

BR8715749

ISSN 0101-3084

CNEN/SP

ipen Instituto de Pesquisas
Energéticas e Nucleares

PASTILHAS DOSIMÉTRICAS DE $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ + TEFLON PARA
DETECÇÃO DA RADIAÇÃO X, BETA E GAMA

Leticia Lucente Campos e Marina Ferreira Lima

PUBLICAÇÃO IPEN 120

AGOSTO/1987

SÃO PAULO

**PASTILHAS DOSIMÉTRICAS DE $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ + TEFLON PARA DETECÇÃO
DA RADIAÇÃO X, BETA E GAMA**

Leticia Lucente Campos e Marina Ferreira Lima

DEPARTAMENTO DE PROTEÇÃO RADIOLÓGICA

**CNEN/SP
INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
SÃO PAULO – BRASIL**

Série PUBLICAÇÃO IPEN

INIS Categories and Descriptors

E 41

THERMOLUMINESCENT DOSEMETERS
CALCIUM SULFATES
RADIATION MONITORING
X - RAY DOSIMETRY
BETA DOSIMETRY
GAMMA DOSIMETRY

PASTILHAS DOSIMÉTRICAS DE $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ + TEFLON PARA DETECÇÃO DA RADIAÇÃO X, BETA E GAMA

Leticia Lucente Campos e Marina Ferreira Lima

RESUMO

Pastilhas dosimétricas de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ + TEFLON de alta sensibilidade e baixo custo para utilização em monitoração da radiação X, beta e gama foram pesquisadas e desenvolvidas pelo Laboratório de Produção de Materiais Dosimétricos do Departamento de Proteção Radiológica e já se encontram disponíveis para a venda. As espessuras das pastilhas estudadas são adequadas para a utilização das mesmas em campos de radiação X, beta e gama. As propriedades dosimétricas das pastilhas, nos diferentes campos de radiação, foram estudadas e são apresentadas neste trabalho. Os resultados obtidos mostram a viabilidade da utilização de dosímetros de 0,80 mm de espessura na monitoração de radiação gama e X e dosímetros de 0,20 mm de espessura em campos de radiação beta.

$\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ + TEFLON DOSIMETRIC PELLETS FOR X, BETA AND GAMMA RADIATION DETECTION

ABSTRACT

$\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ + TEFLON dosimetric pellets with high sensitivity and low cost for X, beta and gamma radiation monitoring were studied and developed by the Dosimetric Material Production Laboratory of the Radiological Protection Department and are disposable for sale. The thickness of the pellets are suitable for X, beta and gamma radiation measurements. The dosimetric properties of these pellets were determined and are presented in this work. The results show the usefulness of 0,20 mm thick pellets for beta radiation monitoring and 0,80 mm thick pellets for X and gamma radiation detection.

INTRODUÇÃO

Em vista da utilização cada vez mais frequente da radiação em vários setores como Física, Biologia, Medicina, Indústria e Agricultura, surgiu a necessidade do desenvolvimento de dosímetros nacionais que substituíssem com vantagens o filme dosimétrico e os dosímetros termoluminescentes comerciais. Em ambos os casos, o material é importado, sendo sua utilização muito dispendiosa, o que reforça a necessidade da obtenção em nosso país de dosímetros que além de sensíveis e práticos, sejam também econômicos.

Um material dosimétrico termoluminescente (TL) totalmente nacional de fácil obtenção e relativamente baixo custo foi pesquisado, desenvolvido e patenteado (1981) pelo Departamento de Proteção Radiológica do IPEN^(1,2). Nos últimos cinco anos o IPEN vem produzindo e vendendo pastilhas

dosimétricas termoluminescentes de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy}$, prensadas a frio utilizando NaCl como material agregante. Essas pastilhas são utilizadas na detecção da radiação X e gama.

Com início da produção de cristais de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy}$ em maior escala do que a que era produzido para pesquisa, constatou-se que o método utilizado para a obtenção dos cristais⁽¹⁵⁾ apresenta inconvenientes como os de contaminação atmosférica com vapor de ácido sulfúrico, corrosão e falta de controle das impurezas nos cristais, introduzidas durante o processo de crescimento, o que resulta em perda de sensibilidade TL do material.

Por outro lado, embora bastante sensíveis, as pastilhas de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{NaCl}$ são mecanicamente frágeis e a higroscopicidade do material agregante as torna vulneráveis em ambientes com excesso de umidade sendo necessário selar hermeticamente as mesmas em filme fino de polietileno. A espessura mínima das pastilhas é de 1,0 mm, o que dificulta sua utilização na detecção da radiação beta.

Para eliminar os problemas de contaminação do meio ambiente e aumentar a sensibilidade TL dos cristais foi desenvolvido um novo método de crescimento⁽⁴⁾. Foi também pesquisada e desenvolvida a técnica de obtenção de pastilhas sinterizadas, utilizando Teflon como material agregante⁽⁵⁾, o que eliminou os problemas de fragilidade e higroscopicidade e permite a obtenção de pastilhas de espessuras muito menores que são adequadas para detecção da radiação beta^(14,6).

Um estudo detalhado das propriedades dosimétricas das pastilhas de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{Teflon}$ foi efetuado, com o objetivo de sua utilização em monitoração da radiação X, beta e gama.

PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

A – Obtenção dos Cristais

O novo método de obtenção de monocristais de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy}$ desenvolvido solucionou todas as dificuldades encontradas quando da utilização do método de Yamashita⁽¹⁵⁾. O método consiste de um sistema de evaporação selado, acoplado a frascos lavadores contendo solução de NaOH para neutralizar o vapor de ácido, utilizando fluxo de nitrogênio gasoso para arraste deste vapor.

Com esse método foi obtido um controle maior de todos os parâmetros envolvidos no crescimento dos cristais e a cristalização pode ser controlada variando-se a temperatura de evaporação e o fluxo do gás. O desvio padrão da média da resposta TL de diferentes lotes obtidos pelo novo método é de 5% (1 σ) enquanto que anteriormente chegava a 20% (1 σ). Outro fator importante foi o aumento na sensibilidade TL do material, devido ao controle maior das impurezas nos cristais.

Para comparação do material produzido no IPEN com o material produzido por outros países, foi efetuado um estudo detalhado para a determinação da energia de ativação (E) e do fator de frequência (s), que são os parâmetros que refletem as propriedades TL do material que são importantes em dosimetria TL, como por exemplo a estabilidade e a temperatura do pico de emissão TL. Os resultados obtidos para E e s⁽²⁾ aplicando-se diferentes métodos de determinação^(7,8,9,10,11) são da mesma ordem de grandeza dos encontrados na literatura^(1,13) para esse material, o que comprova que o material produzido no IPEN apresenta características termoluminescentes semelhantes àquelas apresentadas por materiais produzidos em diferentes laboratórios.

B – Preparo das Pastilhas

As pastilhas são obtidas pela prensagem a frio e sinterização de uma mistura de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{Teflon}$, ambos na forma de pó.

A melhor proporção fósforo-agregante é de 1 : 2 respectivamente. Foram produzidas pastilhas

com espessuras entre 0,10 mm e 0,80 mm, com massa entre 15 e 50 mg respectivamente. Em todos os casos, o diâmetro é de 6 mm.

As pastilhas obtidas, mesmo as mais finas, são flexíveis, mecanicamente resistentes, possuem alta sensibilidade, são economicamente viáveis e principalmente não são higroscópicas.

C – Estudo das Características TL

Para estudo das características dosimétricas das pastilhas, foi utilizado um sistema leitor termoluminescente produzido pela Harshaw Chem. Co, modelo 2000, módulos A e B.

A velocidade de aquecimento em todas as medidas foi de $10^{\circ} \text{C} \cdot \text{s}^{-1}$ e a luz emitida foi integrada no intervalo de temperaturas entre 180 e 350°C .

As irradiações gama foram efetuadas usando-se uma fonte de ^{60}Co (1 GBq). As pastilhas foram sempre irradiadas sob condições de equilíbrio eletrônico, selados em um filme de polietileno de 0,2 mm de espessura, somente para proteger as pastilhas de pó ou gordura das mãos.

As irradiações beta foram efetuadas usando-se o Sistema Padrão Secundário Beta do Laboratório de Calibração do IPEN, no qual constam as seguintes fontes: $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ (74MBq); $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ (2MBq); ^{204}Tl (18,5MBq) e ^{147}Pm (0,5 GBq), produzidas pela Euehler & Co. As pastilhas foram sempre irradiadas sobre um fantoma de lucite de 12 mm de espessura e recobertas com filme de Hostaphan de $15 \mu\text{m}$ de espessura. O uso do fantoma é para simular o corpo humano e a radiação espalhada por este.

Todas as medidas foram efetuadas 24 horas após a irradiação. O tratamento térmico padrão para reutilização das pastilhas foi 300°C durante 3 horas.

Todos os resultados representam a média de no mínimo dez medidas e as barras de erro, o desvio padrão da média.

Neste trabalho serão considerados somente os resultados obtidos com pastilhas de 0,20 e 0,80 mm de espessura, que foram as que apresentam maior sensibilidade em campos de radiação beta e gama respectivamente.

RESULTADOS

A – Curva de Emissão TL

A Figura 1 mostra a curva de emissão TL típica das pastilhas de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{Teflon}$. O pico principal que é o chamado pico dosimétrico, aparece a uma temperatura de 230°C . Um outro pico bem definido pode ser observado em 140°C .

B – Sensibilidade

A sensibilidade média expressa como o sinal TL produzido por 1Gy de dose absorvida no ar no caso de radiação beta do $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ ou ^{204}Tl e $2,58 \cdot 10^{-4} \text{C} \cdot \text{kg}^{-1}$ de exposição no caso da radiação gama do ^{60}Co , em 1 mg do fósforo, foi determinada e comparada para as pastilhas de 0,20 e 0,80 mm de espessura.

Os resultados são mostrados na Tabela 1. Como pode ser observado para a detecção da radiação beta, as pastilhas de 0,20 mm de espessura apresentam maior sensibilidade enquanto que para radiação gama as pastilhas de 0,80 mm são mais sensíveis. Esse fato pode ser explicado considerando-se que as partículas beta não penetram toda a pastilha, mas a contribuição maior é na superfície.

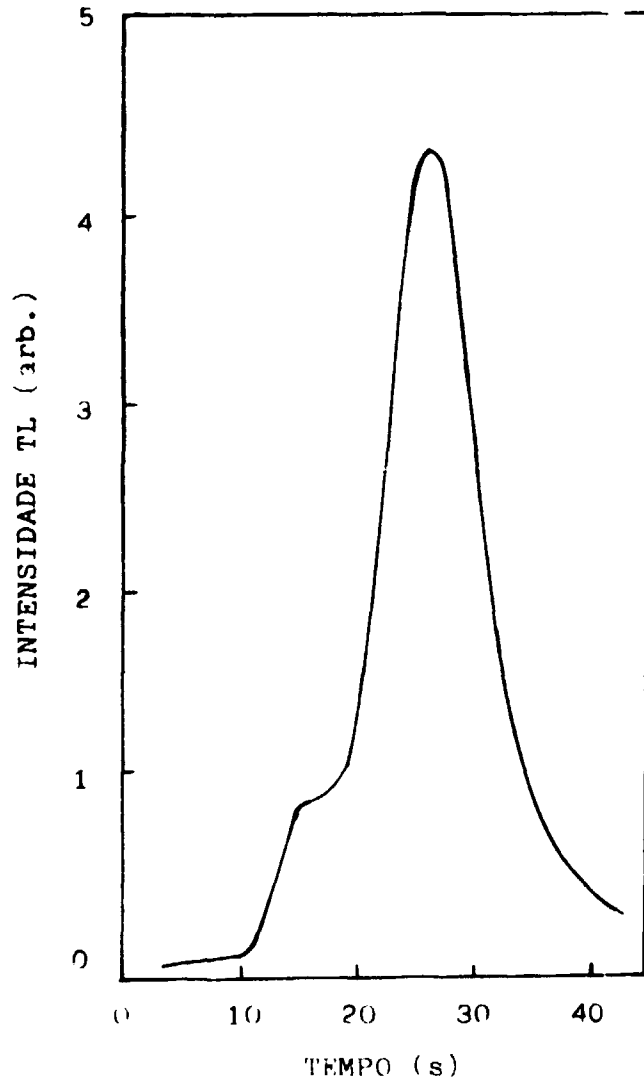


Figura 1 – Curva de emissão típica das pastilhas de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{Teflon}$.

Tabela I

Comparação da sensibilidade TL das pastilhas de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{Teflon}$ para radiação beta e gama

Espessura da pastilha	Massa do fósforo	Sensibilidade TL média para radiação beta	Sensibilidade TL média para radiação gama
mm	mg	$\text{nC} \cdot \text{Gy}^{-1} \text{mg}^{-1}$ $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y} \quad ^{204}\text{Tl}$	$\text{nC} \cdot \text{R}^{-1} \text{mg}^{-1}$ ^{60}Co
0,20	4	78 60	217
0,80	16	55 27	240

C – Reprodutibilidade

A reprodutibilidade individual das pastilhas foi investigada estudando-se o efeito de repetidos ciclos de aquecimento, irradiação com fonte de ^{60}Co ou $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ e leitura TL. Esse estudo foi efetuado com 100 amostras, usadas 20 vezes cada uma, sendo que 50 foram sempre expostas à radiação gama e 50 à radiação beta.

Após os 20 ciclos, o desvio padrão máximo da média foi de 3,9% (1σ) para amostras irradiadas com ^{60}Co e 2,2% (1σ) para amostras irradiadas com $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$.

D – Estabilidade

O decaimento do sinal TL foi estudado por um período de 90 dias. Dois lotes de pastilhas foram previamente irradiados, um com ^{60}Co e outro com $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ e armazenados à temperatura ambiente e em local adequado. Periodicamente foram medidas as pastilhas armazenadas de ambos os lotes. Após um período de 90 dias, foi observado um decréscimo no sinal TL em ambos os casos de 7%. Para um período de 30 dias, que é o mais utilizado na monitoração pessoal, o decaimento foi de apenas 3% (Figura 2).

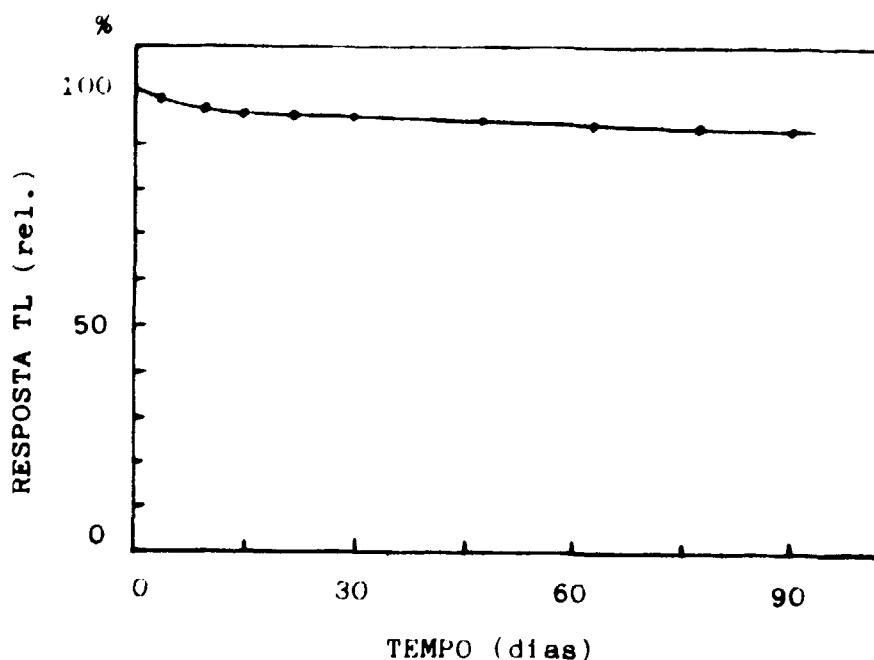


Figura 2 – Curva de decaimento do sinal TL das pastilhas de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{Teflon}$.

E – Dependência com a Taxa de Exposição ou Taxa de Dose Absorvida

A dependência da resposta TL com a taxa de exposição à radiação gama bem como com a taxa de dose absorvida de radiação beta foi investigada. Não foi observada qualquer dependência da resposta TL dentro de uma incerteza de 2% (1σ) para taxas de exposição entre $2,58 \times 10^{-6} \text{ C.kg}^{-1} \text{ min}^{-1}$ (10mR min^{-1}) e $5,28 \times 10^{-3} \text{ C.kg}^{-1} \text{ min}^{-1}$ ($20,5 \text{ R min}^{-1}$) nem com taxas de dose absorvida de radiação beta entre $2 \mu\text{Gys}^{-1}$ e $130 \mu\text{Gys}^{-1}$.

F – Limite Mínimo de Detecção

O valor mínimo detectável foi tomado com $\bar{X}_0 + 3\sigma$ onde \bar{X}_0 é o sinal TL médio de amostras não irradiadas e σ o desvio padrão da média.

A resposta TL média de 100 amostras não irradiadas foi de $0,060 \pm 0,005$ nC. Desse modo, a exposição mínima detectável de radiação gama do ^{60}Co é de $3,85 \times 10^{-8}$ C.kg $^{-1}$ (150 μR) e as doses absorvidas mínimas detectáveis para radiação de $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$, ^{204}Tl e ^{147}Pm são de 30, 40 e 100 μGy respectivamente.

G – Linearidade

A resposta TL em função da dose absorvida no ar foi medida para a radiação beta de $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$, ^{204}Tl e ^{147}Pm entre 0,1 e 10 mGy e a linearidade da resposta nessa faixa de dose absorvida é mostrada na Figura 3.

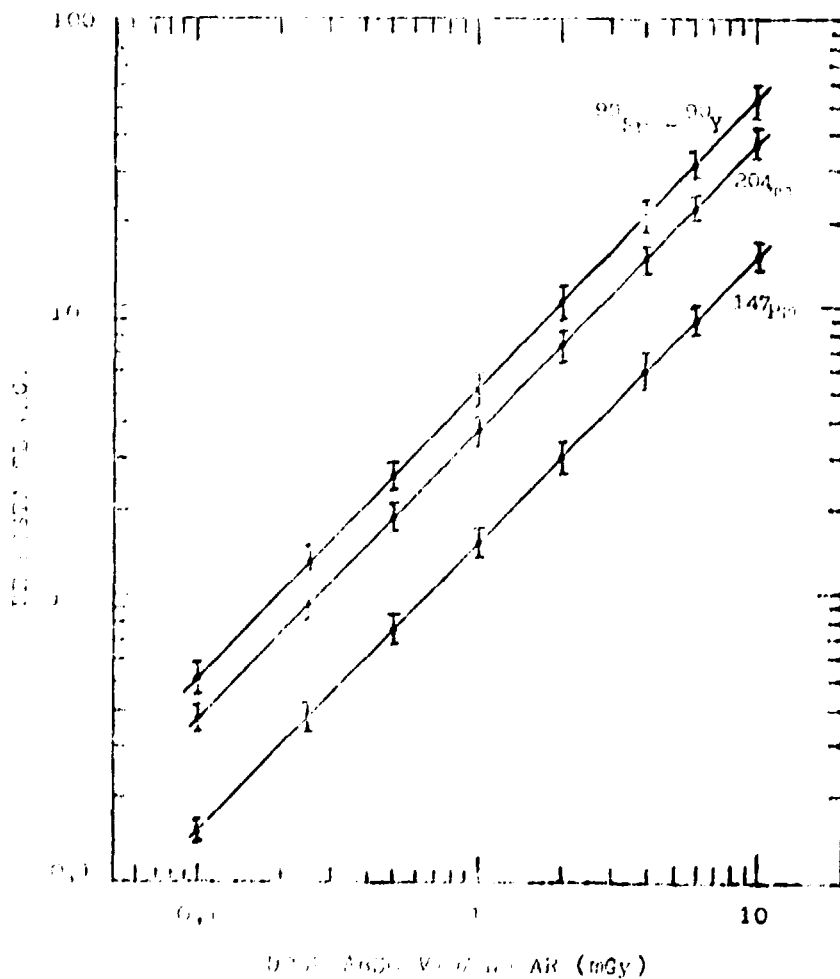


Figura 3 – Resposta TL das pastilhas de $\text{CaSO}_4 \cdot \text{Dy} + \text{Teflon}$ em função da dose absorvida para a Radiação beta das fontes de $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$, ^{204}Tl e ^{147}Pm .

A resposta TL em função da exposição à radiação gama de ^{60}Co foi medida entre $2,58 \times 10^{-7} \text{ C.kg}^{-1}$ (1 mR) e $1,032 \text{ C.kg}^{-1}$ ($4 \times 10^3 \text{ R}$) e é mostrada na Figura 4. Verifica-se que acima de $2,58 \times 10^{-1} \text{ C.kg}^{-1}$ (10^3 R), a resposta TL torna-se supralinear, o que não impede o uso do dosímetro nessa faixa de exposição.

O mesmo comportamento foi observado para a resposta TL em função da radiação X com energias efetivas entre 20 e 155 keV.

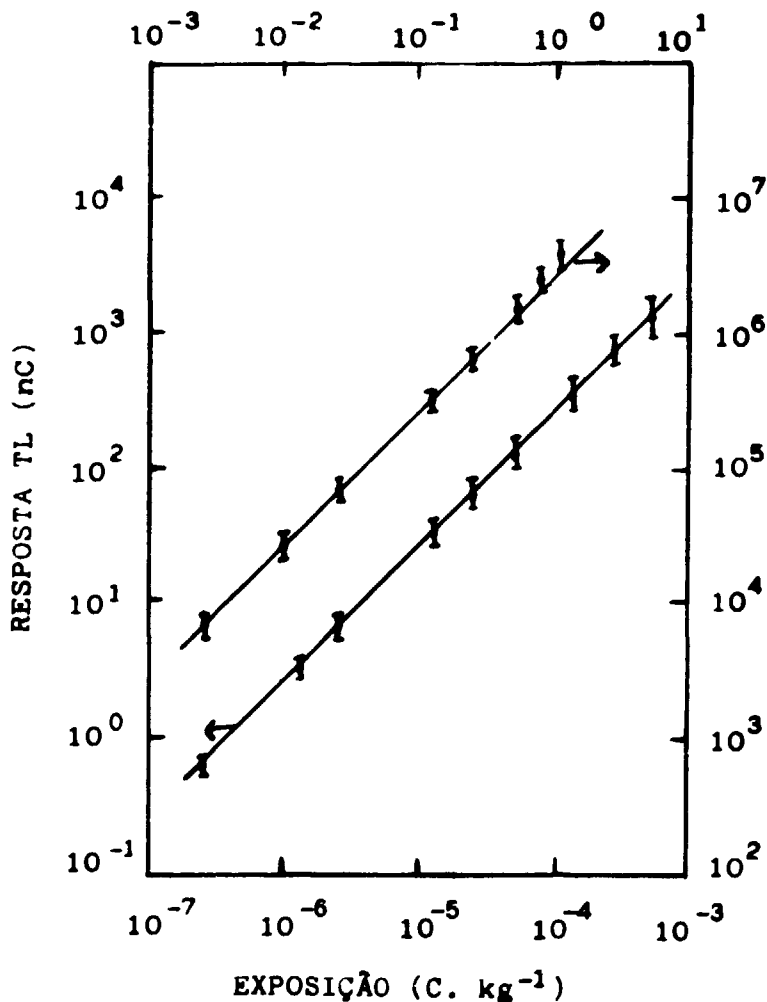


Figura 4 - Resposta TL das pastilhas de $\text{CaSO}_4:\text{Dy} + \text{Teflon}$ em função da exposição à radiação gama de ^{60}Co .

H - Dependência Energética

A dependência energética da resposta TL das pastilhas de 0,20 mm foi estudada para diferentes energias da radiação beta e normalizada para a radiação $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$. Os resultados são apresentados na Tabela II.

Tabela II

Dependência da resposta TL em função da energia da radiação beta

Fonte	Energia Média MeV	Resposta TL relativa ao $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$
$^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$	0,80	1,00
^{204}Tl	0,24	0,77
^{147}Pm	0,06	0,30

A resposta TL das pastilhas de 0,80 mm de espessura em função da energia da radiação X e gama foi medida para as energias de raios-X desde 20 até 155 keV e radiação gama do ^{137}Cs e normalizada para a resposta TL devida à radiação gama do ^{60}Co . As condições experimentais são dadas na Tabela III e a resposta TL em função da energia é mostrada na Figura 5.

Tabela III

Condições experimentais das irradiações com raios-X

Energia Efetiva keV	Filtro Adicional mm	Camada Semi-Redutora mm
20	2,0 Al	0,75 Al
28	2,0 Al	1,62 Al
34	2,0 Al	2,86 Al
45	4,0 Al	5,49 Al
55	0,2 Cu	0,35 Cu
66	0,5 Cu	0,57 Cu
70	0,5 Cu	0,70 Cu
74	0,5 Cu	0,78 Cu
96	1,0 Cu	1,42 Cu
116	Th II	2,07 Cu
128	Th I	2,40 Cu
155	Th III	4,0 Cu

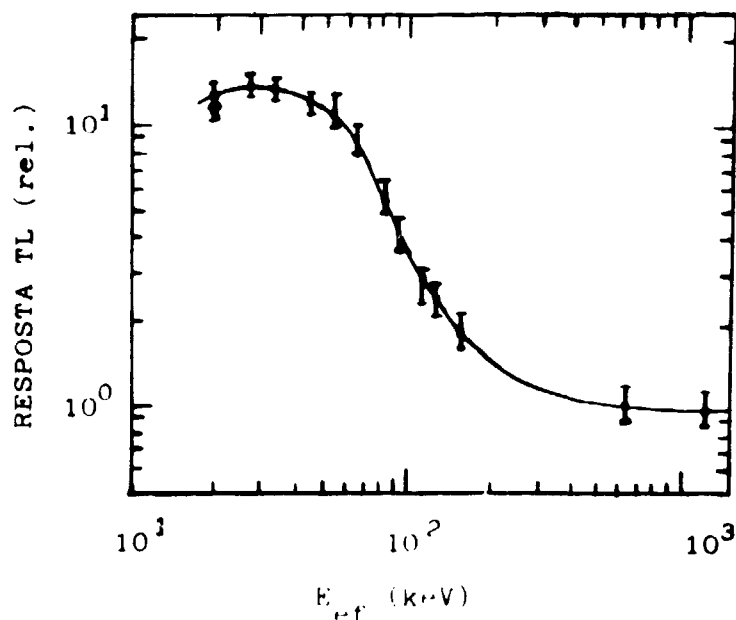


Figura 5 – Resposta TL das pastilhas de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{Teflon}$ em função da energia da radiação gama e X incidente.

A forte dependência com a energia verificada abaixo de 200 keV, pode ser atribuída ao alto valor do número atômico efetivo (Z) do CaSO_4 (15,3). Nessa região de energias o tipo de interação da radiação com a matéria predominante é o efeito fotoelétrico, que depende fortemente de Z .

CONCLUSÃO

Todos os resultados obtidos, sensibilidade, estabilidade, limite mínimo de detecção, linearidade da resposta TL em função da exposição ou dose absorvida, independência com a taxa de exposição ou dose absorvida, aliados ao fato da reprodutibilidade da resposta TL ser igual ou menor a $\pm 3\%$, mostram que as pastilhas de $\text{CaSO}_4 : \text{Dy} + \text{Teflon}$ obtidas pelo laboratório de produção de materiais dosimétricos do IPEN preenchem todos os requisitos para a sua utilização em monitoração da radiação X, beta e gama.

Esse material encontra suas aplicações na monitoração pessoal e ambiental; na determinação de taxas de exposição de fontes gama, aparelhos de raio-X ou terminais de vídeo⁽³⁾; na determinação de taxas de dose absorvida de fontes de radiação beta, etc.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. AZORIN, J.; GUTIERREZ, A. C.; MARTINEZ, C. G. A. Determination of activation energies and frequency factors of $\text{CaSO}_4 : \text{Dy}$ thermoluminescent dosimeters. *Radiat. Eff.*, **84**(3/4): 283–80, 1985.
2. CAMPOS, L. L. Determination of TL parameters of $\text{CaSO}_4 : \text{Dy}$ produced at IPEN. (submitted for publication in *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*)

3. CAMPOS, L. L. Measurement of the exposure rate due to low energy x-rays emitted from video display terminals. (submitted for publication in *Radiat. Prot. Dosim.*)
4. CAMPOS, L. L. Preparation of $\text{CaSO}_4 : \text{Dy}$ TL single crystals. *J. Lumin.*, 28(4): 481-3, 1983.
5. CAMPOS, L. L. & LIMA, M. F. Dosimetric properties of $\text{CaSO}_4 : \text{Dy}$ teflon pellets produced at IPEN. *Radiat. Prot. Dosim.*, 14(4): 333-5, 1986.
6. CAMPOS, L. L. & LIMA, M. F. Thermoluminescent $\text{CaSO}_4 : \text{Dy}$ + teflon pellets for beta radiation detection. *Radiat. Prot. Dosim.* 18(2): 95-8, 1987.
7. CHEN, R. On the calculation of activation energies and frequency factors from glow curves. *J. Appl. Phys.*, 40(2): 570-85, 1969.
8. G/RLICK, G. F. J. & GIBSON, A. F. The electron trap mechanism of luminescence in sulphide and silicate phosphors. *Proc. Phys. Soc.*, 60: 574-90, 1948.
9. HALPERIN, A & BRANER, A. A. Evaluation of thermal activation energies from glow curves. *Phys. Rev.*, 117(2): 408-15, 1960.
10. HOOGENSTRAATEN, W. Electron traps in zinc-sulphide phosphors. *Philips Res. Rep.*, 13: 515-693, 1958.
11. LUSHCHIK, C. B. The investigation of trapping centres in crystals by the method of thermal bleaching. *Sov. Phys. - JETP (Engl. Transl.)*, 3: 390-9, 1956.
12. MORATO, S. P.; GORDON, A. M. P. L.; SANTOS, E. N.; GOMES, L.; CAMPOS, L. L.; PRADO, L.; VIEIRA, M. M. F.; BAPAT, V. N. Development of a solid state dosimeter based on thermoluminescent $\text{CaSO}_4 : \text{Dy}$ crystals. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, 200: 449-55, 1982.
13. NAMBI, K. S. V.; BAPAT, V. N.; GANGULY, A.K. Thermoluminescence of CaSO_4 doped with rare earths. *J. Phys., C. (London). Solid State Phys.*, 7: 4403-15, 1974.
14. ROSA, L. A. R.; CALDAS, L. V. E.; CUNHA, P. G. Thermoluminescence characteristics of ultra-thin $\text{CaSO}_4 : \text{Dy}$ for beta radiation detection. *Radiat. Prot. Dosim.*, 14(4): 329-31, 1986.
15. 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.). *Luminescence dosimetry: proceedings of the 2nd. international conference on . . . held in Gatlinburg, Sept. 23-26, 1968*. Oak Ridge, Oak Ridge National Laboratory, 1968. p. 4-17. (CONF-680920).