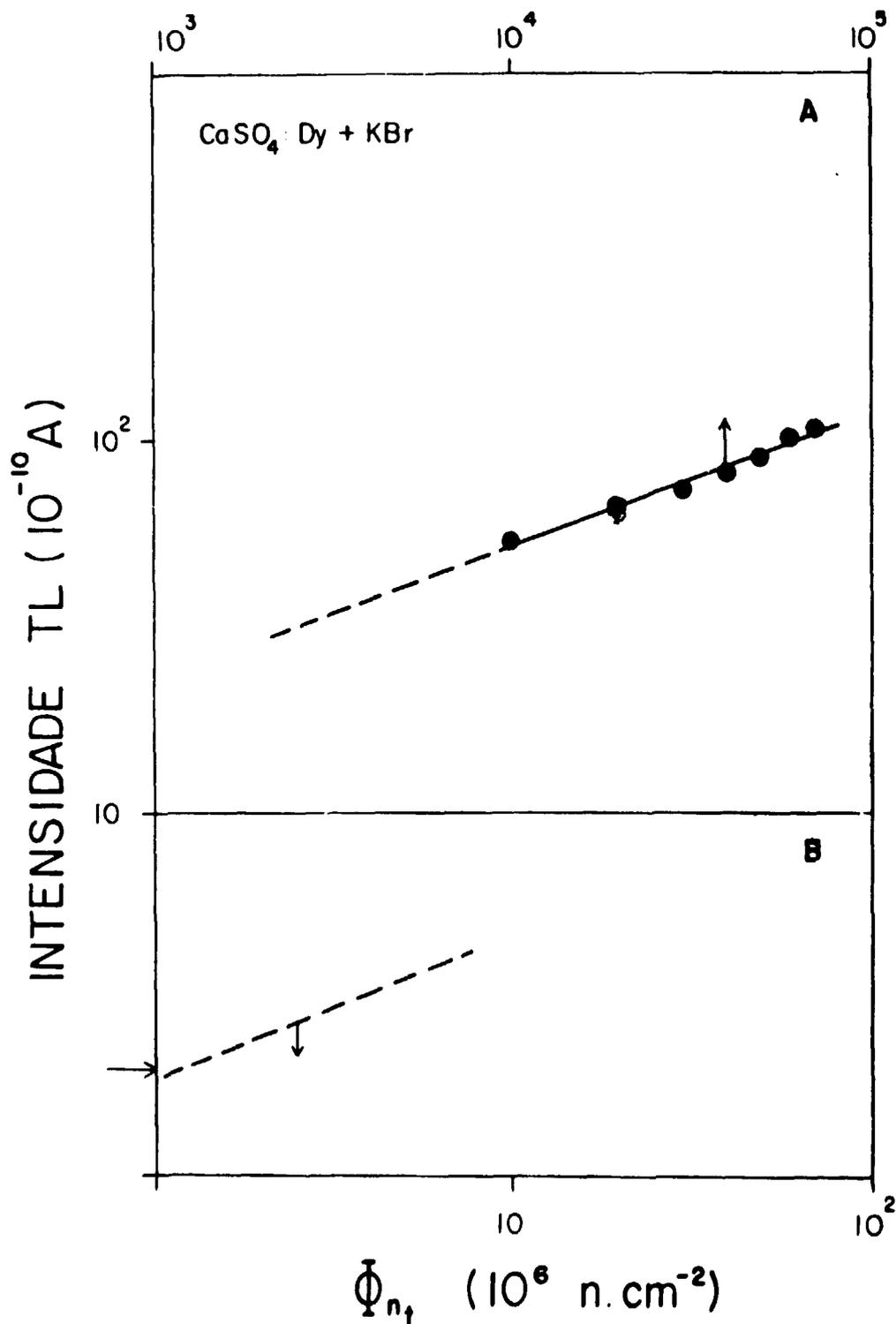


Figura 3.31 - Intensidade TL em Função da Fluência de Nêutrons Térmicos para Amostras de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{KBr}$ Irradiadas em Uma Fonte de ^{252}Cf

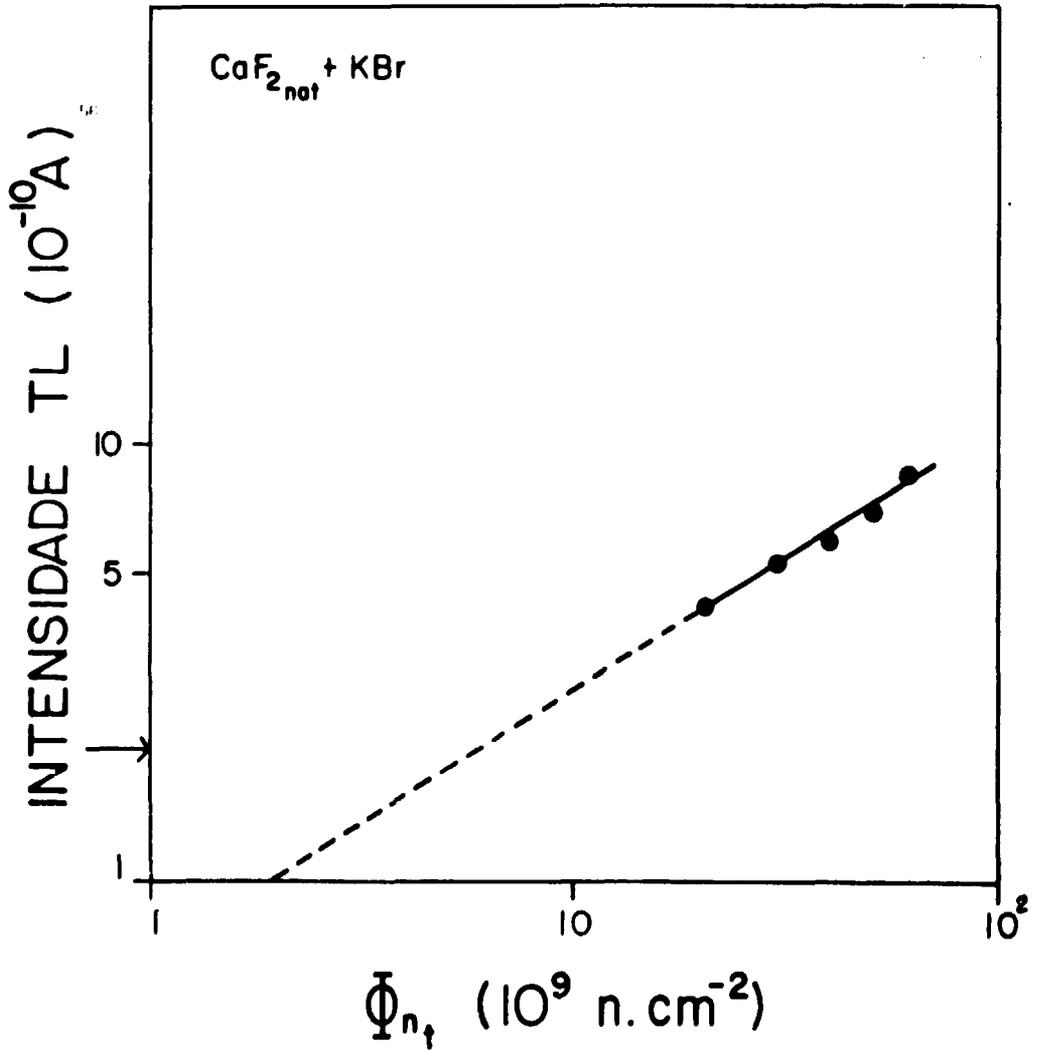


Figura 3.32 - Intensidade TL em Função da Fluência de Nêutrons Térmicos para Amostras de CaF₂_{nat} + KBr Irradiadas em Uma Fonte de ²⁵²Cf

referem-se respectivamente à reta obtida da subtração do sinal TL (com e sem envoltório de cádmio) e à extrapolação dessa mesma reta para menores fluências.

A Figura 3.32, para amostras de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$, representa a reta obtida da subtração do sinal TL e a sua extrapolação para menores fluências.

A mínima fluência detectável de nêutrons térmicos é da ordem de 10^6 n.cm^{-2} e 10^9 n.cm^{-2} para pastilhas de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{KBr}$ e $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$, respectivamente. Esse resultado nos leva a utilizar preferencialmente amostras de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{KBr}$, quando o interesse for de detectar baixas fluências neutrônicas, devido à relativamente maior sensibilidade TL das pastilhas de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{KBr}$.

CONCLUSÕES

A utilização de discos de CaF_2nat e de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy}$ (fósforos termoluminescentes) misturados com KBr (ativador e agregante) e compactados a frio mostra que:

- 1) A adição de KBr no caso, é fundamental no aumento da sensibilidade TL dessas amostras;
- 2) A forma da curva de emissão termoluminescente das misturas do fósforo com o ativador não é alterada. No entanto, a temperatura em que ocorre a amplitude máxima do pico de emissão TL da mistura é deslocada em relação àquela da amplitude máxima do pico de emissão dos fósforos isoladamente;
- 3) A possibilidade de ocorrência de uma reação química favorecida pelos tratamentos térmicos nos discos de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{KBr}$ é sugerida como responsável tanto pela mudança de cor dessas amostras quanto pela mudança de sensibilidade TL de algumas amostras em várias proporções;
- 4) Existe um compromisso entre a sensibilidade TL do fósforo (que é proporcional a quantidade relativa de fósforo) e a atividade produzida na amostra (portanto, com a quantidade relativa do ativador). Dessa forma, obtém-se uma proporção otimizada dos materiais que compõe os discos;
- 5) Dos dois tipos de amostras utilizadas, observa-se que sem a influência dos mecanismos de deformação (pressão) os discos de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy}$ são os mais sensíveis;
- 6) A atividade induzida atua como agente excitador e é responsável pelo armadilhamento dos portadores de carga;
- 7) A mínima influência detectável de nêutrons térmicos para os discos de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{KBr}$ e $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{KBr}$ é da ordem de 10^9 n.cm^{-2} e 10^6 n.cm^{-2} , respectivamente.

O método apresentado para a detecção de nêutrons térmicos tem a vantagem de oferecer um detector de pequeno tamanho, fácil de manusear, baixo custo, sensibilidade e discriminação completa dos efeitos devido aos gamas.

ABSTRACT

Cold-pressed samples of $\text{CaF}_2 + \text{KBr}$ and $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{KBr}$ have been used in the thermal neutron detection by the thermoluminescence technique.

The amount of 100 mg of the TL phosphor added to 80 mg of KBr showed to be the optimum mixture for ~~maximum~~ sensitivity as well as for handling the dosimeters.

The detection is based on the self-irradiation of the phosphor by the Br isotopes activated by exposure to a neutron-gamma field. The prompt dose and consequently the gamma contribution are erased by post-irradiation thermal annealing.

A linear dependence has been found between the TL self-induced signal and the thermal neutron flux in the range $10^6 \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1} - 10^{12} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. The minimum detectable fluence has been determined as 10^9 n.cm^{-2} and 10^6 n.cm^{-2} using pellets of $\text{CaF}_2 + \text{KBr}$ and $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{KBr}$, respectively.

The main results in this work suggest the use of $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{KBr}$ pellets and TL as a complementary technique for thermal neutron detection.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS*

1. ATTIX, F. H. & TOCHILIN, E. *Radiation dosimetry*. v.3. New York, N. Y., Academic, 1969.
2. BECKER, K. *Solid state dosimetry*. Cleveland, Ohio, CRC, 1973.
3. BECKURTZ, K. H. & WIRTZ, K. *Neutron physics*. Berlin, Springer, 1964.
4. CHASE, G. D. & RABINOWITZ, J. L. *Principles of radioisotope methodology*. 3.ed. Minneapolis, Minn., Burgess, 1967.
5. DE SOETE, D.; GIJBILS, R.; MOSTE, J. *Neutron activation analysis*. London, Wiley, 1972.
6. FENYVER, E. & HARMAN, O. *The physical principles of nuclear radiation measurement*. New York, N. Y., Academic, 1969.
7. GOLDBERG, M. D.; MUGHABGHAB, S. F.; MAGURNO, B. A.; MAY, V. M. *Neutron cross sections, v.2A: Z=21 to 40*. 2.ed. Upton, N. Y., Brookhaven National Lab., Feb. 1966. (BNL-325, v.2A, Suppl. 2).
8. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. *Neutron fluence measurements*. Vienna, 1970. (Technical report series, 107).
9. KATHURIA, S. P.; SUNTA, C. M.; SASIDHARAM, R.; JAIN, V. K. Spurious thermoluminescence in TL phosphors. In: PROCEEDINGS of the national symposium on thermoluminescence and its applications, Kalpakkam, Madras, India, 12 Feb. 1975. Bombay, Bhabha Atomic Research Centre, 1975. p.690-8.
10. McDOUGALL, D. J., ed. *Thermoluminescence of geological materials: proceedings of a NATO Advanced Research Institute on applications of thermoluminescence to geological problems*. London, Academic, 1968.
11. MAYHUGH, M. R.; WATANABE, S.; MUCCILO, R. Thermal neutron dosimetry by phosphor activation. In: MEJDAHL, V., ed. *Proceedings of the third international conference on luminescence dosimetry held at the Danish Atomic Energy Commission Research Establishment Risoe, October 11-14, 1971*. Risoe, Danish Atomic Energy Commission, Dec. 1971. p.1040-50. (RISO Report-249 (Pt.III)).

(*) As referências bibliográficas relativas a documentos localizados pelo IEA foram revistas e enquadradas na NB-66 de ABNT.

12. MUCCILO, R. *Dosimetria termoluminescente de nêutrons com CaF₂ natural*. São Paulo, 1970. (Dissertação de mestrado).
13. OKUNO, E. *Propriedades termoluminescentes do fluoreto de cálcio natural*. São Paulo, 1971. (Tese de doutoramento).
14. PEARSON, D. W. & MORAN, P. R. *Annual progress report of the Dept. of Phys. of Radiol., Un. Wisconsin, 1973*. [s.n.t.].
15. PEARSON, D. W.; WAGNER, J.; MORAN, P. R. *Annual progress report of the Dept. of Phys. of Radiol., Un. Wisconsin, 1974*. [s.n.t.].
16. PRICE, W. J. *Nuclear radiation detection*. New York, N. Y., McGraw-hill, 1958.
17. PROUZA, Z. & RAKOVIC, M. The resonance neutrons in activation analysis, Part 1: theory. *Isotopenpraxis*, 3(10):389-94, Oct. 1967.
18. PRZIBRAM, K. *Irradiation colours and luminescence*. London, Pergamon, 1956.
19. RANDALL, J. T. & WILKINS, M. H. F. *Proc. R. Soc.*, A189:366, 1945.
20. YAMASHITA, T.; NADA, N.; ONISHI, H.; KITAMURA, S. Calcium sulfate activated by thulium or dysprosium for thermoluminescence dosimetry. *High Phys.*, 21(2):295-300, Aug. 1971.
21. YAMASHITA, T.; NADA, N.; ONISHI, H.; KITAMURA, S. Calcium sulfate phosphor activated by rare earth. In: AUXIER, J. A.; BECKER, K.; ROBINSON, E. M., eds. *Proceedings of the second international conference on luminescence dosimetry, held at Gatlinburg, Tenn., September 23-26, 1968*. Oak Ridge, Tenn., Oak Ridge National Lab., [s.d.]. p.4-17. (CONF-680920).



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

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