

LA 7903162



**ESTUDO DE EMISSÕES TERMOLUMINESCENTES DE FÓSFOROS
DOSIMÉTRICOS; DETECÇÃO DE NÉUTRONS INTERMEDIÁRIOS**

Eliana Navarro dos Santos

**DISSERTAÇÃO E TESE - IEA 104
IEA - DT - 104**

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

**ESTUDO DE EMISSÕES TERMOLUMINESCENTES DE FÓSFOROS
DOSIMÉTRICOS; DETECÇÃO DE NÉUTRONS INTERMEDIÁRIOS**

Eliana Navarro dos Santos

Dissertação para obtenção do Título de "Mestre em Ciências - Área de Concentração Tecnologia Nuclear" - Orientador Dr. Reginaldo Muccillo. Apresentada e defendida em 28 de março de 1978, no Instituto de Energia Atômica.

Série DISSERTAÇÃO E TESE IEA

INIS Categories and Descriptors

E41

Thermoluminescence

Neutron detection

Calcium sulfates

Fluorite

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

SUMÁRIO

	Página
I – INTRODUÇÃO	1
II – PARTE EXPERIMENTAL	5
II.1 – Amostras	5
II.2 – Detecção da Termoluminescência	8
II.3 – Fontes de Radiação	11
III – RESULTADOS E DISCUSSÃO	13
III.1 – Caracterização dos Materiais	13
a – Dependência da Intensidade de Emissão TL com a Proporção Relativa dos Componentes em $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$ e $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$	13
b – Determinação da Sensibilidade Relativa de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$ e de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$	22
III.2 – Detecção de Nêutrons Intermediários em Campos Mistos n-Gama	22
III.3 – Análise de Curvas de Emissão Termoluminescente de Fósforos Compostos ($\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$ e $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$)	33
IV – CONCLUSÕES	38
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	42

ESTUDO DE EMISSÕES TERMOLUMINESCENTES DE FÓSFOROS DOSIMÉTRICOS; DETECÇÃO DE NÉUTRONS INTERMEDIÁRIOS

Elisana Navarro dos Santos

RESUMO

Foram feitos estudos relativos às emissões termoluminescentes de fósforos dosimétricos, visando a detecção de nêutrons na faixa de energia intermediária. Este intervalo foi definido como sendo desde a energia de corte do cádmio até 0,1 MeV, por analogia ao que é adotado no campo da metrologia nuclear. A medida de termoluminescência foi feita em amostras policristalinas de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$ e de $\text{CaF}_2(\text{nat}) + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$ compactadas a frio. A detecção de nêutrons é feita indiretamente pela auto-irradiação provocada pela ativação neutrônica.

Essas pastilhas apresentam diferentes dependências da amplitude de emissão TL com o tratamento mecânico, mas o efeito de auto-blindagem foi constatado ter a mesma importância nos dois tipos de amostras.

Estudos de sensibilidade foram feitos comparativamente à de pastilhas de $^6\text{LiF}:\text{Mg,Ti}$ (TLD-600), obtendo-se que, para a mesma dose de radiação, as amostras que contém $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ ($\text{CaF}_2(\text{nat})$) apresentam uma amplitude de emissão TL 24 (3) vezes superior à das pastilhas de TLD-600.

Os resultados que se seguem estão relacionados às pastilhas que contém como fósforo o $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$, visto que sua elevada sensibilidade relativamente às amostras de fluorita.

O comportamento de emissão TL nesses materiais foi também verificado através de irradiações nos campos mistos n-gama do reator IEAR-1 e de uma fonte de ^{252}Cf , tendo sido estimada a fluência mínima detectável: $\sim 3,5 \times 10^5 \text{ n.cm}^{-2}$.

Foi identificado, através da determinação da meia-vida efetiva da emissão TL, o $^{165}_{66}\text{Dy}$ como sendo o principal isótopo responsável pela termoluminescência auto-induzida nesses amostras.

Os resultados obtidos sugerem a utilização de pastilhas de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$, na determinação de fluências de nêutrons intermediários em fontes isotópicas.

1 - INTRODUÇÃO

A luminescência emitida durante o aquecimento de um sólido, após este ter sido submetido a uma forma qualquer de excitação, é denominada luminescência termicamente estimulada ou termoluminescência (TL). Esse processo envolve, basicamente, duas etapas: primeira, a de formação de pares elétron-buraco, por meio de um agente excitante; e segunda, de recombinação radiativa dos portadores de carga, liberados termicamente de níveis meta-estáveis, nos chamados centros luminescentes ou centros de recombinação. Esses níveis meta-estáveis, nos quais os portadores permanecem, durante um certo intervalo de tempo, antes de ocorrer a recombinação, são chamados armadilhas, e analogamente aos centros luminescentes, são formados por defeitos ou já existentes nos sólidos, ou por impurezas incorporadas, ou criadas pela própria exposição à radiação.

Aprovada para publicação em Junho/1978.

Os principais parâmetros relacionados aos níveis armadilhadores são: a) a seção de choque S_T para a captura de elétrons (ou buracos), relativa a uma determinada armadilha; b) a "profundidade" da armadilha, E , ou energia de ativação térmica necessária para a liberação de um elétron (ou buraco) de uma armadilha; e c) a concentração de armadilhas N .

A emissão termoluminescente de um sólido em função da sua temperatura fornece a chamada curva de emissão TL, onde a distribuição dos níveis armadilhadores é caracterizada pela presença de um ou mais "picos de emissão". A intensidade, a forma, e a posição dos picos de emissão TL estão relacionados com os parâmetros de armadilhamento dos portadores de carga e, portanto, a análise dessa curva constitui um dos métodos utilizados na sua determinação.

A interpretação desses picos de emissão TL tem um caráter puramente estatístico, baseado numa distribuição Maxwellian de energias térmicas para os elétrons (buracos) nas armadilhas. Desse modo, a probabilidade de um portador de carga escapar de uma armadilha de profundidade E , à uma temperatura T é:

$$p = s e^{-E/kT} \quad (1.1)$$

onde k é a constante de Boltzmann, e s é o chamado fator pré-exponencial ou fator de frequência.

O primeiro tratamento matemático para a representação dos picos de emissão TL foi feito por Randall e Wilkins^(1,1), e foi baseado nas seguintes hipóteses:

- Não há superposição dos picos de emissão;
- A probabilidade de rearmadilhamento de um portador de carga liberado é desprezível;
- A intensidade termoluminescente é diretamente proporcional à velocidade de desarmadilhamento.

Então, se em um instante t qualquer, n representa a concentração de portadores de carga armadilhados, a intensidade TL é:

$$I = C \frac{dn}{dt} \quad (1.2)$$

onde C é uma constante de proporcionalidade e de (1.1), tem-se que:

$$\frac{dn}{dt} = ns e^{-E/kT} \quad (1.3)$$

a solução desta equação é:

$$n = n_0 \exp \left\{ - \frac{s}{\beta} \int_{T_0}^T e^{-E/kT'} dT' \right\} \quad (1.4)$$

nesta equação n_0 representa a concentração inicial de elétrons (buracos) armadilhados, e β (K/seg) é a velocidade de aquecimento, que está relacionada com a temperatura inicial T_0 , da amostra por:

$$T = T_0 + \beta t \quad (1.5)$$

de (1.2) e (1.4) resulta:

$$I(T) = n_0 s e^{-E/kT} \exp\left\{-\frac{s}{\beta} \int_{T_0}^T e^{-E/kT'} dT'\right\} \quad (1.6)$$

Assim, os picos de emissão termoluminescente são interpretados como sendo devidos a um crescimento inicial da intensidade TL, numa forma exponencial com a temperatura. Após atingir um valor máximo a intensidade diminui gradualmente devido à redução na concentração de portadores de carga armadilhados.

Dentre os parâmetros relacionados à termoluminescência, um dos mais importantes é a energia de ativação térmica, e uma variedade de métodos tem sido desenvolvidos para a sua determinação⁽¹²⁾. Alguns destes métodos tem como fundamento a determinação de E a partir do valor da temperatura relativa à amplitude máxima, T_M , de um determinado pico de emissão TL. Deste modo, quando $T = T_M$,

$\frac{\partial I(T)}{\partial T} = 0$ e de (1.6) resulta:

$$\frac{\beta E}{k T_M^2} = s e^{-E/kT_M} \quad (1.7)$$

Em geral (1.7) é utilizada na determinação de s . Desta equação vê-se que aumentando a velocidade de aquecimento, T_M desloca-se para temperaturas mais elevadas e então, para duas velocidades de aquecimento diferentes obtêm-se duas equações do tipo (1.7), a cada uma delas correspondendo um valor de β e de T_M . Dividindo as duas equações resulta:

$$\frac{E}{k} = \left[\frac{T_{M1} - T_{M2}}{T_{M1} T_{M2}} \right]^{-1} \ln \left[\left(\frac{\beta_1}{\beta_2} \right) \left(\frac{T_{M2}^2}{T_{M1}^2} \right) \right] \quad (1.8)$$

a partir da qual o valor de E pode ser determinado sem que seja necessário conhecer o valor de s .

Outros métodos que podem ser utilizados na determinação de E e de s envolvem aproximações geométricas ou o uso de diversas velocidades de aquecimento. Um resumo destes métodos e uma discussão sobre a viabilidade de cada um deles é dada por Kivits e Hagebeuk⁽⁶⁾.

Um outro parâmetro de importância é o valor de n_0 , que está diretamente relacionado com o número total de pares elétron-buraco formados durante a irradiação de um sólido, e que é representado pela área sob a curva de emissão. Na maior parte dos materiais, as propriedades termoluminescentes são alteradas, dependendo da dose de radiação recebida. Para doses de radiação muito elevadas, essas alterações são devidas à produção de agregados, "voids" e mudanças no parâmetro da rede cristalina, que podem causar uma redução considerável na termoluminescência exibida pelo material. Desta forma, o estudo das emissões TL pode ser empregado na análise de danos de radiação nos sólidos.

Uma das aplicações mais desenvolvidas do fenômeno da termoluminescência consiste na detecção da radiação ionizante, tais como partículas α , β , radiação γ , X, UV e nêutrons. A detecção de nêutrons, em particular, é a que apresenta maiores problemas, devido à presença da radiação γ nos campos de radiação.

Existem, basicamente, três mecanismos responsáveis pela detecção de nêutrons:

- a) Transmutações nucleares induzidas por nêutrons, com a emissão de partículas carregadas, como por exemplo as reações (n,p) e (n,α) , onde a dose de radiação recebida pelo material está relacionada com o número total de ionizações produzidas pelas partículas emitidas;
- b) Transmutações nucleares induzidas por nêutrons com emissão posterior de radiação γ (processo de captura radiativa), no qual as partículas emitidas durante o decaimento dos núcleos ativados, em geral raios beta, produzem ionizações; e
- c) Espalhamento elástico, onde a detecção é feita através de ionizações produzidas pelas partículas de recuo, carregadas.

A detecção de nêutrons através da termoluminescência pode ser feita de duas maneiras: 1) através da medida direta da TL de um sólido previamente exposto à radiação. Esta técnica em geral requer o uso de dois materiais, sendo que um deles deve possuir uma secção de choque de interação relativamente elevada, afim de serem desprezíveis os efeitos produzidos pela radiação γ . O outro material, ao contrário do primeiro, deve possuir uma secção de choque de interação relativamente baixa, destinando-se à detecção da radiação γ ; 2) A segunda técnica, também chamada de medida indireta, refere-se à auto-irradiação produzida pelo decaimento de núcleos ativados durante o processo de irradiação. Neste caso, o sólido irradiado é tratado termicamente antes de se realizar a medida da termoluminescência auto-induzida, com o objetivo de se eliminar os efeitos das reações nucleares de meias-vidas relativamente curtas, e da radiação γ . A principal vantagem da técnica de auto-irradiação de fósforos TL é a eliminação da componente devida à radiação γ dos campos de radiação.

Cada um dos mecanismos responsáveis pela interação do nêutron com a matéria, descritos acima, ocorre com maior ou menor predominância para um determinado tipo de núcleo alvo, e para uma dada energia do nêutron. Nêutrons, em reatores nucleares e mesmo em fontes isotópicas, são distribuídos em uma faixa relativamente grande de energia, sendo necessário uma divisão do espectro total de nêutrons devido a secção de choque de interação, dos diversos elementos, ser uma função da sua energia. Assim sendo, o espectro de nêutrons costuma ser dividido (esta divisão é arbitrária pois não existem contornos bem definidos) em três regiões:

- a) Região térmica, consistindo de nêutrons de energias em equilíbrio térmico com o moderador;
- b) Região rápida, composta por nêutrons provenientes da fissão nuclear; e
- c) Região intermediária, caracterizada por nêutrons cujas energias encontram-se entre as duas primeiras.

Na região intermediária, os nêutrons encontram-se no processo de moderação, sendo que a maior fração de energia perdida deve-se à colisões elásticas com núcleos leves.

A forma geral do espectro de nêutrons na região intermediária é calculada admitindo-se que durante o processo de moderação, não há absorção de nêutrons, resultando numa dependência com o inverso da energia (E) do nêutron. Esta dependência com $1/E$ é válida mediante certas condições⁽⁴⁾, e

quando estas não são verificadas, outras representações são obtidas (do tipo $1/E^{(1+m)}$ onde m é uma constante diferente de zero).

Dentro de cada região do espectro, é comum uma subdivisão em energias do nêutron, devido à variação das secções de choque de interação dos materiais. De acordo com a subdivisão feita no campo da metrologia nuclear⁽⁴⁾, a região intermediária sobre um intervalo que se inicia com a energia de corte do material usado como blindagem para nêutrons térmicos (em geral, a energia de corte do cádmio), e possui como limite superior a energia de 100 KeV. Dentro desse intervalo, os nêutrons são categorizados segundo as suas energias em: nêutrons epitérmicos, como aqueles que possuem energias logo acima à energia térmica; nêutrons ressonantes, de 1 eV até 1000 eV, sendo que nesta faixa de energia vários elementos exibem uma forte absorção de nêutrons em energias bem definidas (chamadas ressonâncias); e nêutrons intermediários, de 1 KeV a 100 KeV. Esta última faixa é caracterizada como aquela sobre a qual existe menos informações por ser a de mais difícil acesso.

A detecção de nêutrons nessa região tem como um dos principais objetivos a determinação do fluxo intermediário, que constitui um elemento essencial nos cálculos de física de reatores e de danos de radiação. Uma das reações mais utilizadas na determinação do fluxo intermediário é a de captura radiativa, e a técnica mais comum é a de ativação de folhas metálicas. Contudo, nas fontes isotópicas, onde o fluxo de nêutrons é da ordem de 10^6 a 10^7 n.cm⁻².seg⁻¹, o tempo de irradiação necessário para produzir uma ativação mensurável é relativamente longo. Portanto, a determinação do fluxo intermediário constitui um problema não solucionado totalmente, principalmente na região de energia entre 1 KeV a 100 KeV, devido às aproximações inerentes ao cálculo do fluxo e à necessidade de se conhecer o espectro de nêutrons nas diferentes fontes de radiação.

O objetivo deste trabalho é a detecção de nêutrons intermediários pela técnica de auto-ativação de fósforos termoluminescentes, visando à determinação de fluências de nêutrons, nessa região de energia, em fontes isotópicas.

As etapas a serem seguidas compreendem: a preparação de amostras compactadas a frio, compostas por um fósforo TL, um agregante, e um elemento (ativador) com secção de choque para ativação relativamente alta, nesta faixa de energia; a análise das emissões termoluminescentes dos componentes isoladamente e da mistura como um todo, em campos de radiação X e n-gama do reator IEAR-1 e de uma fonte de ²⁵²Cf. A separação da componente térmica é feita com o uso de blindagens de cádmio. Pretende-se ainda obter a meia-vida efetiva da emissão TL determinando-se, assim, o isótopo responsável pela termoluminescência induzida nas amostras.

II – PARTE EXPERIMENTAL

II.1 – Amostras

O critério de seleção adotado para os fósforos termoluminescentes foi baseado em algumas de suas propriedades características, tais como eficiência intrínseca, sensibilidade à radiação ionizante e fácil obtenção. Dentre os materiais que preenchem estes requisitos foram escolhidos o fluoreto de cálcio natural (fluorita) de cor verde, e o sulfato de cálcio dopado com disprósio.

A fluorita é proveniente de Criciúma, em Santa Catarina, sendo encontrada na forma de um mineral composto por camadas de colorações diferentes, que são produzidas pelos efeitos de terras raras, centros de cor e partículas coloidais. Além das terras raras, a fluorita contém impurezas de Al, Mg e Mn⁽⁷⁾, como a maior parte dos minerais.

As amostras de coloração verde receberam o mesmo tratamento que o sugerido por Okuno⁽⁷⁾. Este material foi pulverizado em almofariz de porcelana e policristais com granulação entre 85 μ e

185 μ foram separados para uso. O fósforo foi homogeneizado com um tratamento térmico de 600°C/20 min em cadinho de porcelana.

O sulfato de cálcio dopado com disprósio foi crescido no laboratório pela técnica de evaporação, já conhecida da literatura⁽¹⁴⁾. Todas as experiências foram realizadas com policristais possuindo uma concentração de 0,1% em mol de Dy e, para cada série destas, amostras de um só crescimento foram utilizadas. Por meio de uma análise de fluorescência de raios-x, realizada pelo CEQ-APE do Instituto de Energia Atômica, foram detectadas as seguintes impurezas.

Impureza	Cu	Fe	Zn
Quantidade (%)	0,05	0,083	0,02

Uma vez crescidos, os cristais foram lavados com álcool comum e secos em uma placa aquecedora Corning modelo PC - 100, à 100°C por cerca de 20 min sendo posteriormente pulverizados em almofariz de ágata. Para fins comparativos, foram escolhidos policristais com a mesma granulação que a fluorita, tendo sido estes submetidos a um tratamento térmico de 600°C/2 h, em cadinho de porcelana, o que permite a eliminação de impurezas orgânicas, proporcionando uma maior reprodutibilidade nos resultados.

Como foi visto anteriormente, a detecção de nêutrons por medidas de ativação requer um isótopo cuja seção de choque para ativação seja apreciável, na faixa de energia desejada. Na maioria dos casos, um dos elementos que compõe o fósforo apresenta esta característica. Contudo, quando o objetivo é detectar fluências menores ou da mesma ordem de grandeza que aquelas que são encontradas nas fontes isotópicas, tem-se três alternativas:

- aumentar a concentração do dopante, se ele possuir isótopos com seções de choque para interação relativamente elevadas, como no caso do Dy no sulfato de cálcio (embora a concentração da impureza esteja intimamente relacionada à sensibilidade do fósforo⁽²⁾);
- adicionar o mesmo elemento, como na situação anterior, mas sob a forma de um composto (como óxido, p.ex.);
- adicionar um outro composto que atue como ativador.

Considerando a importância do elemento ativador e por se tratar de medidas comparativas entre fósforos diferentes, optou-se pela adição de um composto, formando-se uma mistura relativamente homogênea. Desta forma, foi escolhido o óxido de disprósio (Dy₂O₃), contendo 28,18% de ¹⁶⁴Dy cujas seções de choque para ativação com nêutrons térmicos são da ordem de 2600 b e, na região de nêutrons intermediários, entre 400 b e 200 mb⁽¹³⁾. O isótopo radioativo formado, ¹⁶⁵Dy, é um emissor β^- que decai para o ¹⁶⁵Ho, estável, com uma meia-vida de aproximadamente 2,3 h. Na tabela abaixo estão relacionadas as energias, E β , dos raios β^- emitidos (em MeV) e suas intensidades relativas (em %)⁽¹¹⁾.

E β (MeV)	Intensidade (%)
0,21	0,06
0,29	1,4
1,19	13
1,28	85

Dois óxidos de disprósio foram utilizados: um da Alfa Inorganics (99,99%), cujo teor de impurezas, determinado por análise espectrográfica semi-quantitativa, realizada pelo CEO-APE do I.E.A., é relacionado a seguir.

Impureza	Quantidade Relativa (%)
Cálcio	~ 0,1
Holmio	~ 0,06
Fósforo	≤ 0,045
Europio	< 0,02
Antimônio	~ 0,015
Cobre	~ 0,015
Silício	~ 0,015
Íterbio	< 0,015
Alumínio	~ 0,01
Magnésio	~ 0,006

O segundo provém da Johnson Matthey Chemicals Limited, sendo espectroscopicamente puro.

As amostras foram trabalhadas sob a forma de pastilhas prensadas a frio, evitando-se a perda excessiva de material e, ao mesmo tempo, facilitando o seu manuseio. A substância usada como agregante foi o cloreto de potássio (KCl) da E. Merck, para análise, com impurezas especificadas pelo fabricante. O KCl foi selecionado com a mesma granulação que os fósforos e durante os períodos de sua não utilização, permaneceu em uma estufa, da Fanem Ltd., devido à sua higroscopicidade.

A pesagem dos três elementos (fósforo, ativador e agregante) foi feita em uma balança da Mettler, modelo H35, em quantidades convenientes para a produção de uma pastilha por vez. A importância relativa deste procedimento reside na homogeneização da mistura, feita manualmente.

A técnica de prensagem a frio consiste na compactação de pós em um molde metálico, onde a pressão aplicada deve ser suficientemente elevada para formar uma peça densa e resistente. Este método é extensivamente usado na produção de cerâmicas técnicas, cerâmicas magnéticas, materiais refratários e outros.

As pastilhas, denominadas A, foram obtidas com uma prensa mecânica da Carver Laboratory, com carga máxima de 25000 lb (11,35 ton.) e molde de aço inoxidável. As peças formadas sob a forma de discos possuíam 13 mm de diâmetro. A carga aplicada foi de 20000 lb (9,08 ton.).

Os discos do tipo B foram produzidos em uma prensa hidráulica construída pela Mecânica Rio, com capacidade de produção de nove discos de uma só vez, molde de aço e pressão máxima atingida de 1200 lb/pol². O diâmetro das pastilhas é de 10 mm.

O tempo total de prensagem, que foi de 3 min, e a espessura dos compactados, de 1 mm foram os parâmetros fixados arbitrariamente. Deste modo, os discos de $\phi = 13$ mm possuíam um peso total de 300 mg e, os discos de $\phi = 10$ mm, 180 mg.

Durante a compactação verifica-se a perda de uma grande quantidade variável de agregado policristalino; por isso, discos com até 1%⁽¹⁸⁾ a menos em peso foram separados para uso. Após cada

seleção, as amostras foram trabalhadas em iguais condições, sendo que durante quase todo o transcorrer das experiências as pastilhas permaneceram envoltas em papel preto, para evitar a sensibilização pela exposição à luz ambiente^(7,14).

Algumas das propriedades características das misturas utilizadas, denominadas de I e II, onde os fósforos são o $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ e o $\text{CaF}_2:\text{nat}$ respectivamente, foram comparadas com as do TLD-600, da Harshaw Chemical Co., na forma de pastilhas.

II.2 – Detecção da Termoluminescência

O diagrama abaixo representa, de modo simplificado, o analisador termoluminescente da Harshaw modelo 2000, que consiste de dois módulos: o 2000A que contém uma prancheta (H) sobre a qual é posicionada a amostra. O aquecimento da prancheta e conseqüentemente da amostra é produzido por um sistema interno (S). A emissão luminosa obtida durante o aquecimento atravessa um filtro (F) de absorção de longos comprimentos de onda, evitando que a maior parte do espectro infravermelho, característico da prancheta, se some ao sinal TL. A seguir, este sinal é coletado numa fotomultiplicadora (P), com resposta espectral do tipo S-11, posicionada logo acima do filtro. Os fotoelétrons resultantes são amplificados (A) e uma corrente D.C. na faixa de 10^{-12} A a 10^{-6} A é detectada (E).

A corrente de fundo mínima e o ganho constante são obtidos com a blindagem eletrostática e magnética que envolve a fotomultiplicadora, bem como um sistema de refrigeração para a base da fotomultiplicadora.

Tem-se ainda uma entrada destinada à passagem de um fluxo variável de gás inerte (G), o que favorece o resfriamento da amostra, evita a oxidação da prancheta, e contribui na eliminação da TL devida à adsorção de contaminantes na própria prancheta.

O módulo 2000B consta de uma fonte de alta tensão (T), variável desde 500V até 1500V, que alimenta a fotomultiplicadora.

O fluxo de corrente amplificada pode fornecer dois tipos de registro: o primeiro é sob a forma de corrente, que é a medida por um eletrômetro (E) numa faixa útil de 10^{-12} a 10^{-6} A; o segundo é obtido com a integração da corrente coletada (I) durante o tempo total de medida, e que corresponde à área integrada sob a curva de emissão. A variação da corrente medida pelo espectrômetro pode ser monitorada em um registrador, obtendo-se deste modo a curva de emissão para dadas condições da amostra e do sistema detector.

As medidas foram realizadas com duas versões modificadas deste sistema. Na primeira, o elemento aquecedor foi uma placa fina de kantal, com o aquecimento produzido externamente por um variac. O aumento da temperatura com o tempo foi verificado por meio de um termopar de cromel-alumel, soldado à prancheta e ligado a um registrador da Varian, modelo G-2500, que foi também usado para medir as curvas de emissão. Na Figura 2.1 tem-se uma curva de aquecimento típica (B). O filtro de absorção infravermelho foi substituído pelo modelo B140 (banda passante centrada em 400 nm) da Oriel Optics Corporation. As medidas obtidas com este sistema serão descritas como sendo do tipo M.

Na segunda versão, o aquecimento foi produzido pelo próprio sistema interno, mas modificado adequadamente de modo a possibilitar a escolha da velocidade de aquecimento. A Figura 2.1 mostra a curva (A) típica fixada para as experiências (tipo N).

As curvas de emissão e de aquecimento foram obtidas simultaneamente com o uso de dois registradores da Hewlett-Packard modelo 680-M. Para estas medidas utilizou-se de um fluxo controlado de nitrogênio gasoso.

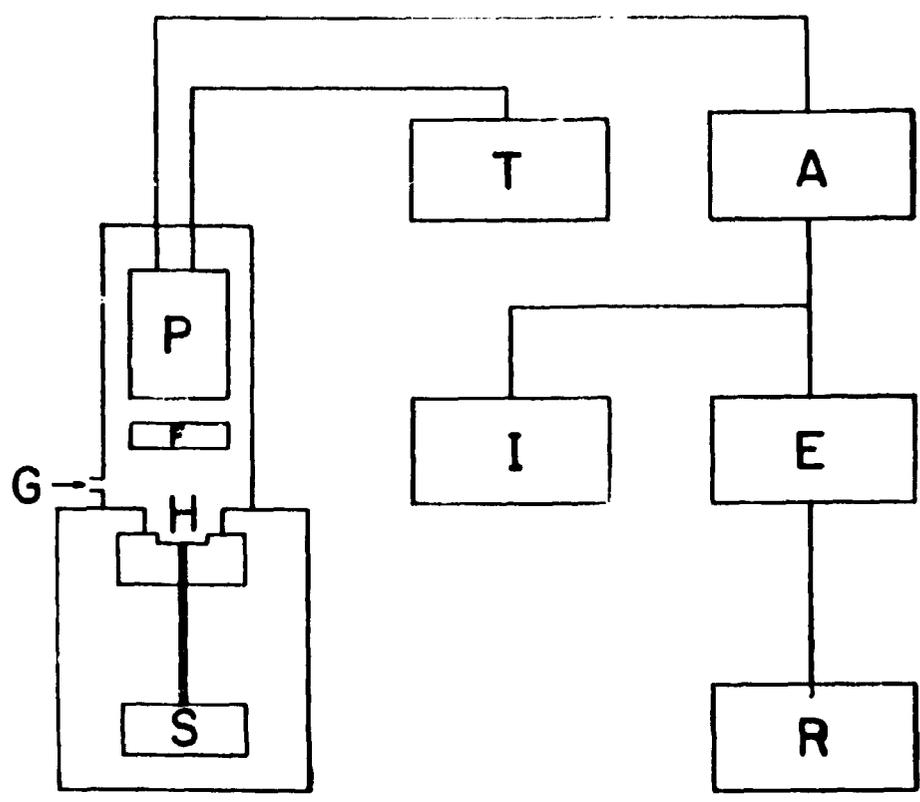


Diagrama de Bloco do Sistema de Detecção de Termoluminescência

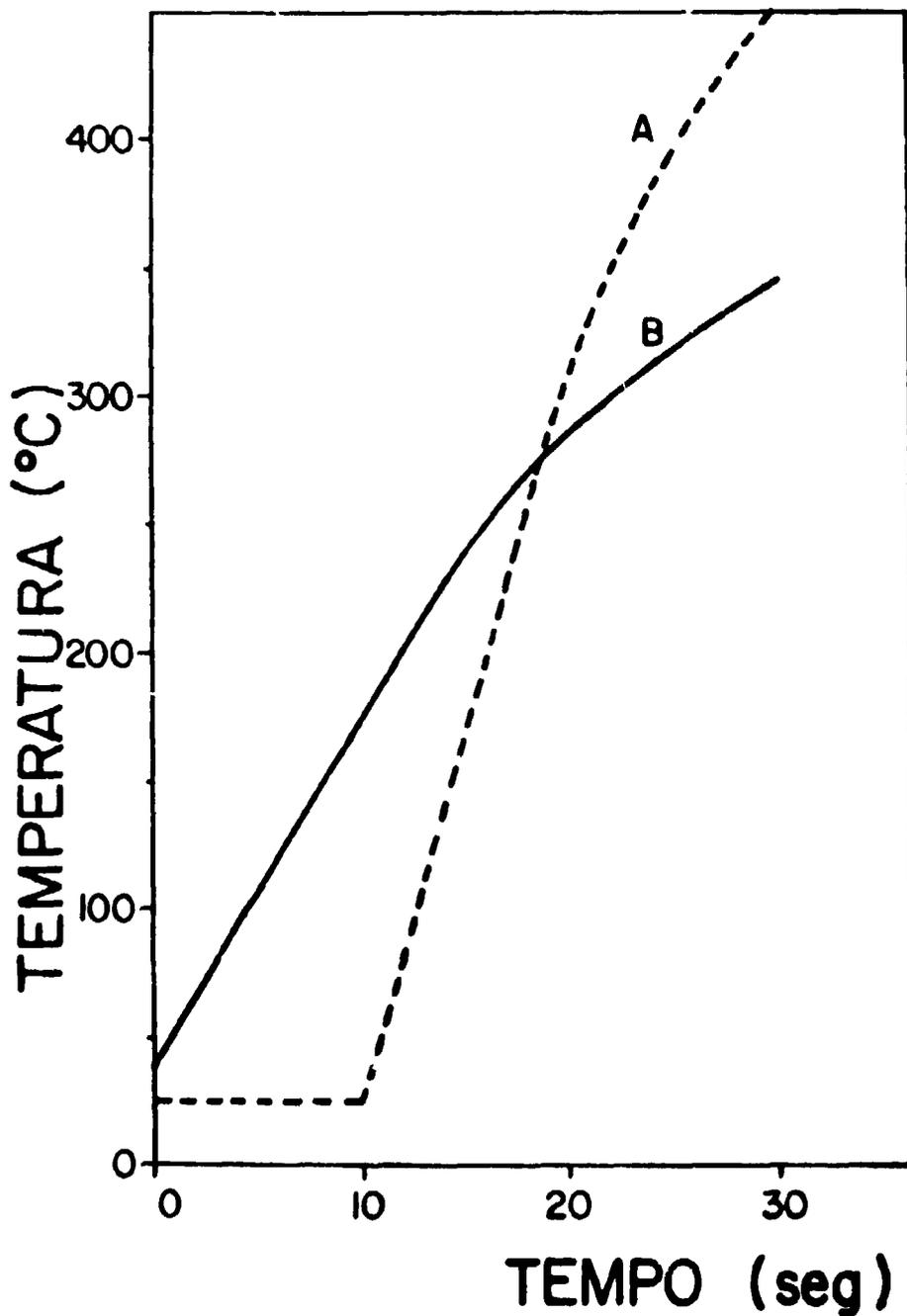


Figura 2.1 - Curvas de Aquecimento Típicas Obtidas com o Sistema Detetor nas Versões M (Curva B) e N (Curva A)

11.3 – Fontes de Radiação

Todas as irradiações com nêutrons foram realizadas com amostras aos pares: uma envolta em papel preto e outra em cádmio (1 mm de espessura), que absorve praticamente todos os nêutrons com energias inferiores à sua energia de corte.

A fonte de nêutrons mais usada foi o reator IEAR-1, do tipo piscina, que tem como combustível o urânio enriquecido e é moderado a água leve. O local de irradiação, denominado estação nº 1, fica cerca de 22 cm do caroço do reator e as amostras, dentro de um recipiente de polietileno, para serem irradiadas são levadas por sucção pneumática.

A determinação do fluxo térmico na posição de irradiação foi realizada pelo método convencional de ativação de folhas metálicas, pela AFN-IEA. Para isto, duas folhas de ouro foram irradiadas, sendo uma delas envolta em cádmio e outra em papel preto, do mesmo modo que as amostras. O valor obtido para o fluxo térmico foi de aproximadamente $6,66 \times 10^{11} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$, com uma razão de cádmio de 17,38.

Devido à alta secção de choque do ^{164}Dy e à quantidade relativamente grande deste componente na mistura, o tempo máximo de exposição foi de 2 min.

Foram feitas também irradiações com uma fonte de ^{252}Cf , cujo esquema é representado na Figura 2.2, com um fluxo térmico na posição de irradiação de $1,65 \times 10^6 \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$, e razão de cádmio igual a 6,43, ambos obtidos do mesmo modo que o anterior. Esta fonte encontra-se imersa em um tanque de água, sendo de aproximadamente 2,5 cm a distância do centro da fonte às amostras. O dispositivo usado para as irradiações consta de um cilindro de lucite preso a uma haste do mesmo material. As amostras são fixadas na parede do cilindro mais próxima da fonte. Um arranjo, também de lucite, que envolve a base e a superfície do tanque, permite fixar a haste na posição de irradiação desejada. Os tempos de exposição, neste caso, variaram entre 10 e 60 min.

Para as medidas comparativas com TLD-600 utilizou-se de um gerador de raios-x da Rigaku Denki Co Ltd, com alvo de tungstênio e condições de operação de 20 KV e 2 mA. Os materiais sob a forma de pó foram irradiados em uma cápsula de polietileno de 1 mm de espessura.

As irradiações com raios gama foram feitas com uma fonte de ^{60}Co de aproximadamente 37 mCi, colocada no centro de um arco de lucite de 4 mm de espessura e 50 cm de raio, ficando as amostras atrás do arco.

As pastilhas usadas em irradiações com raios γ e x receberam um primeiro tratamento térmico pré-irradiação de $400^\circ\text{C}/2 \text{ h}$ e $400^\circ\text{C}/20 \text{ min}$ entre exposições⁽⁷⁾, onde verifica-se o endurecimento dos compactados e uma mudança na sua coloração.

O tratamento térmico pré-irradiação de amostras expostas a nêutrons não produz qualquer alteração nos materiais, podendo ser dispensado. Este fato foi observado por meio de experiências repetidas em discos tratados diferentemente a $600^\circ\text{C}/5 \text{ min}$, $400^\circ\text{C}/2 \text{ h}$, $400^\circ\text{C}/20 \text{ min}$ e $500^\circ\text{C}/1 \text{ min}$ (este último realizado no próprio sistema detector).

Os efeitos produzidos pelas radiações γ e β^- existentes nas fontes de nêutrons e pelas reações nucleares de meia-vida curta foram eliminados através de um tratamento a $600^\circ\text{C}/20 \text{ min}$, em cadinhos de porcelana previamente aquecidos. O intervalo de tempo entre cada exposição e o término do tratamento térmico foi fixado arbitrariamente, mas mantido constante para cada experiência. Isto significa que o tempo total de auto-ativação foi o mesmo para todas as amostras de uma mesma série de irradiações.

As pastilhas de TLD-600 foram tratadas a $400^\circ\text{C}/1 \text{ h}$. O forno utilizado é da Indústria Forlabo

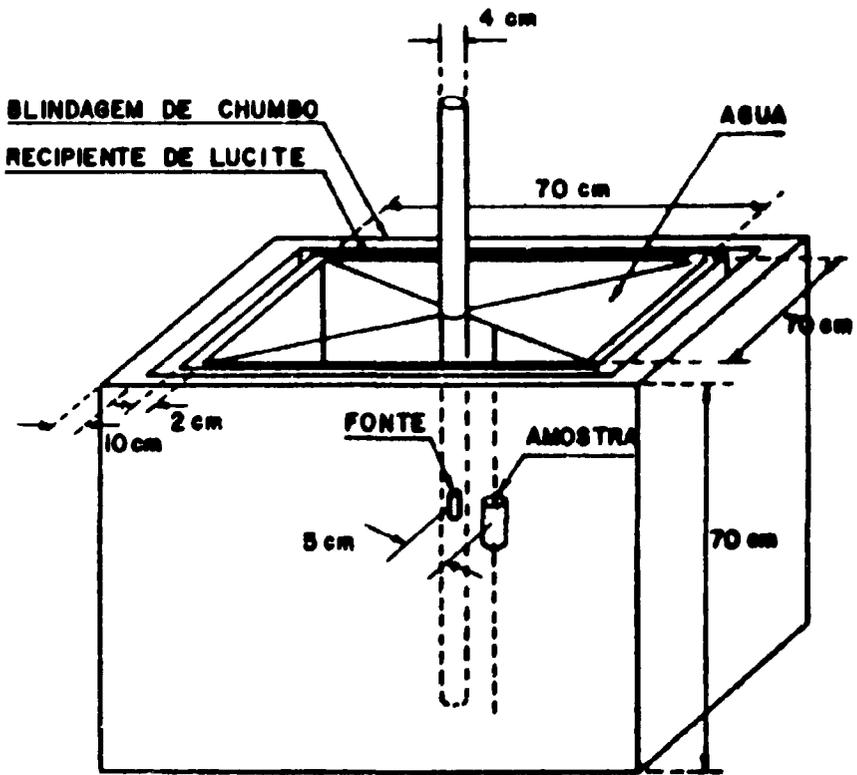


Figura 2.2 - Arranjo Experimental de Irradiação da Fonte de ^{252}Cf

Ltda., e o controle de temperatura nos tratamentos isotérmicos foi feito com um controlador de temperatura IEA, modelo 141/74.

O tempo médio de resfriamento das amostras foi de 3 min, sendo produzido em recipientes ou placas de alumínio convenientemente numeradas, de modo a permitir a identificação de cada pastilha. Estas placas foram também usadas nos tratamentos térmicos a 400°C.

III – RESULTADOS E DISCUSSÃO

O estudo sobre o comportamento de pastilhas de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$ e de $\text{CaF}_2:\text{nat} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$ foi dividido em três etapas: III.1) caracterização dos materiais, na qual são descritos os métodos utilizados para a otimização das pastilhas quanto à sensibilidade de detecção da radiação e à reprodutibilidade dos resultados obtidos; III.2) detecção de nêutrons intermediários em campos mistos n-gama, onde são determinadas as faixas de utilização desses materiais; e III.3) análise de curvas de emissão termoluminescente de fósforos compostos, em que são discutidas algumas das características apresentadas pelas pastilhas e problemas relacionados com a dosimetria termoluminescente.

III.1 – Caracterização dos Materiais

a) Dependência da Intensidade da Emissão TL com a Proporção Relativa dos Componentes em $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$ e em $\text{CaF}_2:\text{nat} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$

Os resultados que se seguem estão relacionados com a obtenção de dados qualitativos sobre os efeitos produzidos pela mistura e prensagem das amostras, e pela variação da proporção de seus componentes.

A curva de emissão característica de cada material utilizado é mostrada na Figura 3.1. Nesta experiência, alíquotas de 20 mg foram expostas a raios-X (20 K V, 2 mA, 2 min). A linha sólida, relativa ao Dy_2O_3 , apresenta três picos principais em aproximadamente 110°C, 128°C e 202°C. Este material deve, provavelmente, possuir outros picos de emissão TL que não foram identificados devido às suas relativamente baixas intensidades. Isso pode ser verificado pela própria forma da curva de emissão. Para o KCl (linha tracejada) foram detectados cinco picos com temperaturas de 50°C, 88°C, 100°C, 229°C e 283°C. As curvas relativas ao $\text{CaF}_2:\text{nat}$ (linha pontilhada) e ao $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ (linha pontilhada e tracejada) devem ser multiplicadas por 10 e 100, respectivamente, para fins comparativos. Os três picos da fluorita estão em 80°C, 153°C e 236°C e, para o sulfato de cálcio, são observados os picos de 140°C e 229°C.

Este resultado evidencia a elevada sensibilidade dos fósforos ($\text{CaF}_2:\text{nat}$ e $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$) relativamente aos demais componentes das pastilhas, para uma mesma exposição.

As misturas dos três componentes (fósforo, ativador e agregante) foi feita fixando-se a quantidade do agregante (KCl). Esta proporção, que corresponde à metade do peso total da pastilha, tanto para amostras de $\phi = 13$ mm como para as de $\phi = 10$ mm, foi escolhida quase que arbitrariamente, considerando-se apenas que quantidades menores do agregante implicariam em pastilhas com pouca resistência mecânica.

A Figura 3.2 mostra o comportamento das misturas I (curva I) e II (curva II), representado pela amplitude máxima do pico dosimétrico em cada mistura (devido aos raios de uma fonte de ^{60}Co), em função da quantidade do ativador (Dy_2O_3) nestas misturas. As pastilhas são de $\phi = 13$ mm e a exposição recebida foi de 3,15 R. A tendência observada em ambas as curvas é a mesma, verificando-se um decréscimo na amplitude da emissão TL com o aumento da quantidade do ativador. Este decréscimo

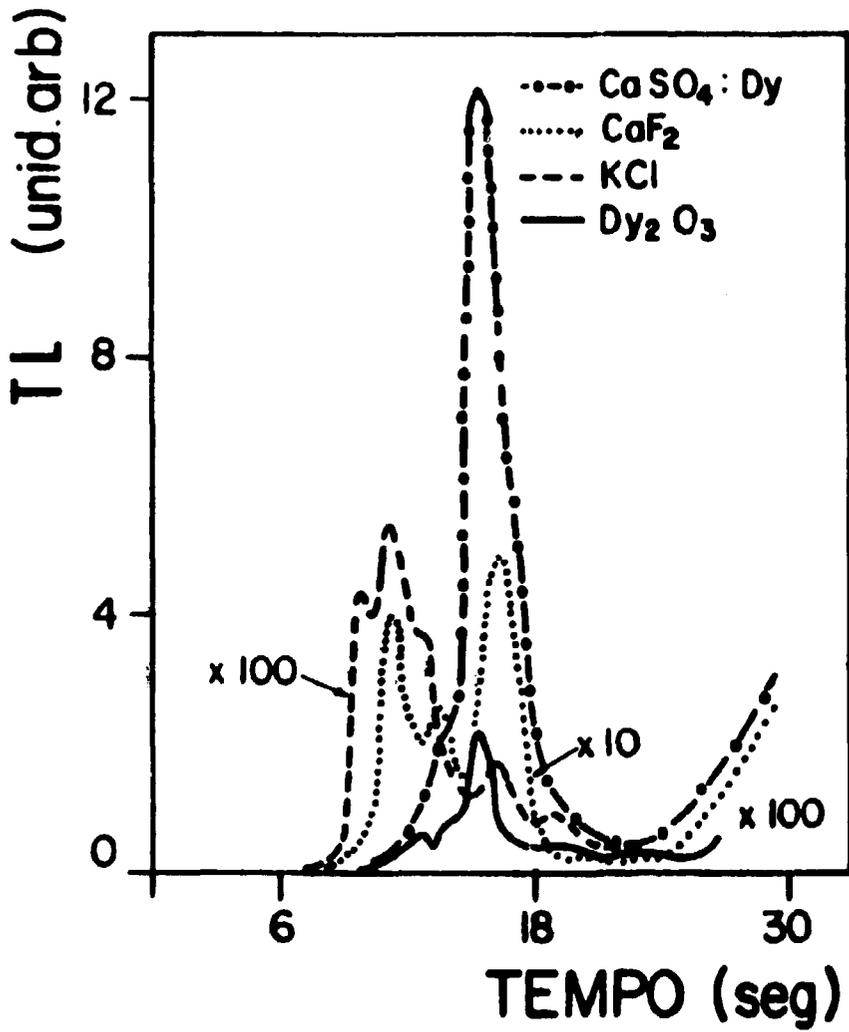


Figura 3.1 - Curvas de Emissão TL Características dos Componentes das Pestilhas, Expostos à Radiação X (20 KV, 2 mA, 2 min)

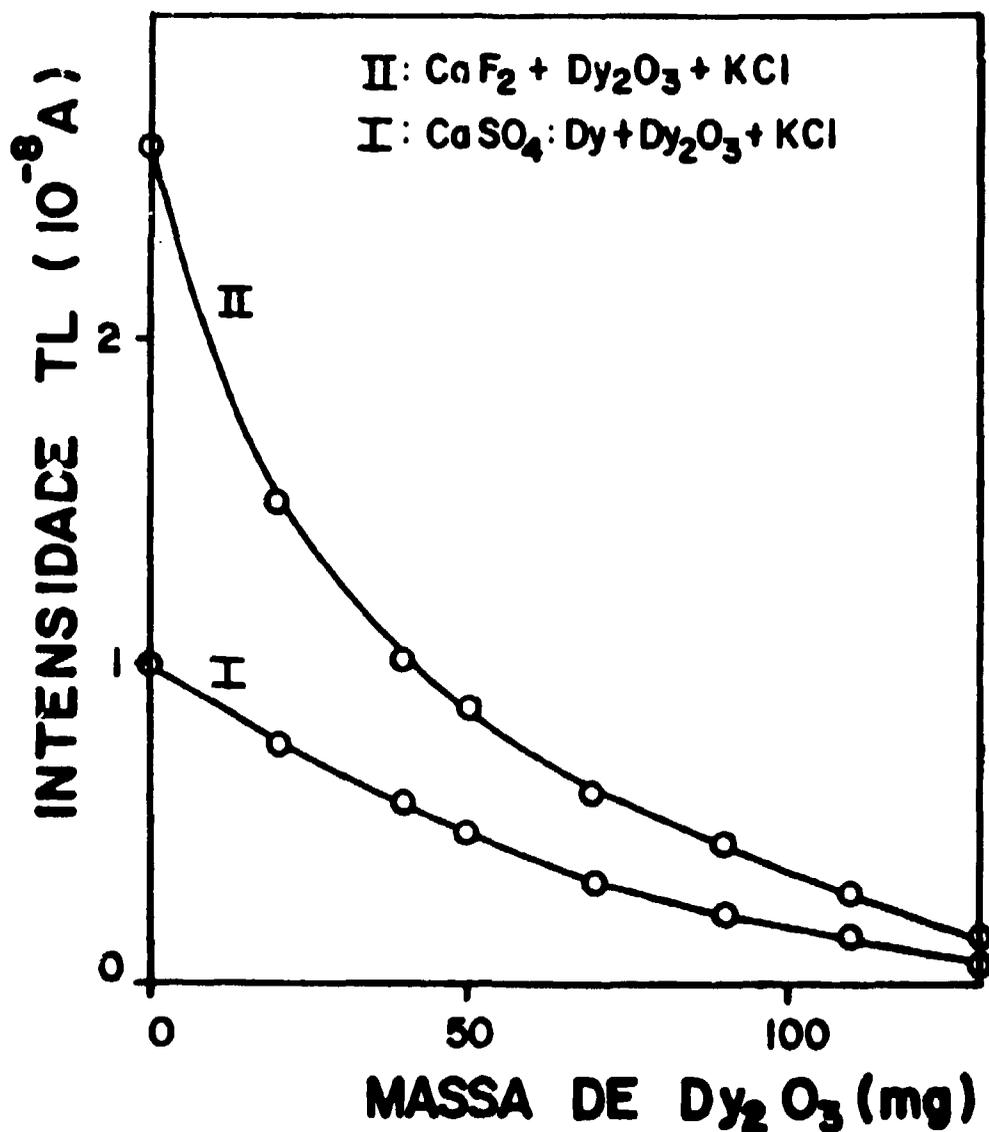


Figura 3.2 — Amplitude Máxima do Sinal Termoluminescente de Mistura I (Curva I) e de Mistura II (Curva II), para Pastilhas de $\phi = 13$ mm, Devido à Exposição (3,15 R) de uma Fonte de ^{60}Co , para Diferentes Proporções do Ativador (Dy_2O_3) nas Misturas

acentuado deve-se à diminuição na quantidade dos fósforos $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ (na mistura I) e CaF_2nat (na mistura II), que são mais sensíveis à radiação ionizante que o ativador, e à consequente diminuição na transparência das pastilhas. A opacidade decorrente do aumento da quantidade do ativador faz com que os fótons emitidos durante o processo de aquecimento sejam parcialmente absorvidos pela própria amostra (efeito de auto-absorção).

Verifica-se também, que para uma mesma dose de radiação, a mistura II é mais sensível que a mistura I, ao contrário do que ocorre para a fluorita e o sulfato de cálcio na forma de pó. (Figura 3.1). Esta diminuição da intensidade termoluminescente do $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ em relação ao CaF_2nat pode ser atribuída à pressão (da ordem de 39000 lb/pol^2) a que estas amostras foram submetidas, no processo de compactação, sendo que esse fator possui uma importância relativa diferente para cada material.

Esta hipótese parece ser consistente com o resultado obtido para as pastilhas de $\phi = 10 \text{ mm}$ (Figura 3.3), irradiadas com uma fonte de ^{60}Co , a uma exposição calculada de 2,4 R. Estas amostras foram submetidas a uma pressão de 1200 lb/pol^2 , bem inferior à que foi aplicada nas pastilhas A ($\phi = 13 \text{ mm}$).

A curva II, relativa a mistura II, exibe o mesmo comportamento que o obtido com os discos de $\phi = 13 \text{ mm}$. Na curva I, tem-se o comportamento da mistura I, que apresenta um ponto de intensidade máxima para a quantidade de 10 mg do ativador. Este resultado foi confirmado para diferentes porções do fósforo e, portanto, não pode ser atribuído à diferença de sensibilidade neste material, proveniente dos diversos crescimentos. A existência de uma proporção para a qual a intensidade termoluminescente é máxima, deve-se ao fato do Dy_2O_3 e do $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ possuírem um pico de emissão em temperaturas próximas, fazendo com que a TL medida seja a soma das contribuições relativas a cada um destes picos de emissão. Observa-se que a parte decrescente da curva difere do comportamento exibido pela mistura II (curva III), devido a competição entre os efeitos de soma das intensidades relativas e de auto-absorção.

Através dos resultados expostos nas Figuras 3.2 e 3.3, verifica-se que há uma dependência da amplitude de emissão termoluminescente das pastilhas, com o tratamento mecânico. Entretanto, torna-se necessário um estudo mais detalhado sobre o comportamento de seus constituintes, afim de que se possa determinar se o caráter dessa interferência é destrutivo (para a mistura I), construtivo (para a mistura II), ou se ambos ocorrem simultaneamente. Como pode ser visto na Figura 3.3, em pastilhas de $\phi = 10 \text{ mm}$, a mistura I ($\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$) é mais sensível à radiação, relativamente à mistura II ($\text{CaF}_2\text{nat} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$).

A proporção na qual a pastilha atua como melhor absorvedor de nêutrons foi determinada irradiando-se amostras com diferentes proporções na estação nº 1 do reator, sem envoltório de cádmio. O tempo total de irradiação para cada amostra foi de 20 seg.

Considerando que a intensidade TL medida é consequência da auto-ativação produzida pela radiação β^- emitida por um único isótopo radioativo (o $^{165}_{66}\text{Dy}$ com uma meia-vida aproximada de 2,3 h) e, sabendo que 99,9% dos núcleos radioativos decaem até $10 T_{1/2}$, decidiu-se realizar a medida da termoluminescência induzida nas amostras 24 h após a irradiação. A Figura 3.4 mostra a variação da amplitude máxima dos picos dosimétricos das misturas I (curva I) e II (curva II) com a quantidade de Dy_2O_3 .

Verifica-se nas curvas I e II que a intensidade máxima ocorre para a mesma proporção (denominada C), onde a razão fósforo/ativador é 2/1, mostrando que o efeito de auto-blindagem, devido à espessura das pastilhas, é o mesmo para as duas misturas. Na curva I, a emissão TL desta proporção é amplificada de 160 vezes em relação à amostra que não contém ativador; para a mistura II, este sinal é amplificado de 60 vezes.

A tendência que se observa é compatível com a esperada, isto é, aumentando a quantidade do ativador há um aumento gradativo na absorção de nêutrons, até que para uma dada proporção esta

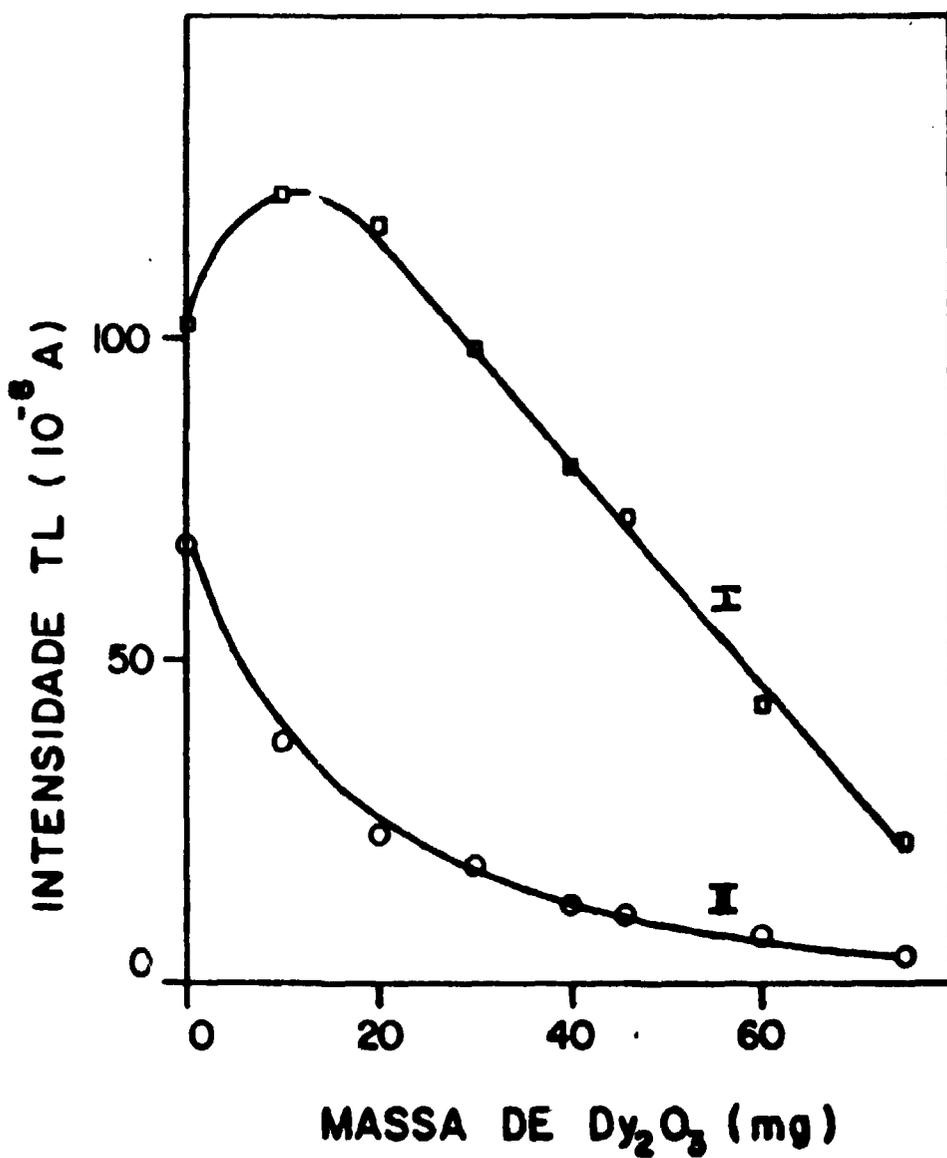


Figura 3.3 - Variação da Amplitude Máxima dos Picos Dosimétricos das Misturas I (Curva I) e II (Curva II), para Pastilhas de $\phi = 10$ mm, Expostas a uma Fonte de ^{60}Co , em Relação à Quantidade de Dy_2O_3 Nessas Misturas

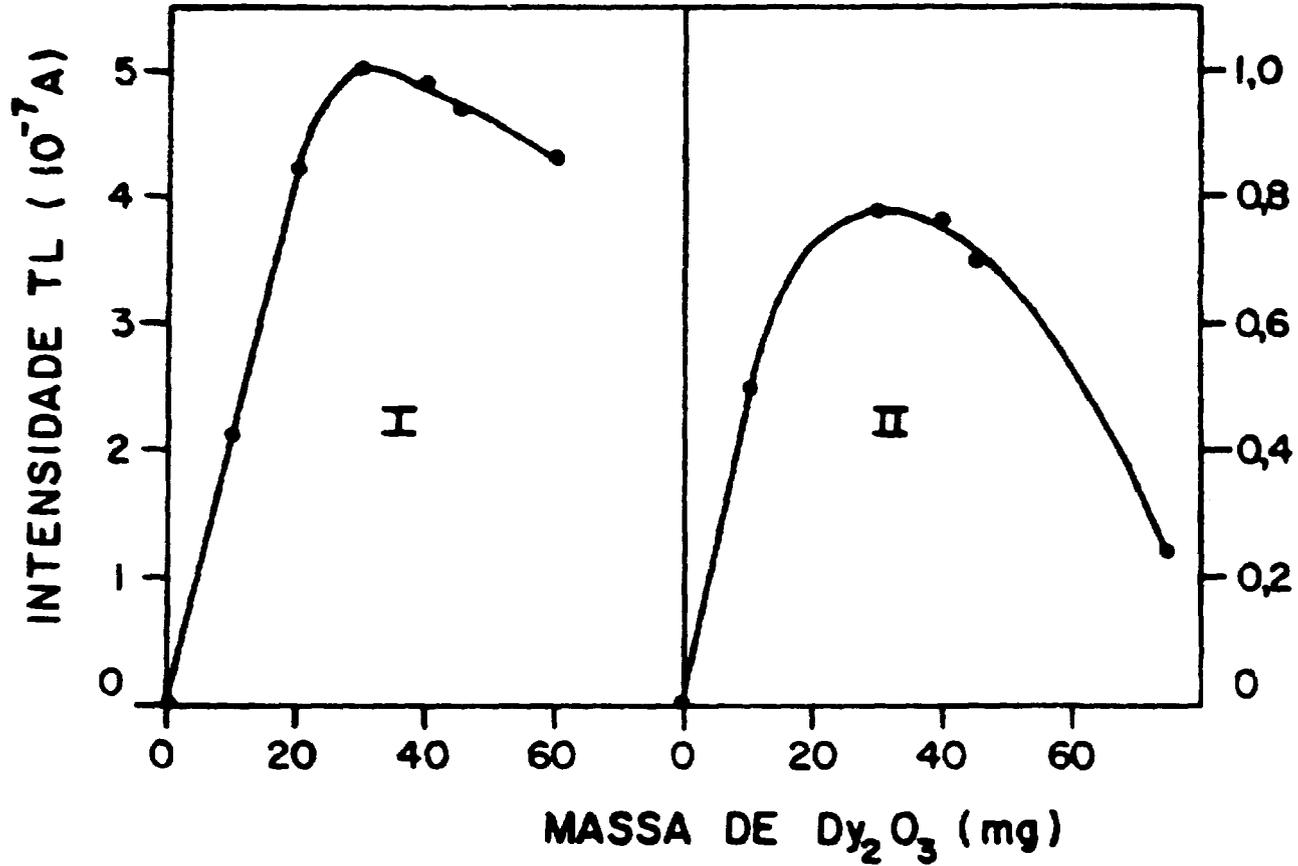


Figura 3.4 — Amplitude Máxima da Emissão TL da Mistura I (I) e da Mistura II (II), Devida à Radiação Neutrônica, para Diferentes Proporções do Ativador (Dy₂O₃): Mistura I: CaSO₄:Dy + Dy₂O₃ + KCl; Mistura II: CaF₂ nat + Dy₂O₃ + KCl

absorção atinge seu valor máximo a partir do qual três efeitos contribuem para o decréscimo na sensibilidade: diminuição da quantidade dos fósforos em cada mistura, auto-absorção e auto-blindagem. Apesar desses efeitos se tornarem mais acentuados com o aumento na proporção do ativador, observa-se que as pastilhas que não contém o Dy_2O_3 , nas quais a quantidade do fósforo corresponde a 90 mg, são menos sensíveis que aquelas que possuem apenas 15 mg de fósforo, comprovando a sensibilidade relativamente baixa que o $CaSO_4:Dy$ e o $CaF_2:nat$, isoladamente, exibem a nêutrons.

Estas mesmas amostras permaneceram armazenadas em castelos de chumbo durante 14 d, quando então foi realizada uma segunda medida TL, que reproduziu a curva mostrada na Figura 3.4, confirmando a proporção onde a intensidade termoluminescente é máxima.

Resultados análogos a estes foram obtidos para as pastilhas A ($\phi = 13$ mm), após exposição à radiação e detecção da emissão TL sob as mesmas condições. Neste caso, a proporção otimizada é a que contém 40 mg do ativador.

A curva de emissão da proporção otimizada relativa à mistura I (60 mg $CaSO_4:Dy$ + 30 mg Dy_2O_3 + 90 mg KCl) é mostrada na Figura 3.5A. Este espectro corresponde à termoluminescência induzida pela auto-ativação da pastilha, em um período de 24 h após a irradiação.

As amplitudes máximas dos picos I e II são observadas às temperaturas de 142°C e 246°C, respectivamente (para o sistema detector M, com velocidade de aquecimento linear, de 12°C/seg, na faixa de temperatura onde são detectados estes picos de emissão).

O pico I, visto com boa resolução, contém uma certa contribuição do pico de emissão do Dy_2O_3 , devido à proximidade da temperatura em que é observado (aproximadamente 167°C), o que faz com que o pico I cresça mais rapidamente que o pico II (dosimétrico), com o aumento da quantidade do ativador na pastilha.

Para esta mistura ($CaSO_4:Dy + Dy_2O_3 + KCl$) a medida da intensidade termoluminescente será tomada com referência à amplitude máxima do pico dosimétrico, devido à sua maior estabilidade e intensidade, em relação à sua maior estabilidade e intensidade, em relação ao pico de emissão I.

A Figura 3.5B mostra a curva de emissão característica de uma pastilha de 90 mg de Dy_2O_3 , também irradiada durante 20 seg na estação nº 1. O único pico nessa figura tem sua amplitude máxima detectada à uma temperatura aproximada de 167°C.

Na Figura 3.6 tem-se a curva de emissão característica da proporção otimizada relativa a mistura II (60 mg $CaF_2:nat$ + 30 mg Dy_2O_3 + 90 mg KCl). A medida da termoluminescência foi realizada sob as mesmas condições que para a mistura I.

As temperaturas correspondentes às amplitudes máximas observadas são de 177°C (velocidade de aquecimento igual a 12°C/seg) e 295°C (9°C/seg), para os picos de emissão I e III. O pico II, como pode ser visto na figura, aparece superposto ao primeiro, não sendo possível sua caracterização.

O pico de emissão I cresce muito rapidamente com a proporção do ativador, sendo cerca de 10 vezes maior que o pico III para esta proporção. Este pico também contém a contribuição do pico de emissão Dy_2O_3 (Figura 3.5B).

Em uma primeira análise, a intensidade relativamente elevada do pico I sobre os demais seria uma vantagem, que poderia ser utilizada para as medidas da termoluminescência induzida nesta mistura; porém, medidas feitas com um intervalo de tempo de auto-ativação de 14 d mostram que as amplitudes dos picos I e III são comparáveis, o que implica numa baixa estabilidade do pico de emissão I à temperatura ambiente. Por este motivo, o pico III (dosimétrico) foi escolhido para representar a medida da TL induzida nestas amostras, mesmo considerando a dificuldade para a determinação de sua amplitude.

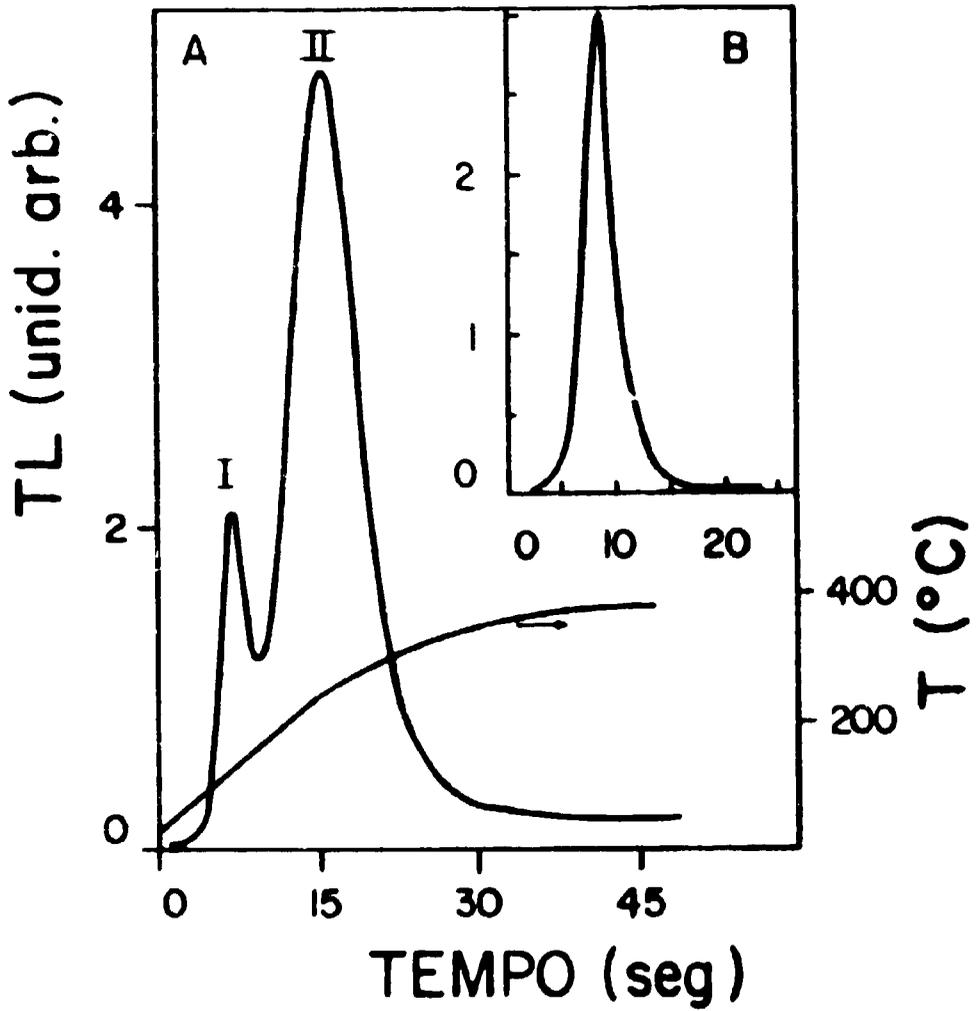


Figura 3.5 - A - Curva de Emissão TL Devida à Auto-Irradiação de uma Pastilha BC - I (60 mg $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ + 30 mg Dy_2O_3 + 90 mg KCl), Irradiada Durante 20 seg na Estação Nº 1 do Reator.
 B - Curva de Emissão de uma Amostra de 90 mg Dy_2O_3 + 90 mg KCl, Irradiada sob as Mesmas Condições

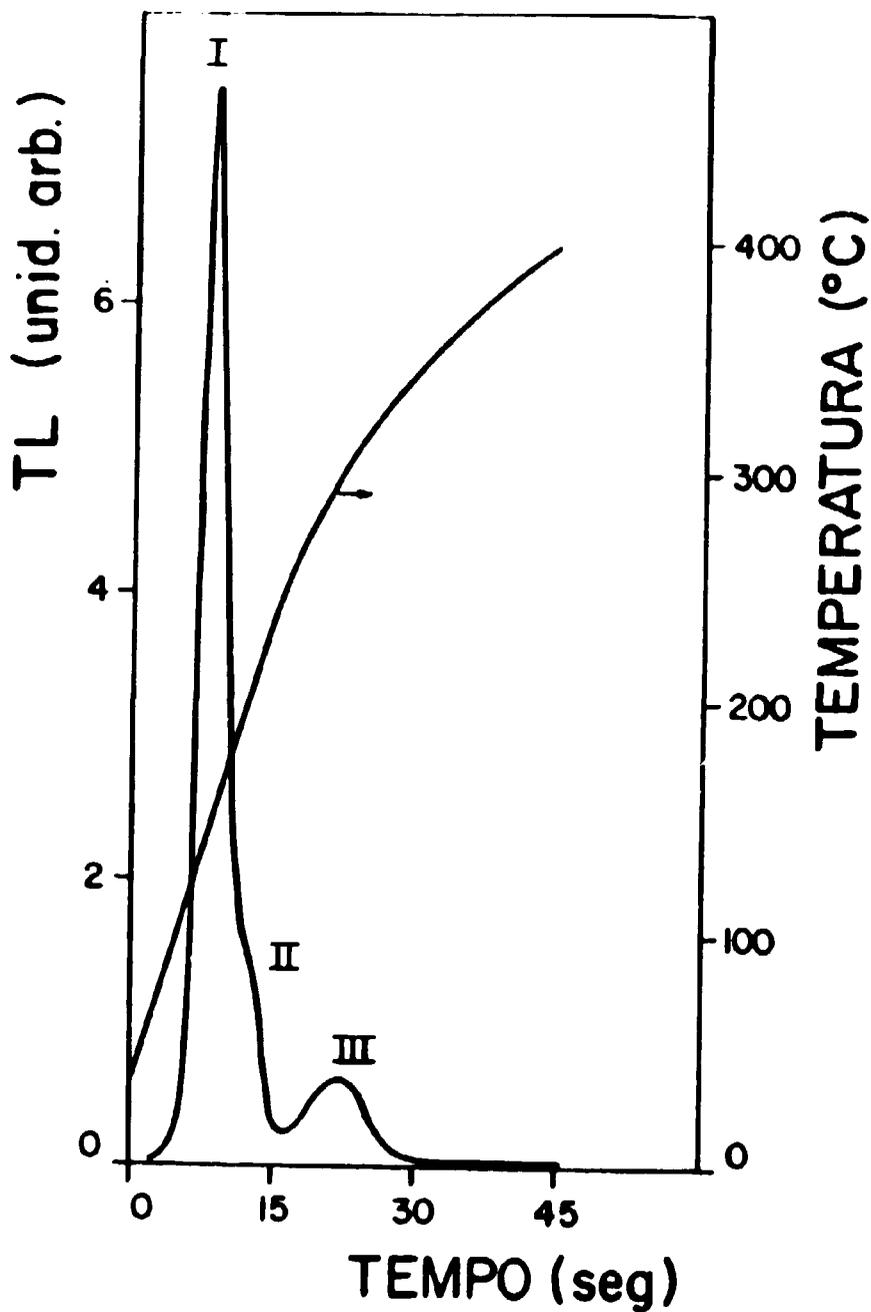


Figura 3.8 - Curva de Emissão TL Característica da Mistura II (60 mg CaF_2 nat + 30 mg Dy_2O_3 + 90 mg KCl), Relativa à Auto-Irradiação Devida à Exposição Prévia, de 20 seg, em Campo Misto $n - \text{gamma}$

b) Determinação da Sensibilidade relativa de $\text{CaSO}_4 \cdot \text{Dy} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$ e de $\text{CaF}_2\text{nat} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$

O estudo de sensibilidade das amostras de proporção otimizada foi feito comparativamente ao das pastilhas de TLD-600.

A Figura 3.7 mostra as curvas de emissão termoluminescente de pastilhas de TLD-600 (linha tracejada), BC-I (60 mg $\text{CaSO}_4 \cdot \text{Dy} + 30$ mg $\text{Dy}_2\text{O}_3 + 90$ mg KCl; linha sólida) e BC-II (60 mg $\text{CaF}_2\text{nat} + 30$ mg $\text{Dy}_2\text{O}_3 + 90$ mg KCl); linha tracejada e pontilhada), submetidas a raios X (20 KV, 2 mA, 20 seg). Os valores de amplitude TL relativos ao TLD-600 aparecem na figura multiplicada por 10.

Observa-se que a curva relativa à pastilha BC-I é a mesma que a obtida para o $\text{CaSO}_4 \cdot \text{Dy}$ sob a forma de pó, enquanto que para a pastilha BC-II ocorre um aumento na amplitude máxima do pico de emissão II, relativamente ao obtido para o CaF_2nat (Figura 3.1).

O pico de maior amplitude do TLD-600 ocorre à uma temperatura de 270°C ($25^\circ\text{C}/\text{seg}$) e sua amplitude máxima será utilizada como medida da intensidade TL nesta pastilha.

As temperaturas relativas às amplitudes máximas dos picos de emissão da amostra BC-I são de 263°C ($25^\circ\text{C}/\text{seg}$) e 330°C ($21^\circ\text{C}/\text{seg}$) e, para a amostra BC-II são de 187°C ($33^\circ\text{C}/\text{seg}$), 295°C ($25^\circ\text{C}/\text{seg}$) e 373°C ($21^\circ\text{C}/\text{seg}$). Além do aumento na temperatura relacionada à amplitude máxima dos picos de emissão das pastilhas em relação ao pó, verifica-se um alargamento destes picos, devido à diferença na condutividade térmica entre os componentes de cada pastilha isoladamente e esta como um todo.

A curva de emissão relativa à pastilha de fluorita, que aparece nesta figura, foi detectada logo após a exposição à radiação. Neste tipo de pastilha a degenerescência do sinal TL com o tempo de armazenamento ("fading") ocorre mais acentuadamente para o pico de emissão I. Isto foi verificado por meio de medidas realizadas 24 h após a irradiação, sendo que um estudo mais rigoroso sobre o fading destas amostras não foi feito devido às diferenças verificadas nas amplitudes relativas dos picos de emissão, durante um seccionamento prévio, para uma mesma dose de irradiação.

A Figura 3.8 foi obtida como o resultado de um estudo comparativo entre as sensibilidades das pastilhas BC-I (60 mg $\text{CaSO}_4 \cdot \text{Dy} + 30$ mg $\text{Dy}_2\text{O}_3 + 90$ mg KCl; curva B), BC-II (60 mg $\text{CaF}_2\text{nat} + 30$ mg $\text{Dy}_2\text{O}_3 + 90$ mg KCl; curva C) e do TLD-600 (curva A), em relação à radiação X. Nesta experiência, uma placa de alumínio de cerca de 1 mm de espessura foi anteposta às amostras para a absorção dos raios-X de baixa energia. A intensidade termoluminescente para cada pastilha é representada através da amplitude máxima de seu pico dosimétrico.

Verifica-se que a intensidade TL de cada amostra aumenta linearmente com o tempo de exposição, na faixa estudada, e que as misturas I e II são mais sensíveis à radiação relativamente ao TLD-600. Na Tabela III.1 é representada a sensibilidade de cada mistura em relação à do TLD-600, normalizada para uma mesma expedição.

III.2 – Detecção de Nêutrons Intermediários em Campos Mistos n-Gama

Com o objetivo de se determinar a faixa de utilização das misturas I e II como detetores de nêutrons, amostras cuja proporção é a que atua como melhor absorvedor de nêutrons foram expostas a diferentes fluências nos campos mistos n-gama do reator e de uma fonte de ^{252}Cf , imersa em água.

A ativação induzida pelo decaimento β^- , em um período de 24 h, em pastilhas de 60 mg $\text{CaSO}_4 \cdot \text{Dy} + 30$ mg $\text{Dy}_2\text{O}_3 + 90$ mg KCl (de 10 a 60 min) na fonte de ^{252}Cf , é representada na Figura 3.9 pela amplitude máxima do pico dosimétrico desta mistura. As curvas A e B referem-se à

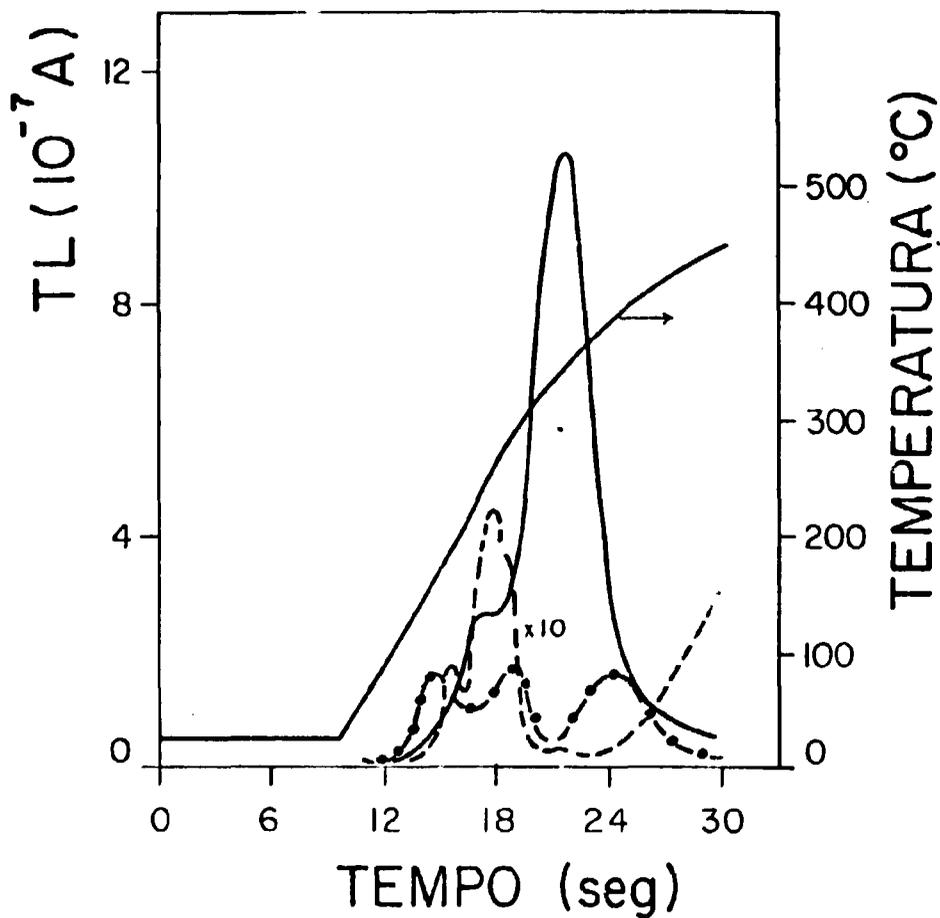


Figura 3.7 - Curvas de Emissão TL de Pastilhas de: TLD - 600, CaF_2 nat + Dy_2O_3 + KCl e $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ + Dy_2O_3 + KCl, Expostas à Radiação X (20 KV, 2 mA, 20 seg)

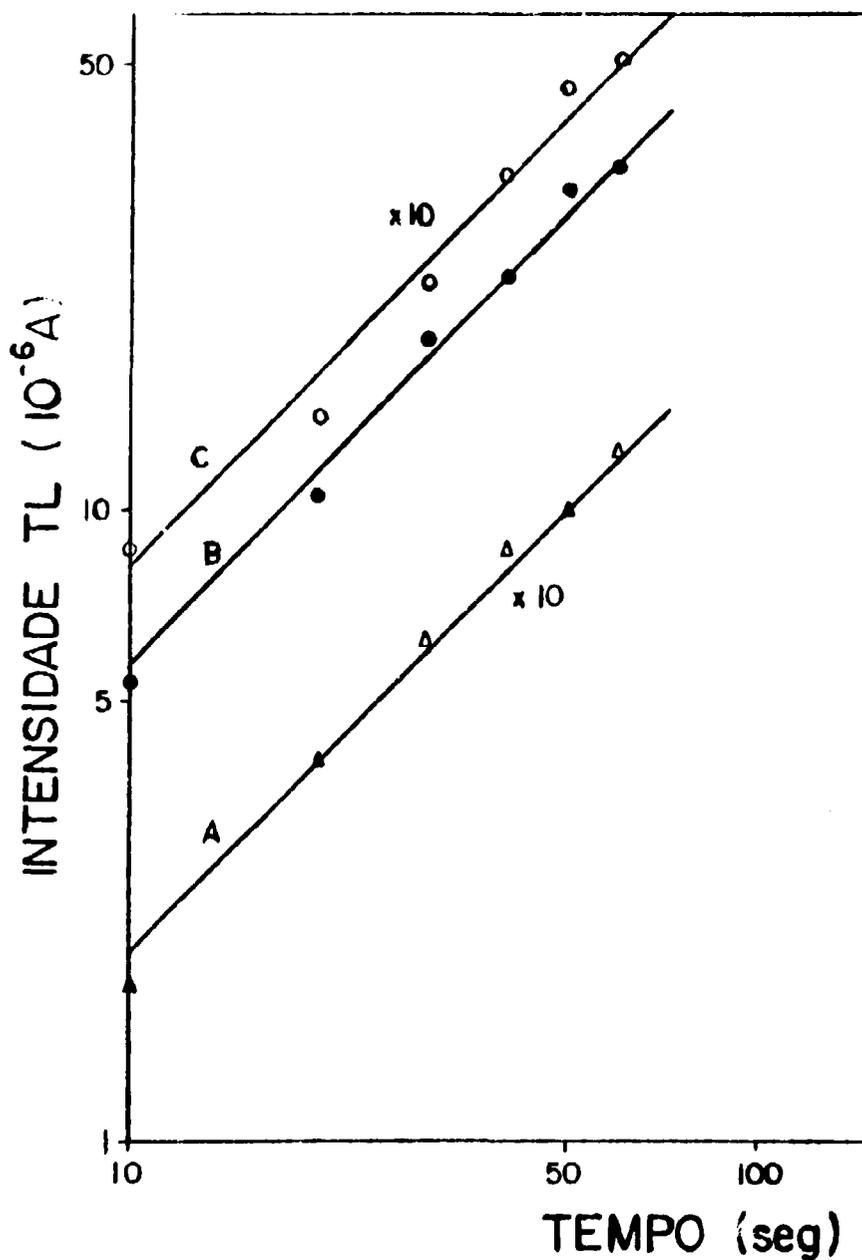


Figura 3.8 - Amplitude Máxima do Sinal TL de Pastilhas de TLD-600 (A), CaF_2 nat + Dy_2O_3 + KCl (C) e $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ + Dy_2O_3 + KCl (B), em Relação ao Tempo de Exposição a Raios X (20 KV, 2 mA)

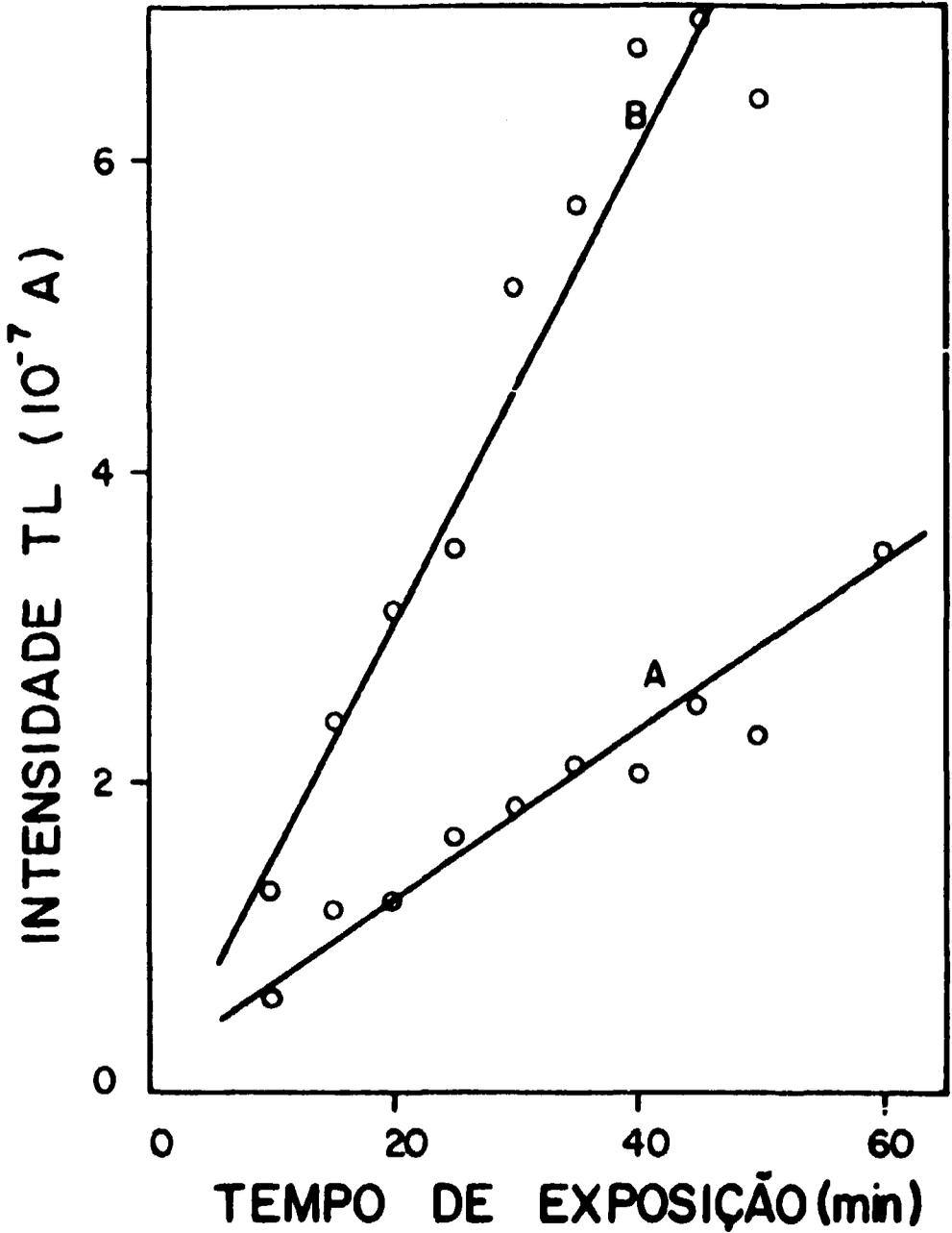


Figura 3.9 - Amplitude Máxima do Pico II de Pastilha de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$ (Tipo BC-I) para Diferentes Tempos de Exposição em uma Fonte de ^{251}Cf ; Curva A: Com Cádmio; Curva B: Sem Cádmio

Tabela III.1

Sensibilidade Relativa das Amostras
para uma Mesma Exposição

Pastilha	Sensibilidade Relativa
FLD - 600	1
BC - I	24
BC - II	3

auto-ativação de amostras irradiadas com e sem envoltório de cádmio, respectivamente. A intensidade termoluminescente aumenta proporcionalmente de modo supralinear com o número de núcleos ativados, para as amostras sem a blindagem de cádmio, pois a TL medida representa a soma das atividades induzidas por nêutrons térmicos e intermediários, concordando com o resultado já conhecido da técnica de ativação de folhas metálicas, onde a atividade aumenta linearmente com o tempo de exposição somente até cerca de 1/4 a 1/3 da meia-vida do isótopo radioativo formado, tomando a seguir uma forma sublinear, até que para um tempo de exposição relativamente longo, comparado com a meia-vida do radioisótopo, a atividade atinge um valor de saturação.

O caráter reproduzível deste resultado torna viável a utilização do método de ativação de fósforos termoluminescentes, na determinação do fluxo intermediário em fontes isotópicas, desde que o espectro de nêutrons seja conhecido.

Para pastilhas do tipo BC-II (60 mg CaF_2nat + 30 mg Dy_2O_3 + 90 mg KCl), o resultado desta experiência é mostrado na Figura 3.10, onde a ordenada representa a amplitude máxima dos picos de emissão I e II, com e sem envoltório de cádmio. A intensa emissão incandescente da prancheta em temperaturas elevadas, associada com a sensibilidade relativamente pequena destas pastilhas, quando comparadas com as de sulfato de cálcio, dificultam a detecção do pico dosimétrico, em baixas fluências.

Como pode ser visto na figura, o comportamento dos picos de emissão I e II nos dois casos é o mesmo, apesar do espalhamento obtido, que pode ser, dentre outros fatores, devido à proximidade de temperatura em que são detectados, e às impurezas de terras raras na fluorita. Assim, em uma primeira análise, este resultado conduz à não utilização de pastilhas do tipo BC-II na detecção de nêutrons em fontes isotópicas, através da técnica de auto-ativação. É possível, entretanto, que o emprego destas amostras torne-se viável se as condições de tratamento térmico e mecânico das pastilhas e de detecção TL forem otimizadas.

A auto-ativação de pastilhas BC-I (60 mg $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ + 30 mg Dy_2O_3 + 90 mg KCl) devida a irradiações, por tempos de 2 seg a 90 seg, no campo misto n-gama do reator, é representada na Figura 3.11 pela amplitude máxima do pico de emissão II, para amostras com cádmio (curva A) e sem cádmio (curva B).

Observa-se que a diferença nas secções de choque para a reação $^{164}\text{Dy} (n,\gamma)^{165}\text{Dy}$, nas faixas de energia térmica e intermediária, produz uma amplitude de emissão termoluminescente, para a amostra sem envoltório de cádmio, 200 vezes superior à das amostras com cádmio. Deste modo, em locais onde a razão de cádmio para o outro é relativamente elevada, fluências de nêutrons térmicos podem ser diretamente relacionados com a ativação de amostras sem envoltório de cádmio, isto é, sem a correspondente subtração da ativação devida a nêutrons intermediários.

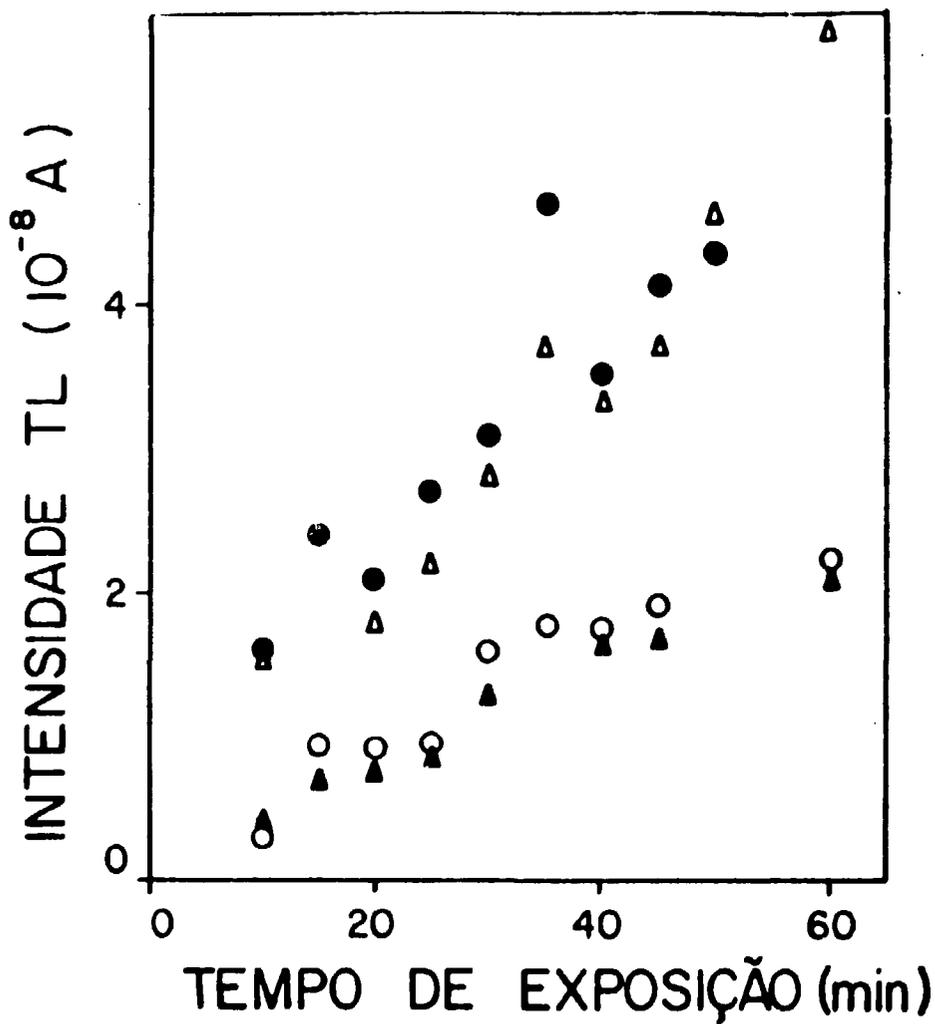


Figura 3.10 - Amplitude Máxima do Sinal TL de Pastilha de 60 mg CaF_2 nat + 30 mg Dy_2O_3 + 90 mg KCl, para Diferentes Tempos de Exposição na Fonte de ^{252}Cf ; Δ - Amplitude Máxima do Pico I (Sem Cádmi), \bullet - Amplitude Máxima do Pico II (Com Cádmi), \circ - Amplitude Máxima do Pico I (Com Cádmi)

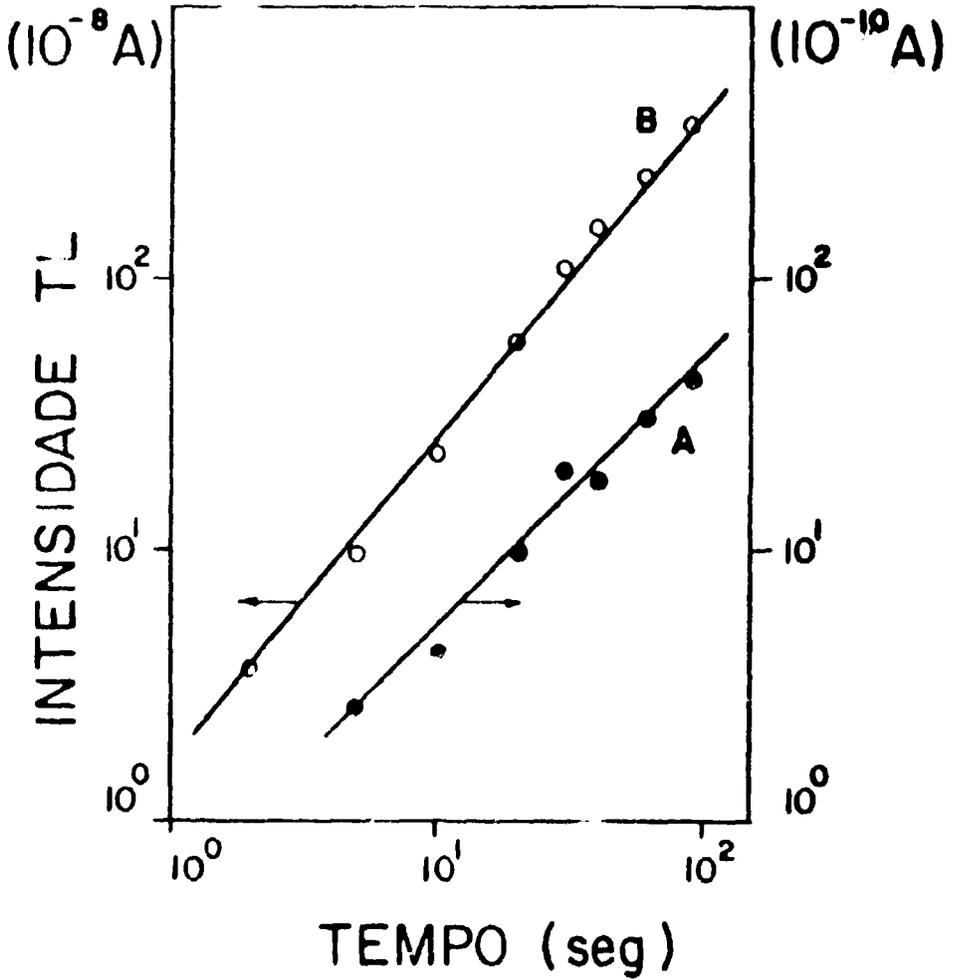


Figura 3.11 - Amplitude Máxima do Pico de Emissão II de Pastilhas BC-I (60 mg $\text{CaSO}_4 \cdot \text{Dy}$ + 30 mg Dy_2O_3 + 90 mg KCl) para Diferentes Tempos de Exposição no Campo Misto n-gama do Reator; A: Com Cádmio, B: Sem Cádmio

A curva λ , relativa à irradiação de amostras envoltas em cádmio, inclui a atividade produzida por nêutrons de energia intermediária e uma fração devida a nêutrons térmicos, porque a razão de cádmio para o ouro, na posição de irradiação, requer o emprego de blindagens de cádmio com espessura igual ou superior a 1,5 mm⁽¹⁰⁾. Nas amostras irradiadas com cádmio, somente o pico de emissão II é detectado, mostrando que a auto-irradiação devida a ativação de nêutrons térmicos é responsável pela produção de defeitos na rede cristalina, que dão origem ao pico I neste tipo de pastilha.

A auto-ativação das pastilhas BC-II (60 mg CaF₂nat + 30 mg Dy₂O₃ + 90 mg KCl) é representada na Figura 3.12 pela variação da amplitude máxima do pico dosimétrico, com o tempo de exposição no campo misto n-gama do reator. Como pode ser visto neste gráfico, a intensidade termoluminescente das amostras sem envoltório de cádmio (curva B) é cerca de 200 vezes superior àquela das amostras com envoltório de cádmio (curva A), do mesmo modo que para as pastilhas BC-I (Figura 3.11). Nas pastilhas que contêm sulfato de cálcio a intensidade TL aumenta linearmente com o tempo de exposição, quando irradiadas com envoltório de cádmio mas, nas pastilhas que contêm fluorita, um comportamento igualmente supralinear é verificado em irradiações com e sem envoltório de cádmio. Os demais picos de emissão da fluorita também apresentam um caráter supralinear próprio, sendo que mais acentuadamente para o pico de emissão I. Observa-se também nas Figuras 3.11 e 3.12, que a flutuação dos pontos experimentais é menor que a obtida em irradiações na fonte de ²⁵²Cf (Figuras 3.9 e 3.10). Isto significa que a contribuição para o espalhamento nos resultados das amostras irradiadas na estação nº 1 do reator, devida à variação do fluxo de nêutrons com o tempo e com a posição, pode ser considerada insignificante.

Nas irradiações sem envoltório de cádmio, o pico de emissão I é o de maior amplitude relativa (ver, por exemplo, Figura 3.6), enquanto que com a blindagem de cádmio, o pico dosimétrico é o que apresenta maior amplitude. Deste modo fica evidente que nêutrons de energia térmica são os principais responsáveis indiretos pela produção de defeitos que dão origem a picos de temperatura relativamente baixa.

Nas irradiações neutrônicas, fatores que afetam significativamente os resultados tais como a depressão do fluxo no interior das amostras e a eficiência do sistema detector para a reação, não foram considerados devido ao caráter relativo das experiências feitas. Assim, a importância deste estudo reside na sensibilidade do método e das amostras utilizadas, e na reprodutibilidade dos resultados, comprovada por meio de experiências repetitivas.

O compromisso existente entre a eficiência do sistema detector e a sensibilidade das amostras pode ser examinado através da determinação da fluência mínima detectável em campo misto n-gama.

A Figura 3.13 mostra a amplitude máxima do pico II de pastilhas BC-I (60 mg CaSO₄:Dy + 30 mg Dy₂O₃ + 90 mg KCl), para as diferentes fluências de nêutrons intermediários a que estas amostras foram submetidas, na fonte de ²⁵²Cf. Este gráfico foi construído a partir dos dados da Figura 3.9, onde o tempo de exposição foi substituído pela fluência intermediária correspondente.

A estimativa do fluxo intermediário foi baseado na aproximação que a distribuição da densidade de nêutrons neste intervalo, $\nu(E)$, é inversamente proporcional à energia, E, do nêutron. Assim, o fluxo intermediário é dado por:

$$\phi_{INT} = \int_{E_1}^{E_2} \phi(E) dE \quad (III.1)$$

onde $\phi(E)$ é a distribuição do fluxo de nêutrons em energia, sendo:

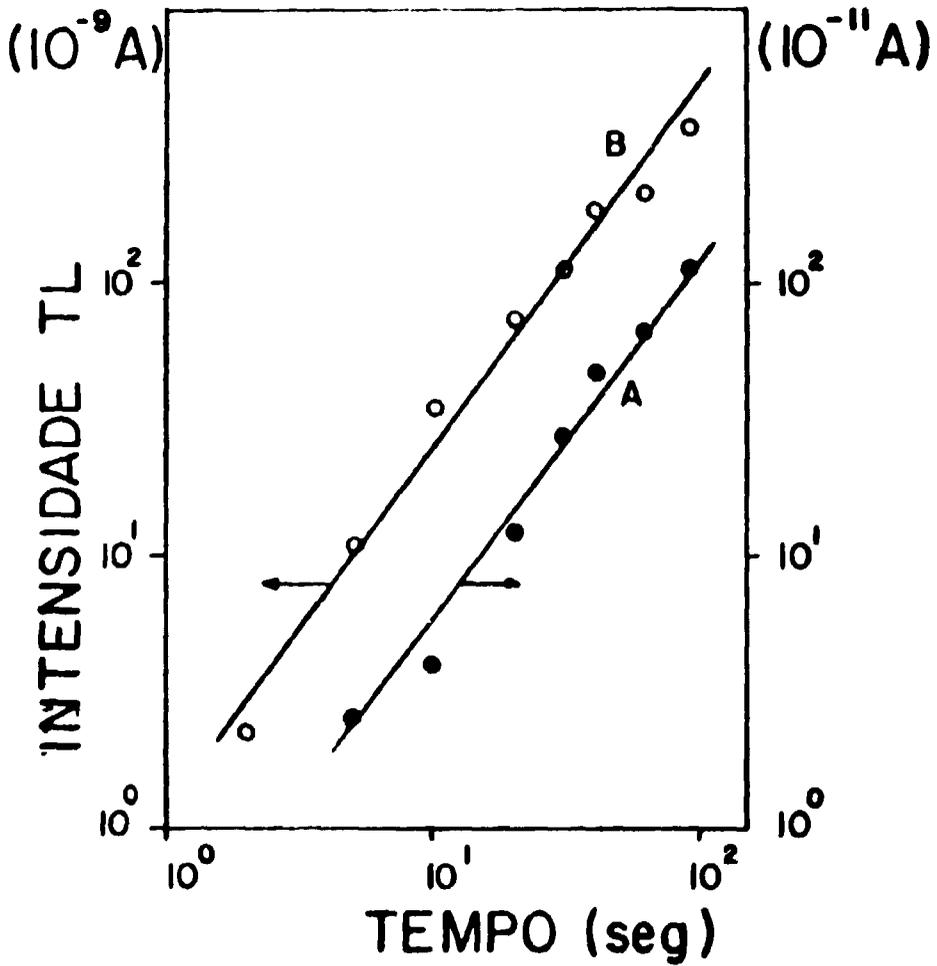


Figura 3.12 - Amplitude Máxima do Pico Dosimétrico (III) de Pastilhas BC-II (60 mg CaF_2 nat + 30 mg Dy_2O_3 + 90 mg KCl) para Diferentes Tempos de Exposição no Campo Misto n-gama do Reator ; A: Com Cádmió ; B: Sem Cádmió

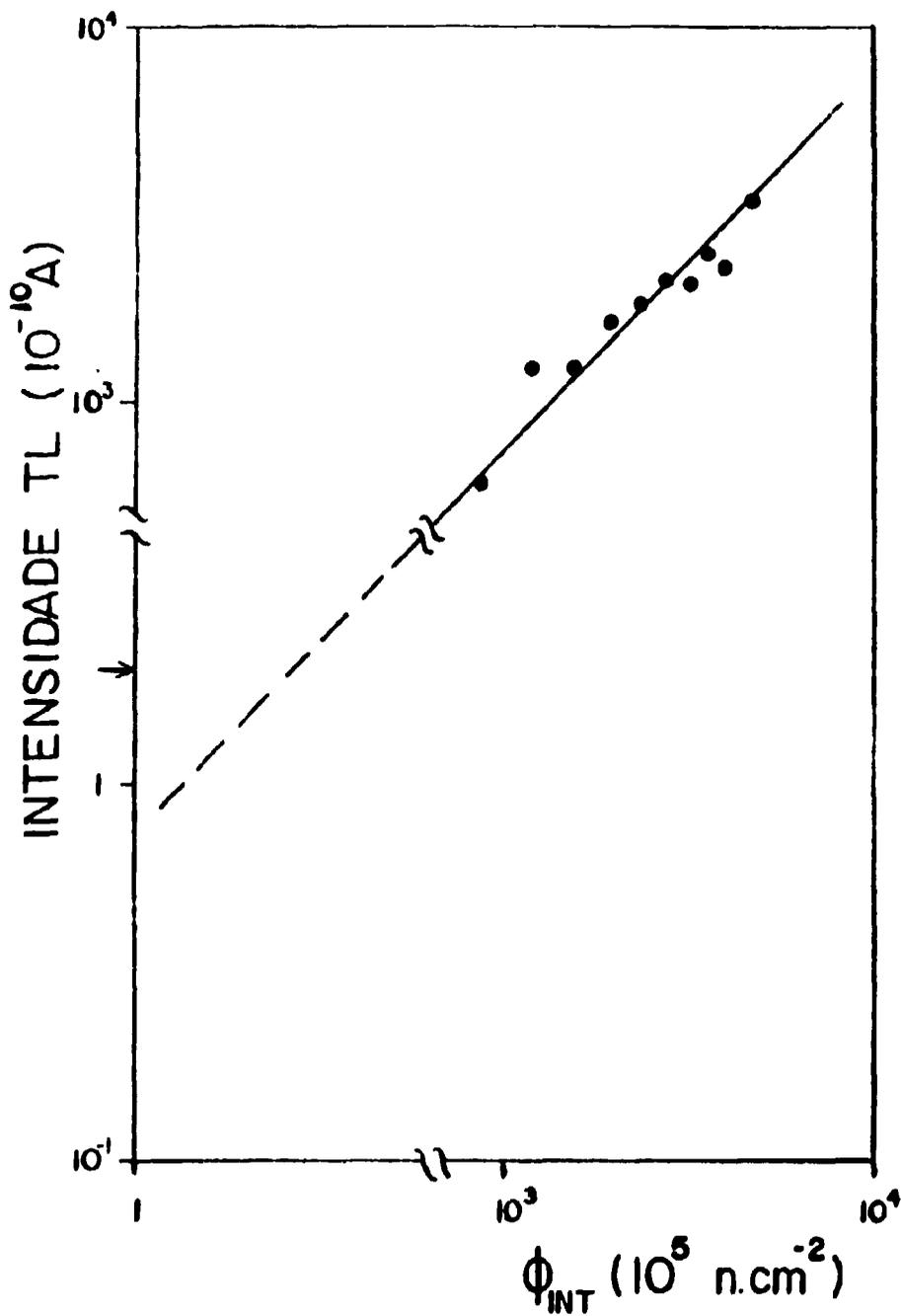


Figura 3.13 - Amplitude Máxima do Pico II de Pastilhas BC-1 (60 mg $\text{CaSO}_4 \cdot \text{Dy}$ + 30 mg Dy_2O_3 + 90 mg KCl) para Diferentes Fluências de Nêutrons Intermediários da Fonte de ^{252}Cf

$$\psi(E) = C \cdot r(E) \quad (III.2)$$

e, então:

$$\phi_{INT} = C \int_{E_1}^{E_2} \frac{r(E)}{E} dE \quad (III.3)$$

C é uma constante que pode ser calculada com o auxílio dos valores determinados experimentalmente para a razão de cádmio, RC, e das atividades das amostras com e sem envoltório de cádmio (A_c e A_n , respectivamente), através da relação⁽⁹⁾:

$$C = \frac{A_n}{N_n} \cdot \frac{A_c}{N_c} \cdot \frac{1}{[1 - \exp(-\lambda t)] [RC - 1] \int_{E_c}^{\infty} \frac{r(E)}{E} dE} \quad (III.4)$$

Em (III.4) N_n e N_c representam, respectivamente, o número de núcleos alvo das amostras sem e com envoltório de cádmio, λ é a constante de desintegração do isótopo radioativo (no caso o ^{198}Au), t é o tempo de irradiação, e a integral no denominador é a chamada integral de ressonância de ativação, cujo valor é tabelado⁽⁴⁾. O limite inferior de integração nas equações (III.3) e (III.4) é a energia de corte do cádmio, E_c , que depende da geometria do arranjo experimental de irradiação (feixe colimado ou fluxo isotrópico) e da espessura do cádmio. Para as condições utilizadas, de fluxo isotrópico e cádmio com espessura de 1 mm, a energia de corte é 0,68 eV⁽⁴⁾.

O fluxo intermediário resultante deste cálculo é:

$$\phi_{INT} \sim 1,3 \times 10^5 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$$

De posse do valor do fluxo intermediário na posição de irradiação, a fluência a que cada amostra foi submetida é facilmente encontrada. Assim, a fluência mínima que pode ser detectada, na faixa de energia intermediária, é obtida graficamente, admitindo-se que um sinal termoluminescente 5 vezes superior à corrente de fundo do sistema detector (N) possa ser perfeitamente identificado. Portanto, a fluência mínima detectável no campo misto n-gama é $3,5 \times 10^5 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2}$. Este valor é apenas estimativo, na medida que na sua obtenção foram feitas algumas aproximações, sendo que a mais significativa é aquela devida ao retro-espalhamento de nêutrons pelas paredes do arranjo que contém a fonte de ^{252}Cf durante a irradiação. Esta componente altera de uma ordem de grandeza o valor obtido se a sua contribuição é superior a 30%. Ainda assim, este resultado expressa a sensibilidade da técnica de auto-ativação de fósforos termoluminescentes, sugerindo sua utilização na determinação de fluências em fontes isotópicas e na monitoração de área. As principais vantagens desta técnica são: a eliminação da componente gama nos campos de radiação e o tamanho relativamente pequeno das pastilhas, associado à sua elevada sensibilidade. As principais desvantagens são: não pode ser utilizado na monitoração pessoal (devido à meia-vida relativamente curta do isótopo radioativo responsável pela posterior emissão TL), a necessidade de se conhecer o espectro de nêutrons, quando da sua utilização na determinação de fluxo, e o tempo de exposição, que deve ser relativamente curto, pois este tipo de detector apresenta dependência com a taxa de dose e porque tempos longos de exposição dificultariam o seu manuseio.

Outra desvantagem da auto-ativação de fósforos TL é que as amostras não podem ser re-utilizadas após terem sido submetidas a fluências relativamente elevadas, devido às alterações irreversíveis que são produzidas na rede cristalina, que modificam a sensibilidade dos fósforos, para uma mesma dose de radiação.

III.3 – Análise de Curvas de Emissão Termoluminescente de Fósforos Compostos ($\text{CaSO}_4 \cdot \text{Dy} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl} + \text{CaF}_2 \cdot \text{nat} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$)

Algumas propriedades características das pastilhas utilizadas foram expostas no item III.1, relativo à caracterização destes materiais, onde verifica-se que a intensidade TL apresenta uma dependência com a pressão aplicada durante o processo de compactação, e a importância relativa dos efeitos de auto-absorção e auto-blindagem. Cada um destes fatores pode ser sistematicamente estudado afim de obter-se uma otimização quanto ao uso das pastilhas na detecção TL de nêutrons. Entretanto, pelos resultados obtidos no item III.2, relacionado à utilização destes materiais como detectores de radiação, foi visto que a proporção escolhida (aquela para a qual a absorção de nêutrons é máxima), permite a detecção de fluências relativamente baixas de nêutrons de energia intermediária, na presença de radiação gama. Outro aspecto importante relacionado à ativação de pastilhas refere-se ao decaimento da emissão termoluminescente, que é análogo ao decaimento radioativo pois, para um único isótopo ativado, o decaimento da atividade de uma amostra é representado por $\exp(-\lambda t)$, onde λ é a constante de decaimento do radioisótopo.

O decaimento da termoluminescência da amostra está relacionado com o número de núcleos ativados, que é proporcional ao número de raios β^- emitidos. Sendo a radiação beta emitida no decaimento a responsável pela formação de defeitos, que ao serem termicamente estimulados dão origem à emissão TL, a atividade integrada da amostra relativa a um intervalo de tempo Δt , é proporcional à termoluminescência, ou seja:

$$TL \propto \int_{t_0}^t A(t') dt' \quad (III.5)$$

com

$$A(t) = A_0 \exp(-\lambda t) \quad (III.6)$$

onde $A(t)$ é a atividade da amostra no instante t , A_0 é a atividade no instante inicial.

Deste modo, pode-se determinar diretamente o valor da meia-vida efetiva da emissão TL, onde tanto a amplitude máxima do pico dosimétrico quanto a área integrada sob a curva de emissão podem ser tomados como parâmetros indicativos do sinal termoluminescente em um intervalo genérico, Δt , de auto-irradiação.

Na Figura 3.14 tem-se a curva de decaimento da emissão TL de pastilhas BC-1 (60 mg $\text{CaSO}_4 \cdot \text{Dy} + 30$ mg $\text{Dy}_2\text{O}_3 + 90$ mg KCl) irradiadas na estação nº 1 do reator por tempos de 20 seg com envoltório de cádmio (curva A) e 2 seg sem cádmio (curva B). A determinação da meia-vida do isótopo responsável pela auto-irradiação nessas amostras é feita detectando-se o sinal TL (representado na figura pela amplitude máxima do pico dosimétrico) a intervalos de tempo iguais (30 min). O valor obtido graficamente, para a meia-vida da emissão TL, é de aproximadamente 2,3 h, confirmando a hipótese desta emissão ser produzida pela radiação β^- proveniente do decaimento do isótopo radioativo $^{162}_{66}\text{Dy}$ formado durante a irradiação. Esse resultado mostra também que a auto-irradiação, devida a radioisótopos de meias-vidas muito curtas (da ordem de seg), é eliminada com o tratamento térmico

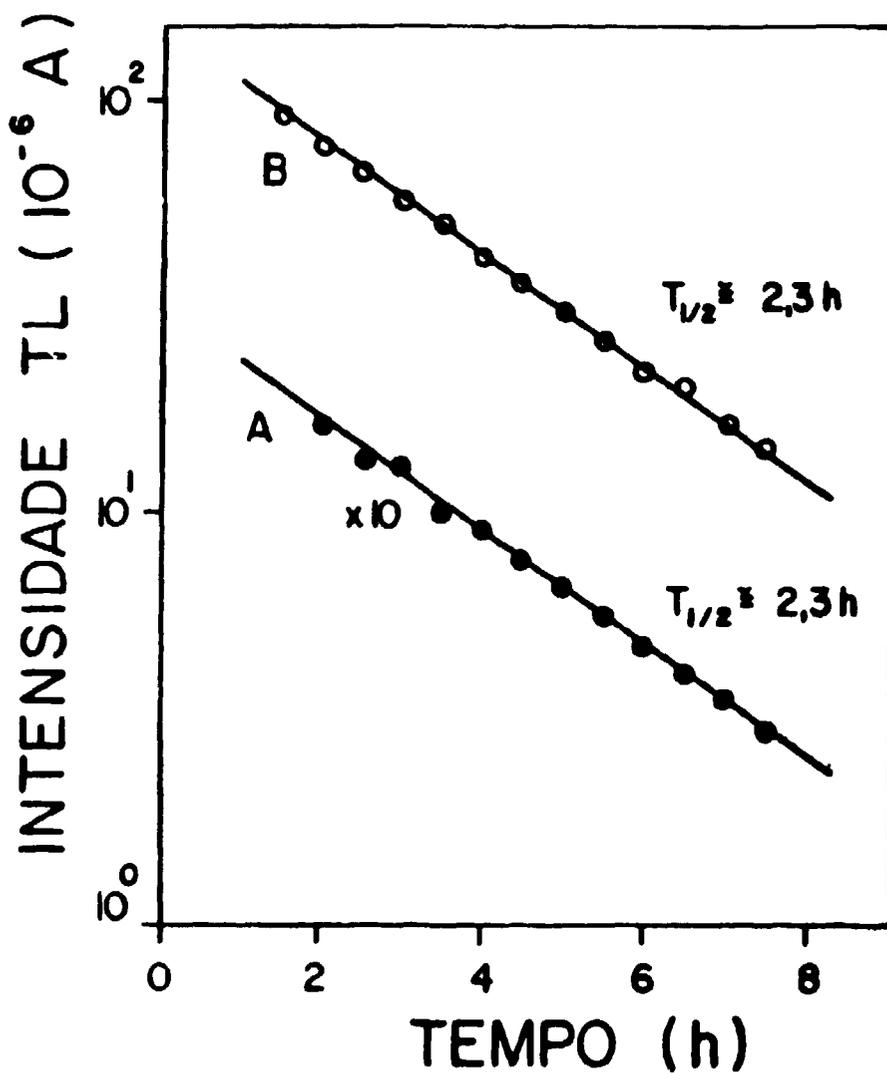


Figura 3.14 – Amplitude Máxima do Pico II de Amostras de: 60 mg $\text{CaSO}_4 \cdot \text{Dy}$ + 30 mg Dy_2O_3 + 90 mg KCl, para Tempos Iguais de Auto-Irradiação, Durante o Decaimento da Atividade das Pastilhas, Previamente Expostas a Nêutrons do Reator, Durante 20 seg Com Cádmi (A) e 2 seg Sem Cádmi (B)

recebido pelas pastilhas logo após o término da irradiação, e que, no intervalo de tempo total de medida utilizado, a contribuição devida a radioisótopos de meias-vidas relativamente longas (superior ou da ordem de dias), é desprezível.

A Figura 3.15A representa a curva de decaimento da emissão termoluminescente de uma pastilha do tipo BC-II (60 mg CaF_2nat + 30 mg Dy_2O_3 + 90 mg KCl), obtida utilizando-se o mesmo procedimento que para as pastilhas de sulfato de cálcio. A amostra foi irradiada na estação nº 1 do reator durante 10 seg. sem envoltório de cádmio, e a intensidade TL nesse gráfico, é representada pela área integrada, em μC , sob a curva de emissão, das sete (7) últimas medidas.

Este resultado possibilita a determinação gráfica da meia-vida do isótopo emissor β^- responsável pela auto-irradiação da amostra. Como era de se esperar, o ^{164}Dy , com seção de choque para ativação com nêutrons térmicos alta relativamente às dos outros constituintes da pastilha, é o responsável pela emissão termoluminescente de meia-vida de aproximadamente 2,32 h. Um exemplo típico da curva de emissão é mostrado na Figura 3.15B, com a presença de pelo menos quatro (4) picos de emissão distintos. O pico de maior amplitude tem para sua amplitude máxima uma temperatura correspondente a 288°C , suficientemente elevada para se pressupor baixo fading e utilizá-lo como medida da termoluminescência.

Considerando-se novamente a auto-irradiação, como sendo devida somente à emissão β^- de um único radioisótopo radioativo, e chamando h_n a n -ésima detecção da amplitude máxima do pico em 288°C , e considerando ainda que as medidas para a determinação da meia-vida (Figura 3.15A) foram feitas a intervalos idênticos de tempo Δt (15 min), de acordo com (III.5) tem-se que:

$$h_n = K \int_{t_0 + (n-1)\Delta t}^{t_0 + n\Delta t} e^{-\lambda t} dt = \frac{K}{\lambda} e^{-\lambda t_0} e^{-\lambda n\Delta t} (e^{\lambda\Delta t} - 1) \quad (\text{III.7})$$

fazendo o mesmo para h_{n-1} , resulta:

$$\frac{h_{n-1}}{h_n} = e^{\lambda\Delta t} \quad (\text{III.8})$$

lembrando que:

$$T_{1/2} = \frac{0,693}{\lambda} \quad (\text{III.9})$$

substituindo o valor de λ de (III.8), tem-se que:

$$T_{1/2} = \frac{0,693 \Delta t}{\ln \left(\frac{h_{n-1}}{h_n} \right)} \quad (\text{III.10})$$

De acordo com (III.10) foram calculados os valores de $T_{1/2}$ para $n = 22$ resultando para a meia-vida da emissão TL nessas pastilhas o valor médio $2,25 \pm 0,87$ h. Os valores calculados apresentam uma flutuação que não pode ser desconsiderada, embora uma pequena variação na medida de h_n

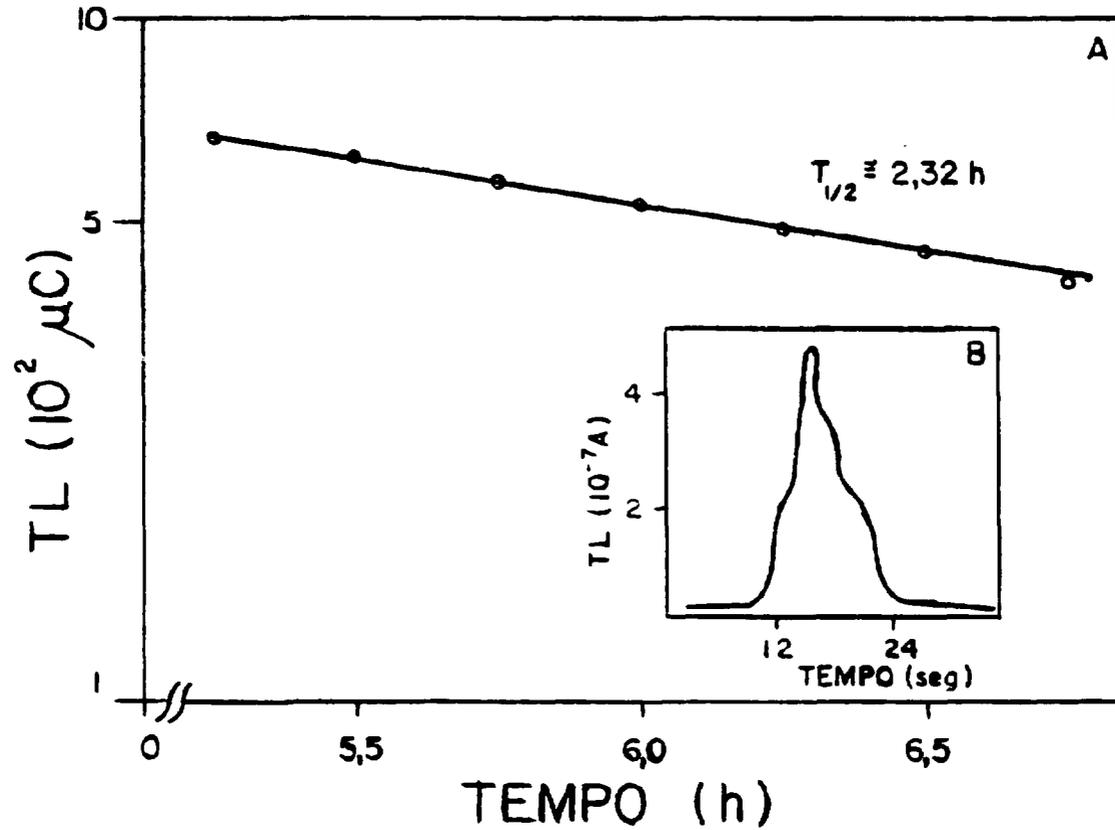


Figura 3.15 – A: Termoluminescência Integrada para Tempos Iguais de Auto-Irradiação, Durante o Decaimento da Atividade de uma Pastilha de 60 mg CaF_2 nat + 30 mg Dy_2O_3 + 90 mg KCl (Tipo BC-11) ; Irradiação Inicial com Nêutrons no Reator Durante 10 seg, Sem Envolvimento de Cádmio
 B: Exemplo Típico de Curva de Emissão Termoluminescente Obtida para a Determinação da Figura A

produza uma diferença significativa em $T_{1/2}$ devido ao logaritmo da expressão (III.10). Outras possíveis fontes de erro na medida de h_n são: a) variação na velocidade de aquecimento, que pode aumentar (vel. de aquec. mais rápida) ou reduzir (vel. de aquec. mais lenta) a amplitude de cada pico, e b) o fading do primeiro pico de emissão; nesse caso, a sua contribuição ao pico de 288°C diminuiria gradativamente com o aumento de n. Por outro lado, sabe-se que a desintegração radioativa é um processo que ocorre ao acaso, introduzindo um erro estatístico intrínseco às medidas de ativação. Além disso, a determinação da meia-vida efetiva da emissão TL, através da equação (III.10), foi baseada na hipótese desta emissão ser produzida por um único isótopo radioativo, pois dentre os demais constituintes das pastilhas, somente dois isótopos conduzem a reações com meias-vidas intermediárias (da ordem de h) de 1,87 h e 12,35 h. A primeira refere-se a reação $^{19}\text{F} (n,2n) ^{18}\text{F}$, que é uma reação pouco provável de ser detectada devido sua elevada energia limiar, de 11 MeV, e por possuir uma secção de choque da ordem de mb; e a segunda, é a reação $^{40}\text{K} (n,\gamma) ^{41}\text{K}$, cuja secção de choque para ativação com nêutrons térmicos, de 1,3 b, é relativamente baixa e requer tempos de irradiação superiores aos que foram utilizados, para a formação de um número considerável de núcleos ativos. Ainda assim, o valor calculado de $T_{1/2}$ é aceitável considerando-se que este tipo de pastilha foi o que apresentou maior espalhamento nos resultados.

De acordo com o que foi mencionado no capítulo II, este trabalho foi realizado com duas versões no sistema detector da termoluminescência, sendo que a principal diferença entre ambos está na velocidade com que as amostras são aquecidas. A vantagem em se utilizar uma velocidade de aquecimento relativamente elevada é que ela proporciona uma intensidade TL maior, comparativamente a uma velocidade de aquecimento menor, para uma mesma dose de radiação. Isto pode ser verificado através da expressão proposta por Randall e Wilkins⁽¹¹⁾, que relaciona a intensidade termoluminescente I (T), representada pela área integrada sob a curva de emissão ou através da amplitude máxima do pico dosimétrico, com a temperatura da amostra T (K), com a velocidade de aquecimento β (K/seg) e com a energia de ativação térmica do processo E (eV):

$$I(T) = I_0 e^{-E/kT} \exp\left\{-\frac{s}{\beta} \int_{T_0}^T e^{-E/kT'} dT'\right\} \quad (III.11)$$

onde I_0 é uma constante, s (seg^{-1}) é o fator de frequência, e k é a constante de Boltzmann (eV/K). Esta expressão representa a equação da curva de emissão de um fósforo contendo um só pico de emissão, na sua forma mais simplificada.

Para ilustrar o efeito produzido pela variação da velocidade de aquecimento na temperatura para a qual a intensidade de TL é máxima, T_M , utilizar-se-á a expressão acima, considerando que para

$$T = T_M, \frac{\delta I(T)}{\delta T} = 0, \text{ resultando:}$$

$$k T_M^2 = \frac{\beta E}{s} e^{E/kT_M} \quad (III.12)$$

Conhecendo-se os valores de s e E pode-se estudar o comportamento da curva de T_M em função de β , embora a equação (III.12) seja mais comumente utilizada na determinação de s.

Uma estimativa do valor da energia de ativação térmica pode ser feita através da equação⁽¹³⁾:

$$E(\text{eV}) = \frac{I_M^{(h)}}{500} \quad (III.13)$$

O valor de E assim obtido é apenas aproximado devido à incerteza na temperatura real da amostra, produzida pelo gradiente de temperatura entre as faces, e devido ao fator numérico desta equação ser dependente do valor de s. Inserindo em (III.13) os valores de T_M (603 K e 646 K) resultam, para as pastilhas de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$ e de $\text{CaF}_2:\text{nat} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$, $E = 1,20 \text{ eV}$ e $1,29 \text{ eV}$, respectivamente.

A Figura 3.16 mostra as curvas que representam a variação de T_M com β para os valores calculado de E e para $s = 10^{10} \text{ seg}^{-1}$. O comportamento de ambas as curvas pode ser descrito em termos de um crescimento inicial rápido, da temperatura relativa à amplitude máxima, com o aumento da velocidade de aquecimento. Esta variação torna-se gradativamente mais lenta à medida que β aumenta. Desse modo a velocidade de aquecimento utilizada, de 21K/seg, na região onde são detectados os picos dosimétricos, demonstra ser, em princípio, adequada, encontrando-se na parte ainda crescente das curvas da Figura 3.16. Velocidades de aquecimento superiores produziriam um aumento relativamente pequeno em T_M ; assim, para obter-se um aumento de 10K na temperatura relativa à amplitude máxima do pico dosimétrico de uma pastilha de sulfato de cálcio, seria necessário um aumento de 13K/seg na velocidade de aquecimento, enquanto que somente a metade deste valor seria suficiente para uma diminuição de 10K. Esta variação é menos acentuada em pastilhas que contém a fluorita, embora o pico III desta amostra seja detectado em uma temperatura relativamente elevada, onde a contribuição da emissão incandescente da prancheta é significativa.

A Figura 3.17 mostra a curva de emissão TL obtida durante a auto-irradiação de uma pastilha de 60 mg $\text{CaF}_2:\text{nat} + 30 \text{ mg Dy}_2\text{O}_3 + 90 \text{ mg KCl}$, irradiada durante 20 seg na estação nº 1 do reator com envoltório de cádmio. Como pode ser visto, o domínio da emissão da prancheta em temperaturas elevadas, produz um crescimento brusco na curva de emissão termoluminescente, e que se inicia próximo ao pico dosimétrico deste tipo de pastilha, dificultando a medida da TL induzida (referente à amplitude máxima do pico III).

O aumento da temperatura relativa a um determinado pico de emissão, devido à utilização de uma velocidade de aquecimento mais elevada, pode ser calculado considerando a equação III.12, para duas velocidades de aquecimento, β_1 e β_2 :

$$\left(\frac{T_{M1}}{T_{M2}} \right)^2 = \frac{\beta_1}{\beta_2} \frac{e^{E/k T_{M1}}}{e^{E/k T_{M2}}} \quad (\text{III.14})$$

De acordo com as condições experimentais usadas: $\beta_1 = 9 \text{ K/seg}$, $T_{M1} = 568 \text{ K}$ e $\beta_2 = 21 \text{ K/seg}$, o pico dosimétrico das pastilhas que contém a fluorita deveria ser detectado em $T_{M2} = 587 \text{ K}$. A posição assinalada na Figura 3.17 corresponde à uma temperatura de 646K, mostrando que outros efeitos contribuem para o deslocamento de T_M para temperaturas mais altas, tais como, a proximidade dos picos de emissão e o gradiente de temperatura entre as faces da pastilha⁽⁶⁾ (ambos decorrentes do aumento em β).

IV – CONCLUSÕES

Baseados nos resultados que foram expostos, tem-se:

- a) Os picos de emissão TL do $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ e do $\text{CaF}_2:\text{nat}$ são detectados em temperaturas mais elevadas quando sob forma de pastilhas;
- b) As pastilhas que contém como fósforo TL o $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ são mais sensíveis à radiação ionizante, relativamente às pastilhas com $\text{CaF}_2:\text{nat}$;

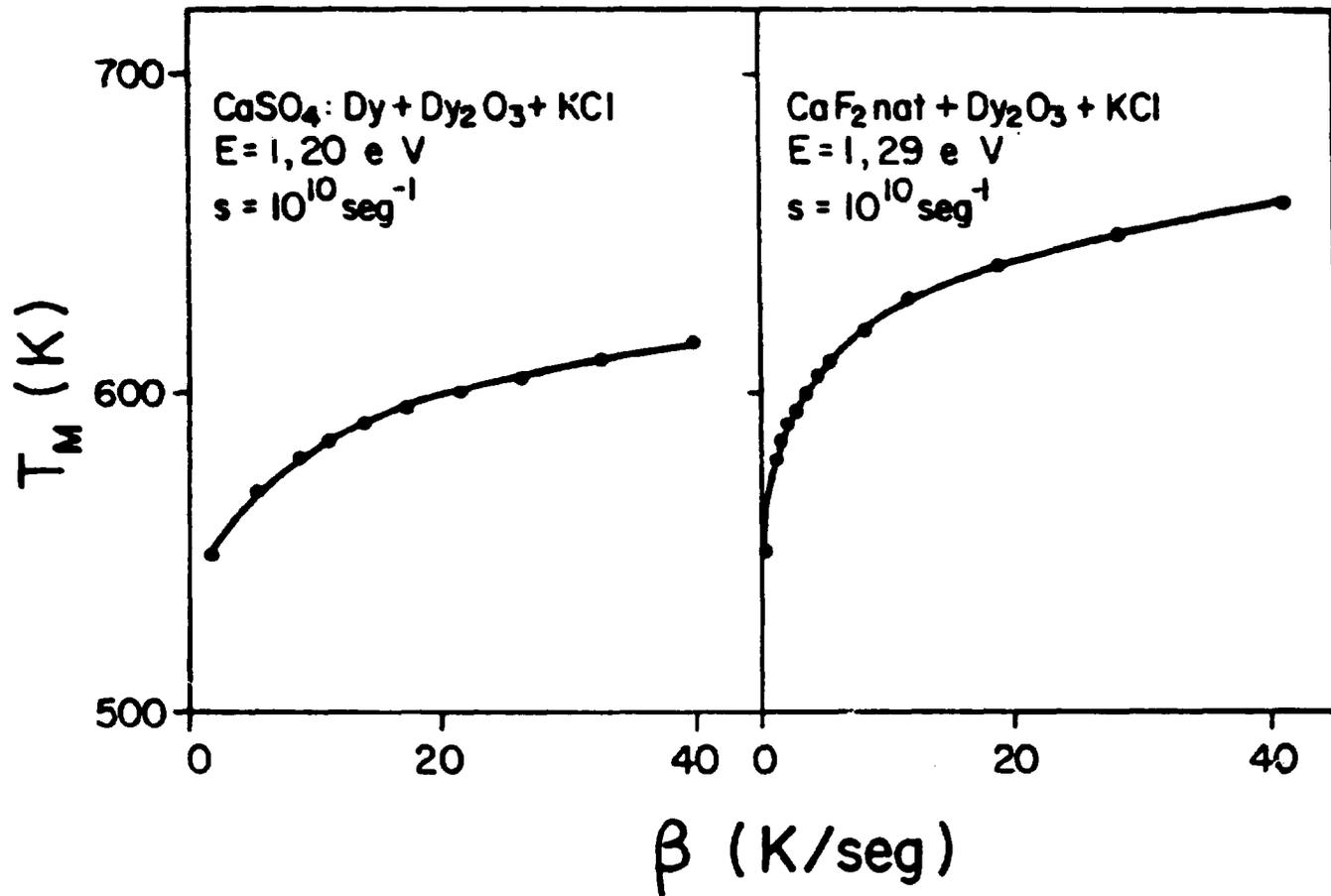


Figura 3.16 – Dependência da Temperatura Correspondente à Amplitude Máxima de Emissão TL (T_M) com a Velocidade de Aquecimento (β), para Picos Dosimétricos de Pastilhas de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$ e $\text{CaF}_2 \text{ nat} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$

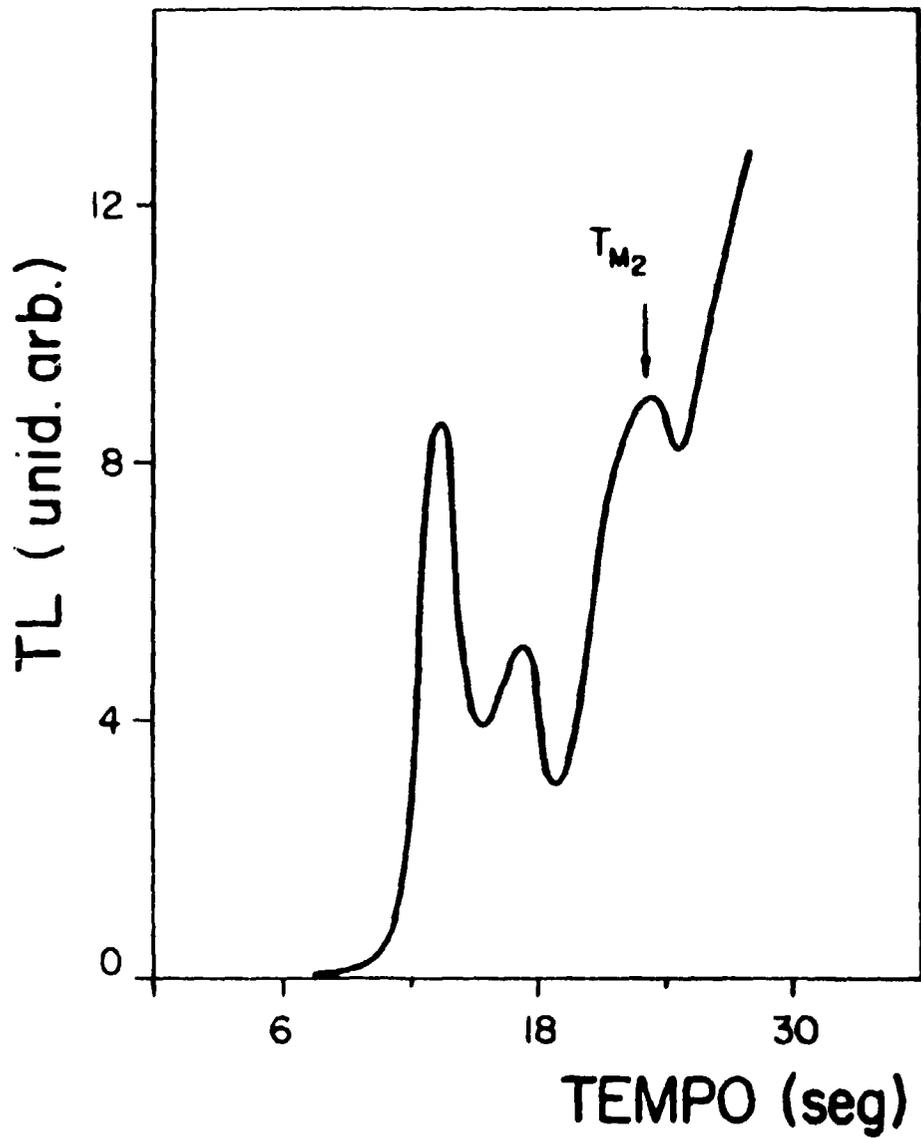


Figura 3.17 - Curva de Emissão Devida à Auto-Irradiação de Pastilhas de CaF_2 nat + Dy_2O_3 + KCl, Irradiadas Durante 20 seg no Reator, com Envolvimento de Cádmi

- c) Para uma mesma dose de radiação, as pastilhas de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ (CaF_2 nat) apresentam uma amplitude de emissão termoluminescente 24 (3) vezes superior à do TLD-600;
- d) A absorção máxima de nêutrons ocorre para a mesma proporção nos dois tipos de pastilha, onde a razão fósforo/ativador é de 2/1;
- e) Nessa proporção a amplitude de emissão termoluminescente nas pastilhas de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ (CaF_2 nat) é amplificada de 160 (60) vezes em relação às amostras que não contém o ativador;
- f) Ao serem submetidas a fluências de nêutrons relativamente elevadas, as pastilhas que contém a fluorita apresentam um comportamento supralinear para a amplitude de emissão TL, enquanto que nas pastilhas que contém o sulfato de cálcio, este efeito só é verificado em irradiações sem a blindagem para nêutrons térmicos;
- g) A meia-vida da emissão TL das pastilhas de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ é de 2,3 h. Para as pastilhas de CaF_2 nat foram obtidos 2,32 h (graficamente) e $2,25 \pm 0,87$ h (calculado).
- h) Nêutrons de energia térmica dão origem a um pico de emissão TL em pastilhas de CaF_2 nat, sendo que à sua amplitude máxima corresponde uma temperatura de $\sim 288^\circ\text{C}$;
- i) A fluência mínima detectável, através da auto-irradiação de pastilhas que contém o $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$, na faixa de energia intermediária é de $3,5 \times 10^5 \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}$. Desse modo, propõe-se a utilização de pastilhas de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$, na detecção de nêutrons intermediários de fontes isotópicas.

O limite inferior de detecção pode ainda ser estendido. Com este objetivo trabalhos complementares podem ser feitos, visando uma otimização quanto às condições de tratamento mecânico e diminuição na opacidade das pastilhas, com um aumento consequente na sensibilidade TL, através de processos de sinterização ou compactação a quente da mistura.

ABSTRACT

Thermally stimulated luminescence (TSL) studies have been carried out in cold-pressed $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$ (specimen I) and natural $\text{CaF}_2 + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$ (specimen II) polycrystalline samples.

The ratios of the TSL sensitivities of specimens I and II relative to that of ${}^6\text{LiF:Mg,Ti}$ (TLD-600) are found to be 24 and 3, respectively.

The main purpose of this work is the detection of intermediate neutrons, based on neutron activation followed by self-irradiation of the specimens.

The minimum detectable neutron fluence has been determined to be approximately $3.5 \times 10^5 \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}$.

The determination of the effective half-life of the TSL emission lead to the identification of the isotope responsible for the self-irradiation of the specimens: ${}^{165}_{66}\text{Dy}$.

The main results shown in this work suggest the use of the TSL technique for the detection of intermediate neutron fluences from isotopic sources, using $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{Dy}_2\text{O}_3 + \text{KCl}$ cold-pressed specimens.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS*

1. BECKURTZ, K. H. & WIRTZ, K. *Neutron physics*. New York, N. Y., Springer, 1964.
2. EWLES, J. & LEE, N. *J. electrochem. Soc.*, 100:392, 1953.
3. GOLDBERG, M. D.; MUGHABGHAB, S. F.; PUROHITS, S. N.; MAGURNO, B. A.; MAY, V. M. *Neutron cross sections, v.2C: Z = 61 to 87*. 2.ed. Upton, N. Y., Brookhaven National Laboratory, Aug. 1966. (BNL-325, Suppl. 2).
4. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. *Neutron fluence measurements*. Vienna, 1970. (Technical reports series, 107).
5. KIVITS, P. & HAGEBEUK, H. J. L. Evaluation of the model thermally stimulated luminescence and conductivity; reability of trap depth determinations. *J. Lumin.*, 15:1-27, 1977.
6. LAND, P. L. *J. phys. Chem. solids*, 30:1681, 1969.
7. OKUNO, E. *Propriedades termoluminescentes do fluoreto de cálcio natural*. São Paulo, 1971. (Tese de doutoramento).
8. OKUNO, E. [Relatório CPRD-AMD-IEA].
9. PRICE, W. J. *Nuclear radiation detection*. New York, N. Y., McGraw-Hill, 1958. (McGraw-Hill series en nuclear engineering).
10. PROUZA, Z. & RAKOVIC, M. The resonance neutrons in activation analysis, Part 1: theory. *Isotopenpraxis*, 3(10):389-94, Okt. 1967.
11. RANDALL, J. T. & WILKINS, M. H. F. *Proc. R. Soc. London, A, Mathematical Physical Sciences*, 184:365, 1945.
12. SHALGAONKAR, C. S. & NARLIKAR, A. V. *J. mater. Sci.*, 7:1465, 1972.
13. URBACH, F. Storage and release of light by phosphors. In: AMERICAN PHYSICAL SOCIETY. *Preparation and characteristics of solid luminescent materials: symposium held at Cornell University, October 24-26, 1946*. New York, N. Y., Wiley, 1948. p.115-47.
14. YAMASHITA, T.; NADA, N.; ONISHI, H.; KITAMURA, S. Calcium sulfate activated by thulium or dysprosium for thermoluminescence dosimetry. *HiTh Phys.*, 21:295-300, 1971.

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



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

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