

ESPECTROSCOPIA RPE E EMISSÃO TL DO LiF:Mg,Cu,P IRRADIADO COM ALTAS DOSES DE RADIAÇÃO GAMA

Rodrigo de Lucena Kreismann¹; Pedro Luiz Guzzo²

¹Estudante do Curso de Engenharia de Minas - CTG – UFPE; E-mail: rodrigok.44@hotmail.com,

²Docente/pesquisador do Depto de Engenharia de Minas – CTG – UFPE. E-mail: pguzzo@ufpe.br.

Sumário: A dosimetria de altas doses de radiação (>10 kGy) com LiF:Mg,Cu,P vem se mostrando um objeto de estudo em diversas aplicações, como por exemplo em plantas de fissão e fusão nuclear. Porém, o emprego desse material para medida de doses acima de 30 kGy tem causado o aparecimento de um novo pico TL de alta temperatura (~400 °C), denominado pico B, que cresce com o aumento da dose, cuja natureza não é conhecida. Neste contexto, o objetivo deste estudo é realizar experimentos de tratamentos térmicos para investigar a relação entre o sinal TL deste pico e sinais de defeitos paramagnéticos medidos por espectroscopia por ressonância paramagnética eletrônica (RPE). Para isso, foram preparadas alíquotas de LiF:Mg,Cu,P (MCP-N) para serem irradiadas com doses de 1 e 100 kGy, que em seguida foram tratadas termicamente entre 50 e 500 °C. Após esta etapa, foram realizadas medidas de espectroscopia RPE e análises TL. Os resultados mostraram que houve uma diminuição dos sinais RPE produzidos pela alta dose em função do aumento da temperatura de tratamento térmico, assim como o decréscimo do pico B. Porém, após relacionar os resultados, não ficou caracterizado uma relação clara entre os sinais RPE e o processo de recombinação que dá origem ao pico B.

Palavras-chave: emissão termoluminescente; espectroscopia por ressonância paramagnética eletrônica; radiação; tratamento térmico;

INTRODUÇÃO

Com a crescente utilização da dosimetria termoluminescente (TL) em vários seguimentos na medicina, indústria, física de partículas e navegação espacial, vem-se buscando novos materiais que respondam a uma ampla faixa de dose, desde mGy até centenas de kGy. Por exemplo, a aplicação dos dosímetros MCP-N, constituído por material LiF:Mg,Cu,P, vem sendo utilizado para dosimetria de altas doses de radiação em aceleradores de partículas de alta energia e plantas de fissão e fusão nuclear. O princípio desta técnica baseia-se no fato de que elétrons livres produzidos pela radiação ionizante são aprisionados por defeitos pontuais da estrutura cristalina dos materiais dielétricos. Após exposto à radiação ionizante, o material TL emite luz quando aquecido; sendo a intensidade desta emissão proporcional ao número de elétrons armadilhados e, portanto, diretamente proporcional à dose absorvida. Neste contexto, o objetivo deste estudo é realizar experimentos de tratamentos térmicos para investigar a relação entre o sinal TL e o sinal de defeitos paramagnéticos medidos por espectroscopia por ressonância paramagnética eletrônica (RPE). Para isso, 60 alíquotas de LiF:Mg,Cu,P com foram irradiadas com doses de 1 e 100 kGy de raios gama (⁶⁰Co). Em seguida, foram realizados 12 tratamentos térmicos entre 50 e 500 °C. Após esta etapa, foram realizadas medidas de espectroscopia RPE entre 2800 e 3800 G à temperatura ambiente. Essas medidas mostraram a presença de dois sinais distintos nas alíquotas irradiadas com 100 kGy, cujas intensidades variam com a temperatura de tratamento térmico. Posteriormente, as alíquotas foram divididas em subalíquotas, onde em cada subalíquota foi realizada análises TL na faixa entre 100 e 525°C, com uma taxa de aquecimento de 2 °C/s em atmosfera de nitrogênio.

MATERIAIS E MÉTODOS

Foram preparadas 70 alíquotas de LiF:Mg,Cu,P pulverizado, produzido no IFJ (Instituto de física nuclear, Cracóvia, Polônia), com $50,0 \pm 0,5$ mg utilizando balança analítica com precisão de 0,1 mg e logo após, armazenadas em invólucros de papel alumínio. Em seguida, baseando-se em estudos anteriores (Bilski et al. 2008; Obryk et al. 2014), as doses de radiação selecionadas foram: 1 e 100 kGy. As irradiações foram realizadas em um irradiador *Nordion Gammacell 220 Excel* e a taxa de dose desse irradiador, em Agosto/2014, era de 3,309kGy/h, fonte de ^{60}Co , situado no DEN (departamento de energia nuclear da UFPE). No total, foram irradiadas 60 alíquotas (30 para cada dose).

Após aguardado um período de pelo menos 60 horas para esvaziamento das armadilhas rasas (eliminação de sinais TL instáveis), os tratamentos térmicos foram realizados em um forno tipo mufla modelo (*EDG f-3000*). Baseado no método *pulse-annealing* (Gundurao e Moharil 2007), foi adotada a seguinte sequência: (i) aquecimento do forno até a temperatura desejada a uma taxa de $10\text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$; (ii) aguardado 10 min para estabilização da temperatura; (iii) introduzida a amostra; (iv) tratamento de 3 min; (v) retirada a amostra e resfriamento à temperatura ambiente. As temperaturas de tratamento térmico foram: 50, 100, 150, 200, 250, 275, 300, 325, 350, 400, 450 e $500\text{ }^\circ\text{C}$.

Posteriormente, realizou-se medidas por espectroscopia por ressonância paramagnética eletrônica (RPE) com as alíquotas tratadas nas diferentes temperaturas, utilizando um espectrômetro *Bruker EMX 10⁺* (banda X), com a intenção de acompanhar a variação na intensidade dos defeitos paramagnéticos do LiF:Mg,Cu,P particulado em função das doses de irradiação e dos tratamentos térmicos. Testes de reprodutibilidade foram realizados com a finalidade de avaliar o erro percentual associado às medidas. Os sinais foram obtidos de acordo com a variação das intensidades medidas no pico e no vale conforme a Figura 1. Os valores das constantes giromagnéticas (fator-g) dos sinais 1, 2 e 3 são, respectivamente, 2,2075; 2,0057 e 1,9859.

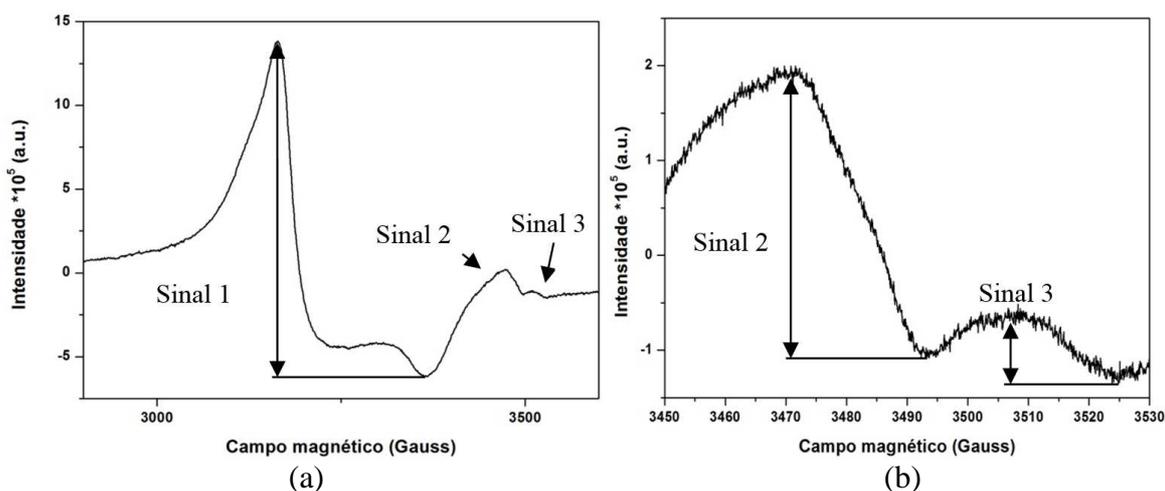


Figura 1 – Sinais característicos de defeitos paramagnéticos obtidos no RPE. Em que, (a) mostra os sinais 1,2 e 3 e (b) uma escala detalhada dos sinais 2 e 3.

Finalmente, as alíquotas de 50 mg foram pesadas três subalíquotas de 5 mg (para uma melhor representatividade nas leituras). Após esta etapa, as leituras TL foram realizadas na leitora *Harshaw TLD 3500*, na faixa entre 100 e $525\text{ }^\circ\text{C}$, com uma taxa de aquecimento de $2\text{ }^\circ\text{C}/\text{s}$ em atmosfera de nitrogênio e uma tensão de 869V. A partir das curvas TL obtidas foram determinadas as intensidades dos principais picos (valor máximo) e a área sob a curva TL (em unidade de carga elétrica).

RESULTADOS E DISCUSSÃO

A Figura 2 apresenta a intensidades dos sinais RPE em função da temperatura de tratamento térmico. Na Figura 2(a) observa-se que no intervalo de 150 °C a 300 °C há uma irregularidade das intensidades e, com isso, pode-se supor que a temperatura não influencia diretamente nas intensidades do sinal 1. No entanto, na Figura 2 (b) a intensidade do sinal 2 tende a crescer até atingir um máximo por volta dos 150°C. Acima desta temperatura, o sinal 2 diminui e tende a desaparecer acima de 450 °C. Porém, o aquecimento até 500 °C não foi suficiente para o sinal desaparecer por completo. Já o sinal 3, com intensidade quase 4 vezes menor que o sinal 2, não sofreu grande influência do tratamento térmico até 300 °C, onde, após esta temperatura, o sinal praticamente desaparece.

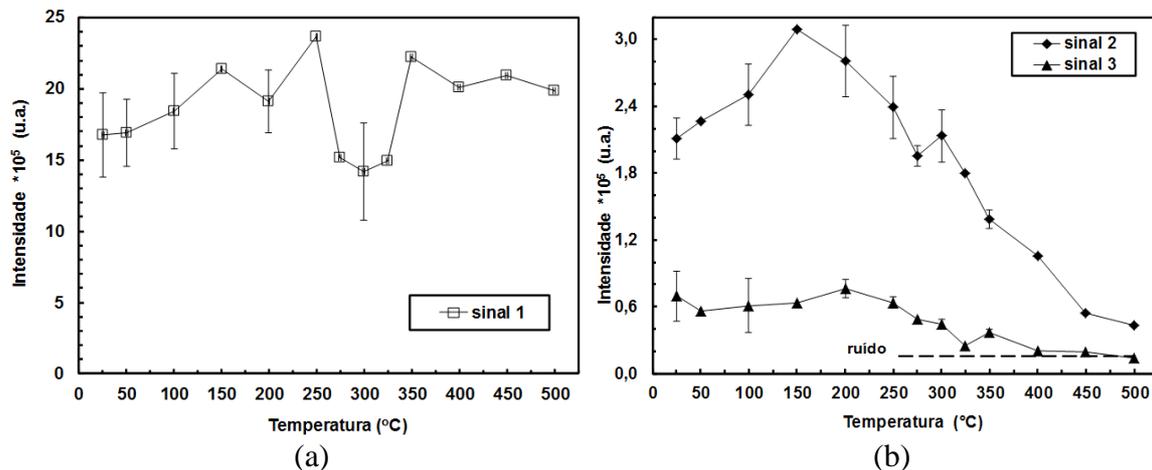


Figura 2 – Intensidades referentes ao sinal 1 (a) e aos sinais 2 e 3 (b) obtidos dos espectros RPE em função do tratamento térmico.

A Figura 3(a) mostra curvas de intensidade TL para alíquotas tratadas termicamente nas seguintes temperaturas: 50, 200, 300, 400 e 500 °C. Observa-se que o pico A ocorre na faixa de 245 °C e atinge intensidade máxima na alíquota tratada em 200 °C e passa a diminuir para temperaturas superiores e desaparece nas alíquotas tratadas a 400 e 500 °C. Por sua vez, o pico B, que ocorre na faixa de 410 °C, também atinge a intensidade máxima na alíquota tratada a 200 °C e, aparentemente, torna-se o único pico presente na alíquota tratada a 500 °C. Esta figura permite explicar os níveis de incerteza associados com a leitura individual das intensidades dos picos A e B. Uma abordagem mais acurada da intensidade desses picos só pode ser feita usando métodos de deconvolução (Campos, 1998). Já na Figura 3(b) é possível analisar o comportamento da intensidade total sob a curva TL em função do tratamento térmico e das intensidades TL referentes aos picos A e B. É identificado um decréscimo na emissão TL à medida que a temperatura de tratamento aumenta. Isso acontece porque no LiF:Mg,Cu,P, a partir do tratamento a 200 °C, os elétrons das armadilhas rasas, formadores do pico A, foram desarmadilhados e ocorreu o processo de recombinação. Também observa-se que a intensidade TL máxima para os dois picos é atingida em 200 °C. Após atingir o máximo, o pico A tende a decrescer com o aumento da temperatura do tratamento térmico. Porém, na curva referente ao pico B, observa-se que sua intensidade praticamente não varia em função da temperatura de tratamento térmico até 400 °C, uma vez que a dispersão em torno dos valores médios é alta para algumas medidas. Uma possível explicação para tal comportamento é porque ao longo do tratamento térmico, a maioria dos elétrons referentes ao pico A foram recombinados, enquanto os elétrons referentes ao pico B ainda necessitam de mais energia para se recombinarem. Ao se relacionar a intensidade do pico B com a intensidade do sinal 2 foi observado este sinal não influencia a presença do pico B.

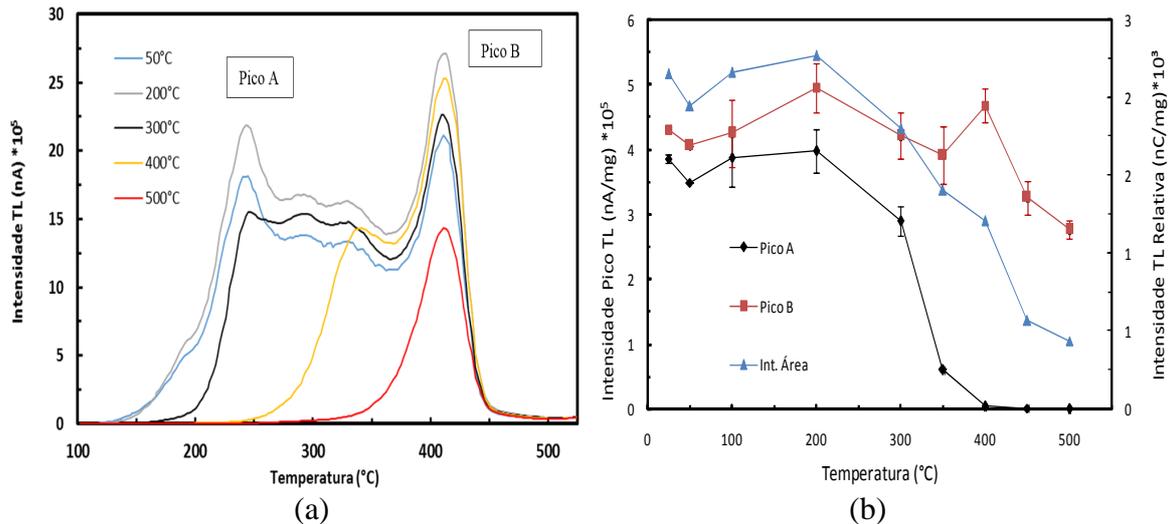


Figura 3 – Curvas das intensidades TL de alíquotas tratadas em diferentes temperaturas após irradiação com 100 kGy (a) e variação das intensidades TL (normalizadas pelas massas das alíquotas) em função da temperatura de tratamento térmico (b)

CONCLUSÃO

Os resultados da análise TL mostraram que, nas alíquotas irradiadas com 100 kGy, o tratamento térmico afetou com maior intensidade o pico A (~ 250 °C) e com menor intensidade o pico B (~ 420 °C), ocorrendo uma diminuição significativa na emissão TL para as alíquotas tratadas acima de 400 °C. Com os resultados de espectroscopia RPE, observou-se uma redução do sinal 2 (fator $g = 2,0057$) em função do aumento da temperatura de tratamento térmico. Porém o defeito paramagnético relacionado com o sinal 2 não está associado com o processo de recombinação que dá origem ao pico B.

AGRADECIMENTOS

Agradecemos à Dra. Barbara Obyrk (Instituto de Física Nuclear, Cracóvia) pelo fornecimento do material e à Profa. Helen J. Khoury (DEN, UFPE) pela disponibilização dos equipamentos e irradiador. Ao mestrando B.Sc. Boisguillebert Nóbrega pelo auxílio na elaboração do relatório. Ao PIBIC/CNPq/UFPE pela concessão da bolsa.

REFERÊNCIAS

- Bilski, P.; Cybulski, T.; Puchalska, M.; Ptaszkiewicz, M.; 2008. Sensitivity loss and recovery for individual TL peaks in LiF:Mg,Ti and LiF:Mg,Cu,P after high-dose irradiation. *Radiation Measurements*; 43: 357-360.
- Carvalho, A. B.; 2010. Preparação e caracterização da resposta TL de quartzo natural pulverizado para uso na dosimetria das radiações ionizantes. Tese de Doutorado, Universidade Federal de Pernambuco, Recife.
- Gundurao, T.K.; Moharil, S.V.; 2007; ESR study of phosphorus-related defects in irradiated LiF: Mg,Cu,P and related phosphors; *Radiation Measurements*; 42: 25-42.
- Campos LL. 1998. Termoluminescência de materiais e suas aplicações em dosimetria das radiações. *Cerâmica* 44: 1-21.
- Obyrick, B., Khoury, H.J., Barros, V. S., Guzzo, P. L., Bilski, P., 2014; On LiF:Mg,Cu,P and LiF:Mg,Ti phosphors high & ultra-high dose features; *Radiation Measurements*, 71, 25-30.
- Oliveira, L.C.; 2010; Estudos dosimétricos da hidroxiapatita por ressonância paramagnética eletrônica e termoluminescência. Tese de Doutorado, Universidade de São Paulo, R. Preto.