

## **UNIDADE DE LIMPEZA ÓPTICA PARA DETECTORES CERÂMICOS $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>**

**Evangelista-Silva , C. R., Mendes, M. A., Ferreira, H. R. e Meira-Belo, L. C.**

Serviço das Radiações Aplicadas à saúde, Laboratório de Dosimetria Termoluminescente, Centro de Desenvolvimento Da tecnologia Nuclear, CDTN/CNEN, CEP: 30161-970, Belo Horizonte, Brasil.

### **RESUMO**

No contexto da dosimetria das radiações, luminescência é a emissão estimulada de luz a partir de um isolante ou semicondutor após a absorção prévia de energia da radiação. Se o estímulo é fornecido por calor a emissão é denominada Termoluminescência (TL) e se é fornecido por exposição à luz esta emissão é denominada luminescência opticamente estimulada (OSL). No presente trabalho construída uma unidade de apagamento óptico de dosímetros capaz de substituir tratamentos térmicos por tratamentos ópticos em detectores cerâmicos  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> obtidos pelo processo sol-gel, calcinados, prensados e sinterizados em atmosfera altamente redutora, produzidos no CDTN. A unidade é composta por três módulos de iluminação, com as cores azul (470nm), verde (534nm) e branca (com um pico estreito em 456nm superposto a um espectro largo com pico em 534nm). Cada módulo é composto por duas placas de 24x24 leds, dispostas de modo a fornecer espaço para a introdução de um suporte transparente, onde são acomodados até 121 detectores para tratamento óptico. A eficiência de apagamento foi investigada para as três cores de led citadas. Foi utilizado um grupo com 30 detectores cerâmicos e 18 monocristalinos. Os detectores foram lidos em uma leitora RISØ até a temperatura de 250°C com uma taxa de aquecimento de 5°C, para a limpeza inicial. A seguir foram irradiados em uma fonte de <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y e iluminados na unidade de apagamento óptico de detectores  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Após a iluminação, foi lida a termoluminescência residual usando a mesma leitora. Este processo foi repetido para diferentes tempos de iluminação. Foram feitas comparações com luz azul, verde e branca. O efeito de apagamento do sinal TL/OSL obtido por meio de tratamento óptico mostrou-se eficiente para tempos de exposição da ordem de dez minutos. Este tempo apresentou dependência tanto com a dose de radiação quanto com a cor de iluminação.

### **1. INTRODUÇÃO**

No contexto da dosimetria das radiações, luminescência é a emissão estimulada de luz a partir de um isolante ou semicondutor após a absorção prévia de energia da radiação. Se o estímulo é fornecido por calor a emissão é denominada Termoluminescência (TL) e se é fornecido por exposição à luz esta emissão é denominada luminescência opticamente estimulada (OSL).

Na leitura, tanto detectores termoluminescentes quanto por luminescência opticamente estimulada, o processo é semelhante, exceto pelo mecanismo de estimulação. Para uma medida TL, a amostra é aquecida de forma controlada (estímulo) e o sinal luminescente é detectado, geralmente, por uma fotomultiplicadora. Para medidas de OSL, a amostra é estimulada com uma fonte de luz intensa tal como um laser ou diodos emissores de luz de alta intensidade. É importante observar que muitos dos materiais utilizados no estudo da luminescência opticamente estimulada também podem ser estudados por termoluminescência.

O interesse pela técnica de Luminescência Opticamente Estimulada cresceu com a introdução de detectores de radiação baseados em materiais cristalinos baseados em materiais cristalinos do tipo  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  com deficiência iônica. Estes materiais constituem uma importante classe de dosímetros de estado sólido, em função de sua alta sensibilidade às radiações ionizantes e à sua versatilidade para aplicações em termoluminescência opticamente estimulada <sup>[3]</sup>.

O detector  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  desenvolvido pelo Instituto Politécnico Urals (UPI) de Moscou na forma de alumina monocristalina, produzido por processos de crescimento de cristais é amplamente usado na monitoração de dose individual, monitoração de dose ambiental, dosimetria espacial, datação e outros <sup>[3]</sup>. Com o aumento da demanda mundial, o detector de alumina monocristalino passou a ser produzido por diferentes empresas que dominam esta técnica.

Embora os detectores monocristalinos de alumina sejam amplamente utilizados, o seu custo de fabricação é elevado e as técnicas de crescimento de cristais usadas requerem condições especiais como atmosfera altamente redutora, alta pressão e altas temperaturas. Assim sendo, várias pesquisas científicas tem buscado processos alternativos para a obtenção de detectores de óxido de alumínio com características similares aos detectores de alumina monocristalinos.

Seguindo esta tendência, vem sendo desenvolvidos detectores cerâmicos de  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  no CDTN com características semelhantes às de detectores comerciais como o TLD500, cuja caracterização como dosímetros TL e OSL vem sendo feita nos últimos anos.

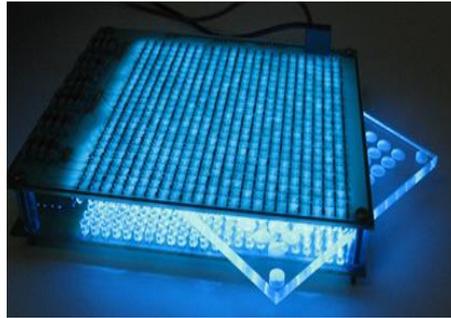
A proposta do presente trabalho é o estudo e desenvolvimento de uma unidade de apagamento óptico para detectores cerâmicos e monocristalinos de  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ , por meio da dissipação de cargas armazenadas em diferentes tipos de armadilhas, utilizando-se fontes de luz visível em comprimentos de onda específicos, sem o uso de tratamentos térmicos

## **2 MATERIAIS E MÉTODOS**

### **2.1. Unidade de Apagamento Óptico**

Para a utilização e reutilização de detectores TL/OSL são necessários tratamentos térmicos a determinadas temperaturas e durante determinados tempos que dependem do material do detector, com o propósito eliminar sinais residuais que não foram eliminados durante a leitura TL e/ou OSL. Além disso, como citado anteriormente, o aumento da temperatura pode alterar a sensibilidade dos detectores à radiação ionizante <sup>[3]</sup>. Por outro lado, a estimulação óptica em um comprimento de onda adequado pode ter o mesmo efeito do aquecimento na eliminação de cargas residuais sem, contudo, alterar a sensibilidade do detector. A fim de investigar a estimulação óptica necessária, em termos do comprimento de onda e o tempo necessário para apagar o sinal residual dos detectores cerâmicos  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ , foi construída uma unidade de apagamento óptico de detectores cerâmicos capaz de substituir tratamentos térmicos por tratamentos ópticos.

A unidade é composta por seis placas de leds, com as cores azul, verde e branca, sendo que cada par de placas com o mesmo tipo de led são dispostas de modo a fornecer espaço para a introdução de uma bandeja transparente, onde podem ser acomodados até 121 detectores cerâmicos a ser iluminados, como pode ser visto na Figura XY. Um temporizador externo foi acoplado ao conjunto para permitir o controle do tempo de iluminação de forma reprodutível e automática. Adicionalmente foi montado um indicador representando a cor de luz à qual a bandeja será exposta.



**Figura 1. Arranjo experimental da fonte de iluminação de amostras opticamente estimuláveis construída com leds azuis.**

## **2.2. Avaliação do apagamento óptico em detectores de alumina.**

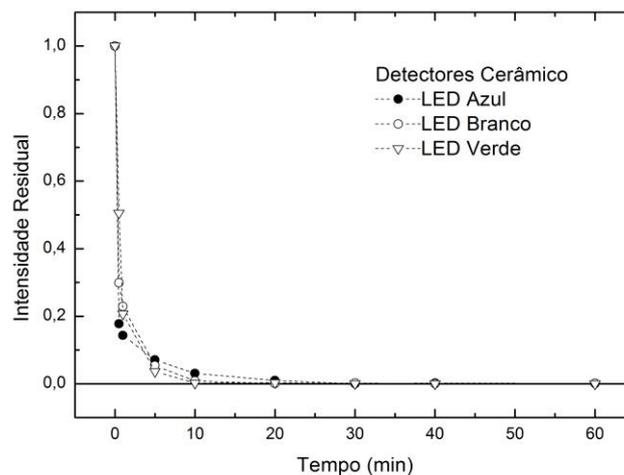
A unidade de apagamento óptico foi avaliada quanto à sua eficiência de apagamento para cada uma das cores de luz disponíveis. Para a primeira avaliação, foram selecionados aleatoriamente 30 detectores cerâmicos (policristalinos) e 18 detectores monocristalinos, totalizando 48 detectores que é a capacidade máxima do carrossel da leitora TL/OSL RISØ. Os detectores foram lidos da temperatura ambiente até a temperatura de 250°C, à taxa de aquecimento de 5°C/s para a limpeza inicial. A seguir os detectores foram irradiados em feixe de radiação beta de uma fonte  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ , incorporada à própria leitora. Todos os detectores foram irradiados inicialmente por um tempo de 2s, que corresponderam a, aproximadamente 25mGy. A fim de evitar a competição das armadilhas profundas de elétrons com as armadilhas principais durante a irradiação, resultando em uma diminuição da resposta TL, os detectores foram irradiados e lidos duas vezes. Uma leitura adicional foi realizada para a determinação do valor de referência de dose nula ou branco. Em seguida, foi feita uma nova leitura TL para estabelecer-se o ponto de referência do estudo, ou seja, sem estimulação óptica. Uma vez estabelecidas as condições iniciais, foi realizado um estudo sistemático. Em cada etapa deste estudo, os detectores foram irradiados e, a seguir, estimulados na unidade de apagamento óptico em tempos de exposição à luz, crescentes. Foram estudadas as doses de 12,5mGy, 25mGy, os tempos de iluminação estudados foram de 0,5; 1,0; 5,0; 10; 20; 30; 40 e 60 minutos e as cores de iluminação utilizadas foram azul, branca e por fim, verde. Este conjunto de experimentos estabeleceu uma matriz tridimensional de (2 doses)  $\times$  (8 tempos)  $\times$  (3 cores).

Na segunda avaliação foi feito um estudo comparativo para a avaliação da eficiência do apagamento óptico, por meio de leituras TL e OSL. Para esta fase, os detectores foram irradiados com a fonte beta  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  e foram feitas leituras OSL e TL. O grupo de detectores previamente selecionados foram subdivididos, ficando portanto 15 detectores cerâmicos para leituras OSL e outros 15 para leitura TL. Da mesma forma, os detectores monocristalinos foram divididos em dois grupos, sendo nove detectores para leitura TL e nove para leituras OSL. As leituras OSL foram feitas no modo de leitura CW-OSL com tempo de aquisição de 30 segundos. Todas as leituras (TL e OSL) foram feitas com a resolução de 400 pontos. Após cada leitura OSL e TL foi feita uma leitura TL adicional para eliminar as cargas residuais que não foram liberadas durante as leituras. Após cada iluminação, foi feita uma leitura termoluminescente para avaliar a carga residual restante após a estimulação óptica. Esta sequência de operações foi repetida para todos os tempos de estimulação, para as três cores de estimulação e para os dois valores de dose citados.

### 3. RESULTADOS

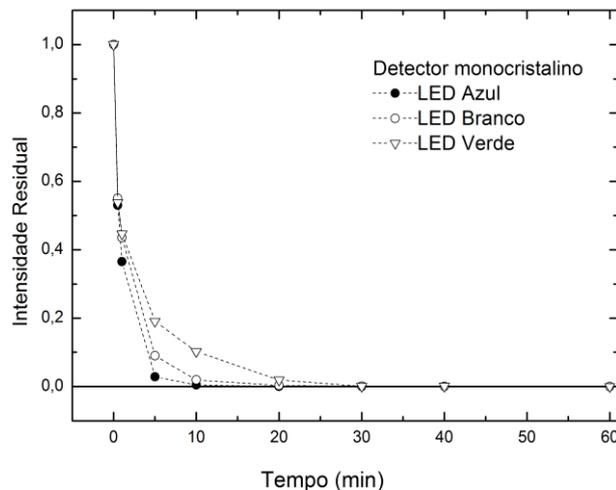
A unidade de apagamento óptico desenvolvida neste trabalho foi o primeiro resultado obtido. No entanto a referida unidade foi um dos principais instrumentos utilizados no presente estudo, razão pela qual foi descrita na seção de materiais e métodos.

A avaliação da eficiência da unidade de apagamento óptico foi realizada por meio de uma série de medidas da termoluminescência residual em detectores  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ . Na figura 2 é mostrada a eficiência de apagamento óptico para um conjunto de 30 detectores cerâmicos, referente a três diferentes cores de estimulação óptica. Pode-se notar que para tempos inferiores a 5 minutos, a eficiência de apagamento usando luz branca e luz azul foi maior em relação à luz verde. No entanto para tempos a partir de 5 minutos, a iluminação com luz verde mostrou-se mais eficiente. Para tempos superiores a 20 minutos praticamente não há diferença entre as respostas.



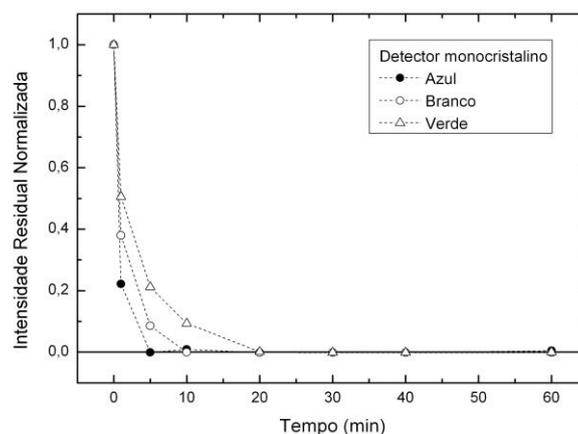
**Figura 2. Resposta normalizada dos detectores cerâmicos irradiados com dois segundos de beta e estimulada em diferentes tempos e comprimento de onda.**

A eficiência do apagamento óptico referente às três cores de estimulação para o conjunto de 18 detectores monocristalinos é mostrado na figura 3. Nota-se que, para tempos de estimulação inferiores a 10 minutos, a luz azul mostrou-se mais eficiente em relação à luz branca e à luz verde. Para o tempo de 20 minutos a luz branca mostrou-se mais eficiente que as demais. Para tempos superiores a 20 minutos a eficiência do apagamento para as três cores não mostrou diferença significativa.



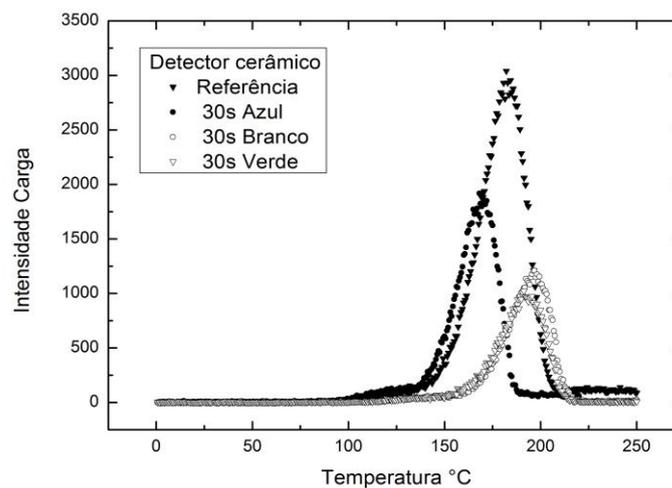
**Figura 3. Resposta normalizada dos detectores monocristalinos irradiados com dois segundos de beta e estimulados em diferentes tempos e comprimento de onda.**

Na figura 4, é mostrada a eficiência do apagamento para as três cores de estimulação do grupo de 18 detectores monocristalinos irradiados com 1 segundo de radiação beta. Nota-se que, para tempos inferiores a 20 minutos de estimulação, a luz azul é mais eficiente que as luzes branca e verde. Para tempos superiores a 20 minutos a eficiência de estimulação para as três cores não apresentaram diferença significativa. Nota-se também que a estimulação com a cor azul reduziu a intensidade residual até zero após o tempo de cinco minutos.



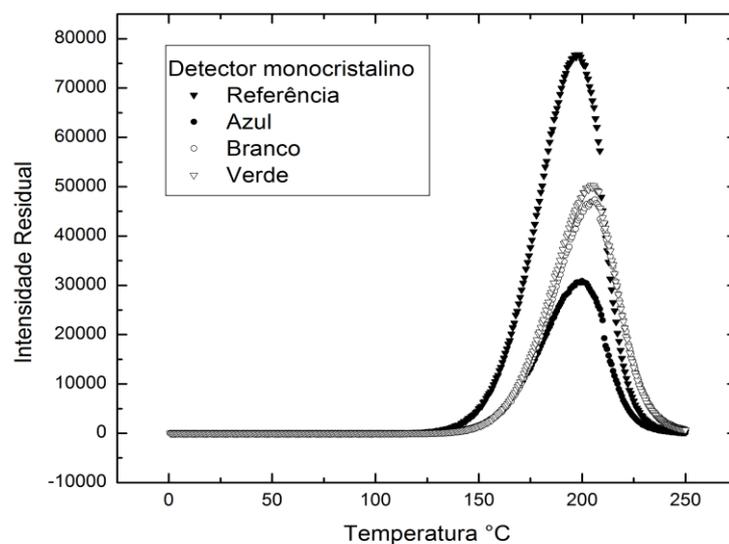
**Figura 4. Resposta normalizada dos detectores monocristalinos irradiados com um segundo de beta e estimulados em diferentes tempos e comprimento de onda.**

Até este ponto foram discutidos os resultados médios, no entanto, a análise detalhada das curvas de brilho antes e depois da estimulação óptica em diferentes comprimentos de onda revelam importantes resultados, que são mostrados na Figura 5. Na figura são mostrados os diferentes resultados para o detector cerâmico número 25 (referência do carrossel da leitora RISØ), para o tempo de 30s. Inicialmente pode-se notar que a curva de brilho do detector cerâmico apresenta a aparência geral de uma distribuição gaussiana, contudo a subida da curva é menos acentuada que a descida. Isto sugere a existência de pelo menos dois picos cuja resolução da leitora não foi capaz de distinguir. A contribuição de cada um destes picos ficou evidenciada ao iluminar o detector com luz azul e com as luzes branca ou verde, como pode ser visto na figura. A luz azul foi mais eficiente para o apagamento das armadilhas de maior energia, portanto TL residual é maior próximo à subida da curva de referência. Por sua vez, as fontes de luz branca e verde foram mais eficientes para o apagamento das armadilhas de menor energia, portanto a TL residual foi maior na descida da curva de referência. Deste modo, foi possível observar experimentalmente a contribuição de dois tipos de armadilhas de diferentes energias que contribuem para o pico principal de TL dos detectores cerâmicos.



**Figura 5. Resposta da estimulação do detector cerâmico-25 em diferentes cores de estimulação óptica. A curva de referência representa a medida de TL sem qualquer estimulação óptica.**

Os resultados da análise das curvas de brilho antes e depois da estimulação óptica em diferentes comprimentos de onda para o detector monocristalino número 48 para o tempo de 30 segundos, é mostrado na figura 6. Nota-se que o apagamento para a luz azul foi mais eficiente que para as luzes branca e verde. Porém, diferentemente do detector cerâmico, a eficiência do apagamento para as três cores apresentou maior sensibilidade para as energias menores, resultando em um deslocamento das curvas para temperaturas maiores. Nota-se ainda que não houve diferença significativa na diferença significativa na forma das curvas após as estimulações. A diferença foi apenas nas amplitudes.



**Figura 6. Resposta da estimulação do detector monocristalino-48 por 30s sob diferentes cores de estimulação óptica.**

#### 4. CONCLUSÃO

A unidade de apagamento óptico para detectores  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  foi projetada, construída e caracterizada. Esta unidade mostrou-se eficiente para o apagamento do sinal TL/OSL em todas as cores de estimulação utilizadas. Os estudos preliminares permitem supor que este método possa vir a ser uma alternativa a tratamentos térmicos de limpeza com a vantagem de evitar a perda da sensibilidade do material além de apresentar um consumo de energia muito menor.

A utilização da unidade de apagamento mostrou-se eficiente tanto para detectores cerâmicos (policristalinos) quanto para os detectores monocristalinos. A luz azul mostrou-se eficiente mesmo para tempos curtos de estimulação (~ 5 minutos), porém, com o aumento do tempo de estimulação há um pequeno crescimento na carga residual. Este efeito encontra-se sob investigação e supõe-se que possa ser devido a fenômenos de termoluminescência fototransferida ou fotoluminescência.

A curva de brilho dos detectores cerâmicos estudados apresentou sistematicamente uma subida lenta e uma queda acentuada, o que sugere a presença de, no mínimo, dois picos na composição do pico principal. A estimulação óptica em tempos curtos (até 30s) destes detectores permitiu discriminar experimentalmente os picos que compõem o pico principal da curva de brilho. Estudos complementares estão sendo realizados a fim de avaliar este fenômeno como técnica para a deconvolução experimental da curva de brilho.

## 5. REFERÊNCIAS

1. ANTONOV- ROMANOSVSKII, V.V., KEIRUM-MARCUS, I.F., POROSHINA, M.S., TRAPEZNIKOVA, Z.A., 1956. *IR Stimulable phosphors*. In: Conference of the Academy of Sciences of the USSR on the Peaceful uses of Atomic Energy, Moscow, 1955. USAEC Report AEC-tr-2435, pp. 239-250.
2. BRÄUNLICH, P., SCHAFFER, D., SCHARMANN, A., 1967. *A simple model for thermoluminescence and thermally stimulated conductivity of inorganic photoconducting phosphors and experiments pertaining to infra-red stimulated luminescence*. In: Proceedings of the First International Conference on Luminescence Dosimetry, Stanford, June 1965. USAEC, pp. 57-73.
3. BØTTER-JENSEN, L.; MCKEEVER, S. W. S.; WINTLE, A. G. *Optically Stimulated Luminescence Dosimetry, 1ed. Amsterdam*. Elsevier Science, Netherlands, 2003.
4. BRÄUNLICH, P., SCHAFFER, D., SCHARMANN, A., 1967. *A simple model for Thermoluminescence and thermally stimulated conductivity of inorganic photoconducting phosphors and experiments pertaining to infra-red stimulated luminescence*. In: Proceedings of the First International Conference on Luminescence Dosimetry, Stanford, June 1965. USAEC, pp. 57-73.
5. BRINKER, C. J. E. AND SCHERER, G. W. *Sol-Gel Science: the physics and chemistry of sol-gel process- ing*. Academic Press (1990).
6. FERREIRA, H. R.; SANTOS. A. *Preparation And Characterisation of a Sol-Gel Process  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Polycrystalline Detector*. 2014.
7. YUKIHARA, E. G.; MCKEEVER, S. W. S. *Optically stimulated luminescence: fundamentals and applications*. Wiley-Blackwel, 2011.
8. YUKIHARA, E. G.; WHITLEY, V. H.; POLF, J. C.; KLEIN, D. M.; MCKEEVER, S. W. S.; AKSELROD, A. E.; AKSELROD, M. S. *The effects of deep trap population on thermoluminescence of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C*. *Radiat. Meas.*, v. 37, p. 627 – 638, 2003.
9. YUKIHARA E. G.; WHITLEY V. H.; MCKEEVER S. W. S.; AKSELROD A. E.; AKSELROD M. S. *Effect of high-dose irradiation on the optically stimulated luminescence of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C*. *Radiat. Meas.*, v. 38, n. 3, p. 317 – 330, 2004.
10. YUKIHARA, E. G.; MCKEEVER, S. W. S.; *Ionizing density dependence of optically and thermally stimulated luminescence from Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C*. *Radiat. Prot. Dosim.*, v. 119, n. 1-4, p.206 - 217, 2006.
11. SUMMERS, G. P. *Thermoluminescence in Single Crystal  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>*. *Radiation Protection and dosimetry*, v.8.1, p.69-80, 1984.
12. STUMPF, H. C.; RUSSELL, A. S; NEWSOME, J. W.; TUCKER, C. M. *Thermal Transformations of aluminas and alumina hydrats* . *Industrial Engeneering and chemistry*, v.42, n.7, p.1398-1403,1950.
13. THOMSEN, K.J., BØTTER-JENSEN, L., JAIN, M., et al., *Recent instrumental developments for trapped electron dosimetry*. *Radiat Meas* 2008.