

# ESTUDO DA DEPENDÊNCIA ENERGÉTICA DA EMISSÃO TL DE CRISTAIS NANOESTRUTURADOS DE $\text{Al}_2\text{O}_3$ : Mg

José Francisco Sousa Bitencourt<sup>1</sup>, Sonia Hatsue Tatum<sup>2</sup>, Paulo Jorge Brazão Marcos<sup>3</sup>, Linda Viola Ehlin Caldas<sup>4</sup>

<sup>1</sup> Aluno de mestrado do curso de Engenharia Elétrica da Escola Politécnica da USP

<sup>2</sup> Profª. Dra. Pleno do Departamento de Ensino Geral da FATEC-SP

<sup>3</sup> Prof. Dr. Pleno do Departamento de Mecânica de Precisão da FATEC-SP

<sup>4</sup> Pesquisadora do IPEN/USP

[jose.bitencourt@poli.usp.br](mailto:jose.bitencourt@poli.usp.br), [tatumi@fatecsp.br](mailto:tatumi@fatecsp.br), [pjbmarcos@yahoo.com.br](mailto:pjbmarcos@yahoo.com.br), [lcaldas@ipen.br](mailto:lcaldas@ipen.br)

## Resumo

Para o desenvolvimento de dosímetros luminescentes sensíveis às radiações ionizantes (partículas  $\alpha$  e  $\beta$ , raios-X e  $\gamma$  e radiação cósmica) é necessário fazer um estudo da eficiência da resposta luminescente do material com a variação de energia da radiação a ser mensurada. Desta forma, é possível determinar um campo de aplicação sem que ajustes significativos sejam necessários.

Neste trabalho, amostras em pó de óxido de alumínio dopado com magnésio em 2,61 mol% foram irradiadas com doses iguais de raios-X com diferentes energias (27,15, 30,15, 33,05, 37,05 e 40,75keV) e, subsequentemente, analisadas pelo método da Termoluminescência (TL).

Imagens produzidas por microscopia eletrônica de transmissão auxiliaram no estudo da mecânica de emissão TL, sendo possível observar diferentes nanoestruturas relacionadas à concentração de dopante.

Os resultados indicam uma baixa dependência energética no intervalo estudado.

## 1. Introdução

Nos últimos anos, vem aumentando a procura por dosímetros luminescentes (DL), devido à sua alta durabilidade e confiabilidade.

Os DL apresentam um alto índice de custo/benefício, pois, além de serem mais sensíveis que o filme fotográfico, têm custo bem menor e maior facilidade de reposição se comparados às câmaras de ionização. Em adição a essas vantagens, os DL são produzidos por métodos químicos relativamente simples, com baixa geração de subprodutos [1].

Dentro dos DL, os óxidos metálicos, principalmente o óxido de alumínio, têm sido profundamente estudados por vários grupos de pesquisa [2, 3, 4].

No caso deste trabalho, o óxido de alumínio foi escolhido devido às suas qualidades físico-químicas (resistência mecânica e ao ataque químico), além da facilidade de fabricação. Uma outra vantagem significativa é a fácil incorporação de elementos dopantes que alteram as propriedades de emissão, que é de grande importância quando estamos lidando com sistemas fotodetectores.

A Termoluminescência (TL), técnica de análise óptica utilizada no projeto, é conhecida desde o século XIX, e aplicada cientificamente, para fins de datação de cerâmicas arqueológicas e sedimentos geológicos, desde a metade do século XX, com o desenvolvimento do tubo fotomultiplicador [5].

Esta análise consiste em se aquecer de forma gradual certa porção de material que tenha sido exposto a alguma fonte de radiação ionizante (natural ou artificial). Caso o material em questão apresente defeitos cristalinos, há grande possibilidade de haver emissão de luz quando uma determinada temperatura for atingida. A emissão TL ocorre quando cargas liberadas com o aquecimento se recombinam em um centro luminescente. O modelo matemático da dinâmica das cargas móveis é descrito por Chen & Kirsh, 1981 [6].

Sendo assim, o motivo de se dopar o óxido de alumínio visa gerar defeitos ou centros de aprisionamento e recombinação de portadores de carga móveis (elétrons e lacunas), de modo a produzir luz com comprimento de onda definido e cuja intensidade está diretamente relacionada ao número total de defeitos no cristal. Para este trabalho, utilizou-se como elemento dopante o metal-terroso magnésio (Mg).

Embora Papin et al., 1999 tenha proposto um mecanismo de emissão para óxido de alumínio dopado com magnésio, com átomos de  $\text{Mg}^{2+}$  substituindo átomos de  $\text{Al}^{3+}$ , criando centros de aprisionamento de buracos, não foi feito um estudo estrutural da amostra dopada nem o efeito da energia da irradiação na emissão resultante; estes dois pontos são o tema do presente trabalho.

Em se tratando de fontes radioativas, existe uma significativa quantidade de tipos e usos, sendo sempre necessário um monitoramento adequado para se evitar acidentes e superexposição humana à radiação. Dependendo do tipo da radiação, esta terá uma energia específica ou um espectro de energias característico, que pode induzir os dosímetros a indicarem valores incorretos, que dependem da sua calibração original. Por isso, há uma grande necessidade em se calibrar o dosímetro em relação à sua utilização.

Para se evitar gastos desnecessários na compra de diferentes materiais para diferentes radiações, pode-se calibrar um mesmo dosímetro para um intervalo relativamente longo de energias, e a correção sendo

feita no próprio programa de aquisição de dados do equipamento de medida TL.

## 2. Materiais e Métodos

As amostras dopadas de óxido de alumínio foram obtidas pelo método do precursor polimérico, utilizando carbonato de magnésio ( $MgCO_3$ ) dissolvido em ácido nítrico ( $HNO_3$ ) como fonte de elemento dopante. A massa de  $MgCO_3$  é suficiente para permitir concentração final de  $Mg^{2+}$  em torno de 2,61 mol%.

Imagens de Microscopia Eletrônica de Transmissão (MET) foram produzidas de modo a correlacionar a variação da sensibilidade TL à variação da concentração de elemento dopante e, conseqüentemente, sua estrutura cristalina.

Cinco porções separadas foram irradiadas com diferentes energias de raios-X: 27,15, 30,15, 33,05, 37,05 e 40,75 keV, com uma mesma dose teste de 3 Gy.

Vinte e quatro horas após as irradiações, as amostras foram analisadas pelo método da TL, utilizando o equipamento TL/OSL automated reader da Daybreak Medical and Nuclear Systems Inc. A emissão total gerada pelo aquecimento foi filtrada utilizando o filtro óptico Schott BG-39, cuja janela de transmissão é 296 – 630 nm. A taxa de aquecimento ( $dT/dt$ ) empregada foi de  $5^\circ C/s$  até a temperatura máxima de  $300^\circ C$ . Cada uma das curvas de emissão representa a análise de uma porção de, aproximadamente, 2,1 mg de óxido de alumínio dopada com Mg.

## 3. Resultados

O resultado obtido pelo método de preparação foram pequenos aglomerados de cristalitos de  $Al_2O_3$  que apresentam grande quantidade de poros nanométricos e são recobertos por uma camada também nanométrica de  $MgAl_2O_4$  (Figura 1).

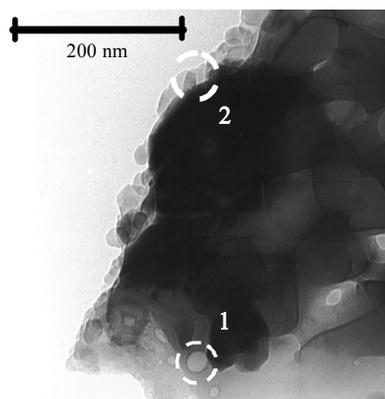


Figura 1 – Imagem de MET da amostra  $Al_2O_3: Mg$  (2,61 mol%). (1) poros e (2) camada de  $MgAl_2O_4$  (~30 nm).

Não se pode determinar até que ponto a emissão depende da dimensão dos poros, caso os defeitos sejam localizados na superfície dos cristais. O diâmetro dos poros formados se mantém constante para amostras com

diferentes níveis de dopagem, sendo aproximadamente 19,72 nm (veja histograma na Figura 2). No entanto a formação da camada (2) mostrada na imagem anterior é mais pronunciada na amostra de composição  $Al_2O_3: Mg$  (2,61 mol%), indicando que os centros luminescentes ou os centros de aprisionamento surgem na interface das duas fases.

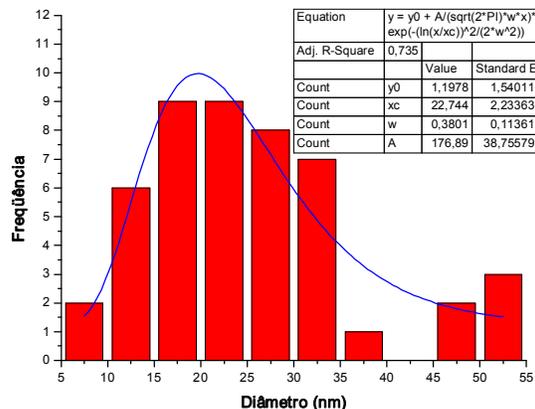


Figura 2 – Histograma do diâmetro de poros formados na amostra  $Al_2O_3: Mg$  (2,61 mol%). O diâmetro médio encontrado é 19,72 nm.

Na Figura 3, as curvas de emissão das amostras irradiadas com diferentes energias são mostradas. Nota-se que o pico dosimétrico ocorre à temperatura de  $205-210^\circ C$ ; esta incerteza está dentro da precisão do equipamento.

As intensidades médias obtidas do pico em  $210^\circ C$  na Figura 3 são indicadas na Figura 4. Observando melhor a Figura 4 podemos notar que a emissão TL foi praticamente constante até a energia de 37,05 keV, sofrendo um decréscimo acentuado para irradiação com energia de 40,75 keV.

A intensidade de emissão TL é proporcional à dose de radiação depositada no cristal e à sua energia, em conseqüência da interação da radiação ionizante com a matéria. Esta interação se dá pelo efeito fotoelétrico, espalhamento Compton e produção de pares elétrons-lacunas. Cada um destes fenômenos tem sua predominância em relação aos demais em função da energia da radiação; por exemplo, no caso do alumínio, para energias inferiores a 50 keV, temos a predominância do efeito fotoelétrico, onde ocorre a absorção de fótons nas camadas superficiais do dosímetro, podendo não ocorrer interação com todos os átomos que compõem o dosímetro. Para energias entre 0,05 e 15 MeV teremos o efeito Compton, e a produção de pares para energias além desta faixa [7].

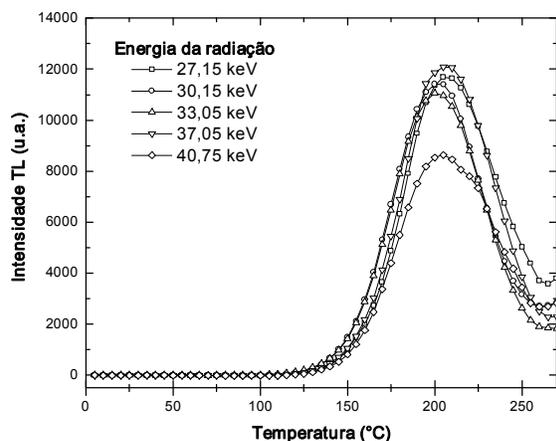


Figura 3 – Curva de emissão TL da amostra Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: Mg.

No presente projeto, é esperado que o efeito fotoelétrico seja o fenômeno predominante, com a seção de choque  $\sigma$ , por átomo para absorção fotoelétrica, sendo:

$$\sigma = \phi \cdot Z^5 \cdot \left(\frac{1}{137}\right)^4 \cdot 4\sqrt{2} \cdot \left(\frac{m_0 \cdot c^2}{h \cdot \nu}\right)^7 \quad (1)$$

Onde:

$$\phi = \frac{8\pi}{3} \cdot \left(\frac{e^2}{m_0 \cdot c^2}\right)^2 = 6,651 \cdot 10^{-25} \text{ cm}^2 \quad (2)$$

Nas equações acima, definidas por Kaplan, 1978 [7],  $Z$  é o número atômico do material a ser irradiado,  $m_0 c^2$  é a energia de repouso do elétron,  $h\nu$  é a energia do fóton incidente e  $\phi$  representa a seção de choque para o espalhamento de fótons de baixa energia por um elétron livre em repouso, chamada espalhamento Thomson.

A Equação 1 trata de uma abordagem simplificada do problema, pois as potências indicadas não são as mesmas para diferentes energias  $h\nu$ . No entanto, é o suficiente para se entender o fenômeno.

Desta forma, o valor de  $Z$  do material que é composto do dosímetro se torna um fator importante, pois para cristais com  $Z$  muito grande a dependência energética se tornará mais acentuada, isto é, proporcional a  $Z^5$ . Portanto, o processo de absorção fotoelétrica é muito mais importante em metais pesados como o chumbo, do que em alumínio. Por outro lado, a dependência em relação à energia da radiação é inversamente proporcional a  $(h\nu)^{7/2}$ , a seção de choque decresce rapidamente com o aumento da energia, para um mesmo material.

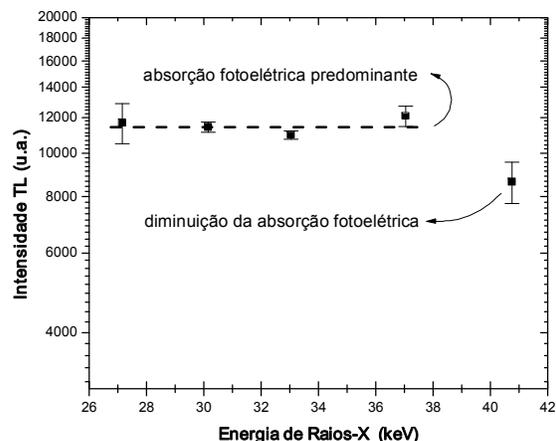


Figura 4 – Curva da dependência energética da emissão TL.

Na área da dosimetria usa-se a grandeza denominada número atômico efetivo  $Z_{eff}$ .

$$Z_{eff} = Z - B \quad (3)$$

Onde  $Z$  é o número atômico real do átomo e  $B$  é o fator de blindagem.

O cálculo de  $Z_{eff}$  envolve vários fatores como a energia do feixe usado, camada eletrônica no qual está o elétron considerado, etc.

No caso da alumina temos que o  $Z_{eff}$  é baixo, igual a 10,2, o que está de acordo com os resultados experimentais apresentados, pois em energias baixas sua emissão TL foi praticamente constante se levarmos em conta os desvios padrões devido aos erros experimentais. Houve uma queda na emissão TL para o feixe com energia de 40,75 keV, talvez já devido à diminuição do efeito fotoelétrico. Sabendo que o  $Z_{eff}$  da alumina está abaixo do alumínio puro, é esperado que os limites citados anteriormente também sejam deslocados para energias inferiores, ou seja, o limite de predominância entre o efeito fotoelétrico e espalhamento Compton para a alumina está abaixo de 50 keV.

O valor de  $Z_{eff}$  é importante na dosimetria; dosímetros com  $Z_{eff}$  próximo ao da amostra a ser monitorada fornecerá um resultado de dose que não necessitará de grandes correções. No caso da dosimetria de tecido humano temos que o  $Z_{eff} = 7,6$ , e o dosímetro utilizado comumente nesta monitoração é o LiF: Mg, Ti com  $Z_{eff} = 8,2$ ; estes valores foram calculados para feixes com energia de 30 keV [1].

#### 4. Conclusões

Pode-se concluir que foi possível obter um dosímetro com boas qualidades para ser aplicado em diversos equipamentos que utilizem fontes de raios-X, apresentando baixa dependência energética, alta sensibilidade e alta reprodutibilidade, mesmo que a quantidade de material utilizado tenha sido muito reduzida.

Também foi possível observar a aproximação do limite de predominância entre o efeito fotoelétrico e o espalhamento Compton, uma vez que a intensidade de emissão TL foi significativamente reduzida ao se aproximar a energia do feixe a 50 keV.

Este estudo permitiu concluir que o material em questão pode ser usado em sistemas de radioterapia e diagnóstico que operam com energias abaixo de 40 keV sem que qualquer correção significativa seja necessária.

Obviamente, é importante fazer um teste comparativo utilizando energias mais altas, sendo radiações comumente utilizadas em radiodiagnóstico e radioterapia. Estes ensaios, entretanto, serão abordados em trabalhos futuros.

Pelas propriedades observadas, mediante os resultados de MET, podemos supor que a mecânica de emissão TL está relacionada à formação da estrutura  $MgAl_2O_4$  sobre a superfície dos aglomerados de cristalitos. Este fenômeno será observado em trabalhos futuros.

### *Agradecimentos*

Ao CNPq pelo apoio financeiro.

### *Referências Bibliográficas*

- [1] Cameron, J. R. et. al, **Thermoluminescent Dosimetry**. Madison, University of Wisconsin Press, 1968.
- [2] E. Papin et. al., **Influence of Point Defects on the Thermoluminescence of  $\alpha$ - $Al_2O_3$ : Application to Dosimetry**, Radiation Protection Dosimetry **84**, pp. 91-94, 1999.
- [3] A. J. J. Bos, **High Sensitivity Thermoluminescence Dosimetry**, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B **184**, pp. 3-28, 2001.
- [4] L. R. Brock et. al., **Color Centers in Magnesium Doped Polycrystalline Alumina**, Mat. Res. Soc. Symposium Proceedings **667**, 2001.
- [5] S. W. S. McKeever, **Thermoluminescence of Solids**, Cambridge University Press, New York, 1985.
- [6] R. Chen e Y. Kirsh, **Analysis of Thermally Stimulated Processes**, Pergamon Press, 1981.
- [7] I. Kaplan, **Física Nuclear**, Editora Guanabara Dois S.A., Rio de Janeiro, RJ, 1978.