

Sistema de Monitoreo Ambiental con TLD

L. Aguerre, J. Carelli y B. Gregori

Autoridad Regulatoria Nuclear

Argentina

laguerre@cae.arn.gov.ar; jcarelli@cae.arn.gov.ar

bgregori@cae.arn.gov.ar

Resumen

En el presente trabajo se describe la metodología utilizada por el Laboratorio de Dosimetría por Termoluminiscencia (TLD) de la Autoridad Regulatoria Nuclear (ARN) para calibrar su sistema de monitoreo ambiental en función de la tasa de dosis absorbida media en aire libre y la dosis equivalente ambiental, $H^*(10)$, según la recomendación ICRU REPORT 47.

Se estudió la respuesta del dosímetro ambiental (DA) en campos de radiación fotónica de energías W60, W110, W200 y ^{137}Cs . Las irradiaciones se realizaron siguiendo las recomendaciones de la norma ISO:4037. Se analizó la Respuesta en el DA de los detectores LiF:Mg, Ti y $\text{CaF}_2\text{:Dy}$ para las distintas calidades de radiación y la Respuesta Relativa a ^{137}Cs de ambos.

La metodología empleada en la evaluación de la dosis incluye: la corrección de las lecturas de ambos detectores por fading, conseguido experimentalmente, los testigos de traslados, la respuesta energética y el valor del cero. La dosis se calcula aplicando el promedio ponderado en incertidumbre de la dosis obtenida para cada tipo de detector.

Se analizaron y se calcularon las incertidumbres que afectan a la medición siguiendo la recomendación de la norma Argentina IRAM 35050.

El límite de detección de la tasa de dosis absorbida en aire libre de este sistema es de 3,5nGy/h para un periodo de muestreo de 3 meses. Con este límite de detección se miden tasas de dosis equivalente ambiental del orden de 70nSv/h con una incerteza expandida del orden del 10% con un factor de cubrimiento $k = 2$.

1. INTRODUCCIÓN

Los dosímetros ambientales (DA) se calibran en términos de la dosis equivalente ambiental, $H^*(d)$. Esta magnitud es la dosis equivalente que produciría un campo alineado y expandido sobre una esfera ICRU a una profundidad d . Para el caso de radiaciones fuertemente penetrantes se utiliza una profundidad de 10mm, y se escribe como $H^*(10)$ [1].

Los detectores termoluminiscentes (TLD) son detectores pasivos e integradores que permiten realizar la determinación de dosis y al ser utilizados en conjunto con otros TLD permiten discriminar las componentes principales de distintos campos de radiación.

La Termoluminiscencia (TL) es el proceso de emisión de radiación óptica de un material por causas térmicas. La cantidad de ésta luz emitida por el TLD, depende, para un rango de pequeñas dosis, en forma lineal con la dosis absorbida por el mismo y en forma no lineal con la energía del campo con la cual son irradiados[2]. Como la Respuesta del TLD es lineal con la dosis es fácil hacer una calibración de la misma. No ocurre lo mismo con la energía del campo. En el caso del material LiF:Mg, Ti la variación de la respuesta puede no considerarse a los efectos de la Radioprotección, pero en materiales como el CaF₂:Dy, donde esa variación es de dos órdenes de magnitud, se deben realizar correcciones. La dependencia de la respuesta de los TLD con la energía es aprovechada por el laboratorio. Combinando distintos tipos de detectores se obtiene una estimación de la energía con la cual son irradiados los DA. Tal energía se utiliza luego al calcular la H*(10).

Estos tipos de detectores constituyen una solución sencilla para el monitoreo ambiental ya que son pequeños, económicos, no requieren mantenimiento, se recambian con facilidad, y no necesitan de un tratamiento químico para ser leídos.

Utilizando estos detectores y la metodología descrita más adelante se evalúa la tasa de dosis media y la dosis equivalente ambiental con una incertidumbre del orden del 10% con un factor de cubrimiento $k = 2$.

2. MATERIALES Y METODOS

Nuestro DA es un disco plástico, opaco, formado por una base con tapa a rosca y un o-ring colocado en una ranura circular calada en la base, con el fin de sellar herméticamente el interior. La base tiene 10 pequeños orificios donde se colocan 10 TLD desnudos.

Los materiales TL elegidos son el LiF:Mg, Ti (TLD700) y el CaF₂:Dy (TLD200), ambos en forma de chips, de dimensiones 3x3x0,89mm³, producidos por Harshaw. Se colocan cinco TLD700 y cinco TLD200 en el interior el DA.

Los detectores TL son leídos y borrados en un equipo marca Harshaw, modelo QS3500, en flujo de nitrógeno seco de alta pureza, aplicando el siguiente tratamiento térmico: precalentamiento a 120°C durante 10seg, adquisición hasta 270°C con una velocidad de calentamiento de 10°C/seg y, por último, recocido de 5seg a temperatura constante de 300°C. Este tratamiento térmico aumenta la sensibilidad y disminuye el fading de los detectores frente a los tratamientos térmicos convencionales [3].

Los TLD utilizados se seleccionaron siguiendo un procedimiento que garantiza que los mismos poseen un factor de sensibilidad menor que el 10% y un coeficiente variacional de la sensibilidad (CV) menor al 5%.

2.1. Respuesta del Dosímetro ambiental en función de la energía de fotones

Se estudió la respuesta de los detectores TL en porta dosímetro ambiental en distintos campos de radiación fotónica. Se los irradió en el Centro Regional de Referencia para la Dosimetría (CRRD) de la Comisión Nacional de Energía Atómica (CNEA) con campos de RX de calidades ISO W60, W110, W200 y con la fuente de ¹³⁷Cs, en condición de aire libre de receptor[4].

En las figuras 1.a y 1.b se presentan las respuestas de los detectores TLD700 y TLD200 respectivamente, con las incertezas calculadas, al ser irradiados en el DA. Se observa en el TLD200 una fuerte dependencia de la Respuesta con la energía media del haz de irradiación, la misma es de dos órdenes de magnitud entre las zonas de baja y alta energía. En cambio, en el TLD700, la variación de la respuesta es de un 30%.

En la figura 2 se observa el cociente entre las respuestas de los TLD200 y los TLD700. Se observa una fuerte pendiente en la zona de baja energía, con respecto a la zona de alta energía. Con este par de detectores se logra una buena distinción entre baja y media-alta energía.

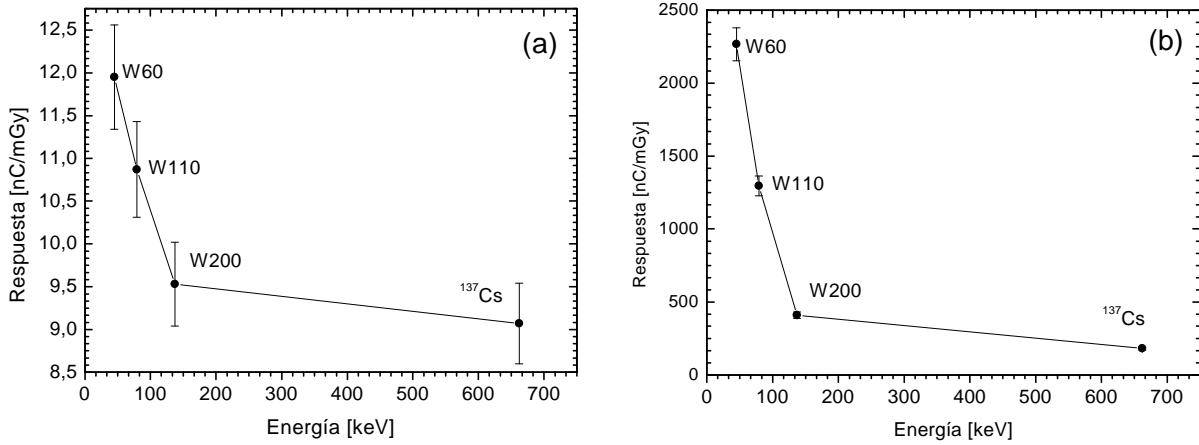


Figura 1. Respuesta de los TLD en función de la energía y la incerteza calculada, (a) TLD700, (b) TLD200.

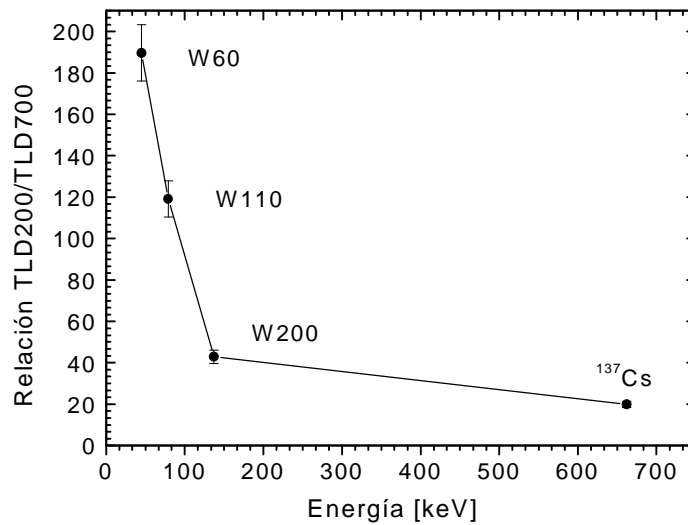


Figura 2. Relación entre las respuestas en función de la energía de los detectores TLD200 Y TLD700 en el dosímetro ambiental .

Interpolando con rectas los puntos de las figuras 1 y 2 se obtienen las fórmulas (5), (6) y (7), necesarias para realizar las correspondientes correcciones a las lecturas de los TLD.

2.2. Pérdida de la Información

La pérdida de la información almacenada (fading) de los TLD depende principalmente del tipo de material, del lapso transcurrido entra la irradiación y la lectura y de la temperatura a la cual están sometidos durante la irradiación y el almacenamiento [5].

Para realizar las mediciones de campo se colocan los DA en un soporte adosado a un caño de metal, a 1m de altura respecto del suelo. El soporte es una placa de aluminio donde se atornilla, en la cara inferior, una semiesfera de plástico que contiene al dosímetro, para aislarlo del sol directo y la lluvia.

En estas condiciones los DA no están a temperatura constante como ocurre en el laboratorio, por lo tanto, se optó por estudiar el fading de los TLD en estas condiciones, en distintos periodos de tiempo y durante diferentes épocas del año.

Para ello se irradiaron grupos de 5 TLD de ambos materiales con una dosis de entre 1mGy y 2mGy y se los colocaron de a uno en 5 DA. Se utilizaron los promedios de las lecturas de los 4 TLD restantes como ceros, de esta manera se pudo evaluar el fading independientemente de la dosis recibida en el campo.

Como se mencionó anteriormente, un parámetro importante que influye sobre el fading es la temperatura a la cual están sometidos los TLD. Dado que los dosímetros están en campo, no es posible asignar sólo una temperatura, ya que ésta varía con el tiempo, por lo que, a los fines operativos del laboratorio, se adoptó, como temperatura de referencia, el valor más alto del promedio mensual de las temperaturas máximas diarias.

En la figura 3 se presentan los gráficos de los valores de fading medidos para ambos tipos de materiales TL en función del tiempo de permanencia en el campo. En cada punto se indica el valor promedio de temperatura calculado para el mismo.

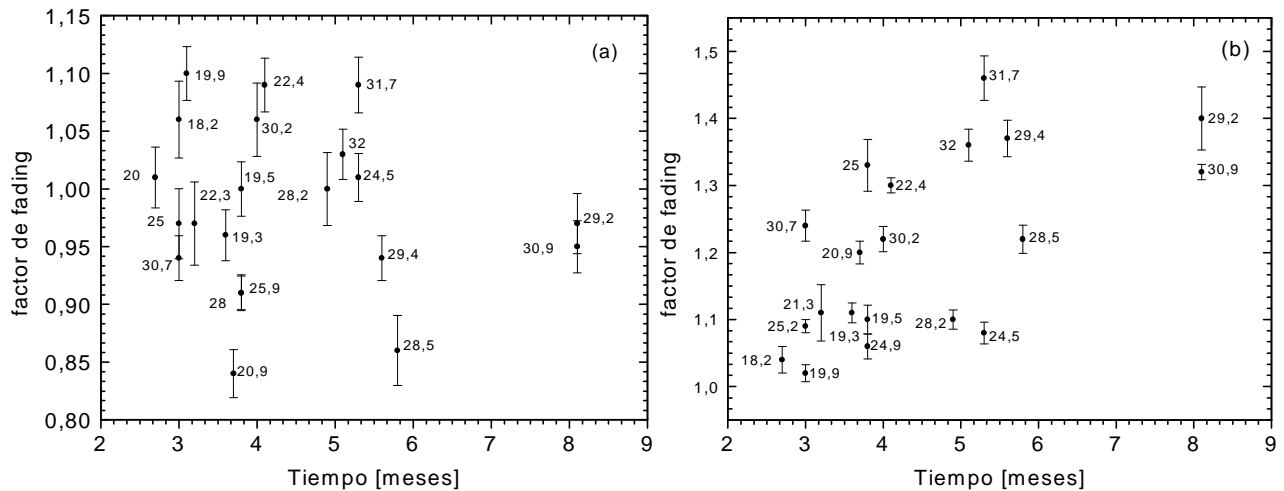


Figura 3. Factor de Fading de los TLD en función del tiempo de muestreo y la incerteza calculada, (a) TLD700, (b) TLD200.

En el caso del TLD700 no se alcanzan a inferir tendencias, por lo que se calculó el promedio y el desvío estándar de los valores para ajustar un valor constante. Los cálculos mostraron que el fading actúa sobre la evaluación de la dosis agregando una incertidumbre del 6%, bajo el supuesto de que el TLD se irradia a tasa de dosis constante.

Para el caso del TLD200 se observa una nítida tendencia del fading a crecer con la temperatura y con el tiempo transcurrido. Si bien hay variaciones en algunos puntos, dichas variaciones son asignadas a las incertidumbres en la medida de la temperatura. Haciendo esta consideración se observa que en promedio, cuanto más alto es el valor de la temperatura, más alto es el fading.

Para el caso del TLD200 la Tabla I resume los factores de fading (Fd) en función de la temperatura calculados a partir de los datos experimentales.

Tabla I. Factor de fading para el TLD 200

Temperatura Máxima Promedio [°C]	Fd	Incertidumbre
< 25°C	1,040	0,031
>25°C	1,155	0,085

2.3. Ceros y límite de detección

Se estudió la influencia del proceso de lectura de los TLD en la evaluación del cero.

Los TLD se colocan en el equipo sobre una plancheta, la cual calienta los detectores. Esta plancheta está montada sobre un soporte móvil llamado drawer.

En el proceso de lectura se abre el drawer para colocar el TLD en la plancheta, se lo cierra y se activa el equipo. Una vez finalizada la lectura del mismo, se abre el drawer y se retira el TLD.

La respuesta del equipo lector, depende del tipo de material termoluminiscente, de la dosis recibida por dicho material, del ruido y la ganancia del fototubo y de la humedad depositada en la plancheta.

Para hallar el valor del cero se midió un grupo de 40 TLD previamente irradiados hasta tres veces, abriendo y cerrado el drawer, sin retirar el TLD, entre cada lectura.

La primera lectura no fue considerada porque es la que informa la dosis a la que fue irradiado el dosímetro; la segunda y la tercera lectura no presentaron una diferencia estadísticamente significativa. Para el rango de dosis menores que 3mGy, no se detectó dosis residual alguna en el TLD, ni se halla una correlación entre la primera y la segunda lectura.

También se hicieron pruebas leyendo los TLD tres veces seguidas sin abrir el drawer, y se observó que las lecturas hechas abriendo y cerrando el drawer son ligeramente mayores a las lecturas realizadas sin abrir el drawer.

Como las lecturas de los TLD utilizados en el monitoreo ambiental necesariamente se hacen abriendo y cerrando el drawer, el Laboratorio optó por utilizar, como cero de referencia, el promedio de las segundas lecturas hechas abriendo y cerrando el drawer, a pesar de que el valor más bajo sea el medido sin abrir el drawer.

En la tabla II se observan los valores obtenidos experimentalmente de las lecturas de ceros utilizadas como referencia.

Tabla II. Lecturas de ceros.

Lectura de cero [nC]	Incertidumbre %	Material
0,2904	2,5	TLD700
0,3434	2,9	TLD200

Se define el límite de detección para cualquier variable que se mida con un proceso analítico como la cantidad más pequeña de esa variable que se detecta con un intervalo de confianza determinado[6]. Dicho límite se calculó según la ecuación (1). Siendo σ_{2lec} la desviación estándar de las segundas lecturas, abriendo y cerrando el drawer, de un grupo de 5 TLD y F_{cal} el factor de calibración de la serie utilizada. Se utilizaron 5 TLD para calcular el limite de detección del sistema, porque en las medidas de campo se utilizan 5 TLD.

$$\frac{3\sigma_{2lec}}{F_{cal} \cdot T} \quad (1)$$

El límite de detección en la tasa de dosis, para un periodo de muestreo de 3 meses, es de 3,5nGy/h

2.4. Testigos de traslado

Los DA son preparados en el laboratorio y luego se los transporta hacia las estaciones de muestreo. Se acompaña a los DA de campo durante todo el recorrido con un DA extra, llamado testigo de viaje. El mismo se borra junto con los otros DA y se lo lee inmediatamente después de haber concluido con el recambio de los DA en el campo. De esta manera se sabe si ocurrió una irradiación en el viaje que afecte la medida de los TLD, en ese caso se realizan correcciones por testigo de viaje.

2.5. Algoritmos de cálculo

Se calcula el factor de calibración (F_{cal}) para cada tipo de TLD, de la siguiente manera:

$$F_{cal;TLD700} = \frac{\overline{Lk}_{TLD700} - \overline{Lo}_{TLD700}}{K_{aire;Cs^{137}}} \quad (2)$$

$$F_{cal;TLD200} = \frac{\overline{Lk}_{TLD200} - \overline{Lo}_{TLD200}}{K_{aire;Cs^{137}}} \quad (3)$$

Siendo:

\overline{Lk} : las lecturas de los TLD irradiados con 1mGy de Kerma en aire de una fuente de ^{137}Cs [nC].

\overline{Lo} : la lectura elegidas como cero de referencia [nC].

K : el Kerma en aire libre de la fuente de ^{137}Cs [mGy].

Se calcula la relación entre las respuestas (R) de los detectores TLD200 y TLD700:

$$R = \frac{\overline{Lc}_{TLD200} - \overline{Lo}_{TLD200}}{\overline{Lc}_{TLD700} - \overline{Lo}_{TLD700}} \quad (4)$$

Siendo:

Lc : las lecturas de los TLD puestos en el dosímetro ambiental en la estación de muestreo [nC].

Se calcula la energía media con la cual fueron irradiados los TLDs utilizando el valor de R calculado con la fórmula (4) en la fórmula (5). Las unidades de $E(R)$ están dadas en keV.

$$E(R) = \begin{cases} -4,83 \cdot 10^{-1} R + 136,154 & \text{si } 119,17 < R < 189,59 \\ -7,60 \cdot 10^{-1} R + 169,60 & \text{si } 42,88 < R < 119,17 \\ -22,9 \cdot R + 1117,5 & \text{si } 19,92 < R < 42,88 \end{cases} \quad (5)$$

Con esta energía media se calcula la respuesta relativa a ^{137}Cs para cada tipo de detector según las fórmulas (6) y (7).

$$F_{\text{Cs}^{137};E;\text{TLD700}} = \begin{cases} -3,53 \cdot 10^{-3} E + 1,48 & \text{si } 45 < E < 79 \\ -2,59 \cdot 10^{-3} E + 1,40 & \text{si } 79 < E < 137 \\ -9,52 \cdot 10^{-5} E + 1,06 & \text{si } 137 < E < 662 \end{cases} \quad (6)$$

$$F_{\text{Cs}^{137};E;\text{TLD200}} = \begin{cases} -1,58 \cdot 10^{-1} E + 19,67 & \text{si } 45 < E < 79 \\ -8,47 \cdot 10^{-2} E + 13,86 & \text{si } 79 < E < 137 \\ -2,40 \cdot 10^{-3} E + 2,59 & \text{si } 137 < E < 662 \end{cases} \quad (7)$$

Se calcula la tasa de dosis media de fotones (\dot{D}) para cada TLD según las fórmulas (8) y (9)

$$\dot{D}_{\text{TLD700}} = \left(\overline{L}_{\text{TLD700}} - \overline{L}_{\text{O}_{\text{TLD700}}} \right) \cdot \frac{F_{\text{d}_{\text{TLD700}}} \cdot F_{\text{Cs}^{137};E;\text{TLD700}}}{F_{\text{cal};\text{TLD700}} \cdot T} \quad (8)$$

$$\dot{D}_{\text{TLD200}} = \left(\overline{L}_{\text{TLD200}} - \overline{L}_{\text{O}_{\text{TLD200}}} \right) \cdot \frac{F_{\text{d}_{\text{TLD200}}} \cdot F_{\text{Cs}^{137};E;\text{TLD200}}}{F_{\text{cal};\text{TLD200}} \cdot T} \quad (9)$$

donde

T es el tiempo de permanencia del detector en el punto de muestreo.

Se calcula la tasa de dosis media total de fotones haciendo el promedio pesado por las respectivas incertidumbres [7].

$$\dot{D} = \frac{u^2(\dot{D}_{\text{TLD700}}) \cdot \dot{D}_{\text{TLD200}} + u^2(\dot{D}_{\text{TLD200}}) \cdot \dot{D}_{\text{TLD700}}}{u^2(\dot{D}_{\text{TLD200}}) + u^2(\dot{D}_{\text{TLD700}})} \quad (10)$$

Siendo $u(\dot{D}_{\text{TLD700}})$ y $u(\dot{D}_{\text{TLD200}})$ las incertidumbres combinadas de la medida de la tasa de dosis para cada TLD [8].

Se calcula la dosis equivalente ambiental, $H^*(10)$, como:

$$H^*(10) = \dot{D} \cdot \Delta t \cdot F_{H^*(10);K_a} \quad (11)$$

Donde Δt es el intervalo de tiempo de muestreo y $F_{H^*(10);K_a}$ es el factor de conversión de Kerma en aire a $H^*(10)$ en función de la energía media estimada (E). Dicho factor se calcula usando las tablas correspondientes de la ICRP 74[9].

En condición de equilibrio de partículas cargadas (CPE) y despreciando la radiación de frenado, la dosis absorbida es igual al kerma [10]. En todo el rango de energías estudiadas los TLD puestos en el DA se encuentran bajo CPE, por lo tanto, se utiliza el factor de conversión de kerma en aire en lugar de uno de dosis absorbida.

3. CONCLUSIONES

Se observó una dependencia de la Respuesta de los detectores con la energía media del haz de irradiación. Se utilizó esta característica de los materiales para combinar las respuestas de los TLD200 y los TLD700, para así estimar la calidad del haz de irradiación. Con esta energía y el cálculo de la tasa de dosis absorbida media, se midió la dosis equivalente ambiental.

Se observó una fuerte dependencia del fading con la temperatura y con el periodo de muestreo. Esta observación lleva a remarcar la importancia de aislar térmicamente a los TLD que porta el dosímetro ambiental, para evitar el aumento de su temperatura y el correspondiente aumento en el fading.

Se analizó la mejor condición de cero del sistema, para obtener una medida más precisa, y como resultado se obtuvo que la segunda lectura de un TLD abriendo y cerrando el drawer entre lecturas, es la que mejor reproduce las condiciones de la medida.

Se presentó el algoritmo de cálculo del sistema para medir el $H^*(10)$ con los distintos tipos de correcciones aplicados para realizar la evaluación de la dosis.

Este sistema está actualmente en uso por el laboratorio y se miden valores de tasa de dosis media y de dosis equivalente ambiental $H^*(10)$ en condiciones de campo. Es posible medir con una incertidumbre expandida calculada del orden del 10% con un factor de cubrimiento $k=2$, valores de tasas de dosis comprendidos entre 60 y 120nGy/h y valores de $H^*(10)$ comprendidos entre 200 y 400 μ Sv.

4. PERSPECTIVAS

Una mejora interesante al DA consiste en reemplazar el material LiF:Ti, Mg por el material LiF:Mg, Cu, P (TLD700H), también producidos por Harshaw, de dimensiones 3x3x0,39mm³. Estos detectores se estudiaron ampliamente y se demostró que, en el rango de las dosis ambientales, la respuesta es lineal con la dosis y la variación de la respuesta en función de la energía es similar a la del LiF:Ti, Mg [11]. Los TLD700H son de interés por tener una sensibilidad aproximadamente 7 veces mayor que la de los TLD700.

Para leer y borrar los TLD700H se desarrolló un tratamiento térmico que logra mantener bajo el coeficiente variacional de la sensibilidad [12]. El mismo consiste en un precalentamiento a 120°C durante 10seg, luego la adquisición en rampa hasta 276°C con una velocidad de 15°C/seg y, por último, el recocido de 10seg a temperatura constante de 276°C

Las primeras pruebas realizadas con los TLD700H en lugar de los TLD700 indican que este cambio permite reducir el límite de detección del sistema hasta un 20%. Con esta mejora se espera poder disminuir la cantidad de TLD700 necesarios para medir, manteniendo el mismo valor de incertidumbre.

REFERENCIAS

1. International Commission on Radiation Units and Measurements, Measurement of dose Equivalents from External Photon and Electron Radiations. **ICRU REPORT 47**. p 5 (1992).
2. S. W. McKeever, Marko Moscovitch y P. D. Townsend. *Thermoluminescence Dosimetry Materials: Properties and Uses*. Nuclear Technology Publishing, Ashford, Inglaterra (1995).

3. S. Papadópulos, B. Gregori, F. López Gonzáles. Aplicaciones de un nuevo tratamiento térmico en detectores TL de uso en dosimetría ambiental. En: Proc. IRPA Regional Congreso, Recife, Brasil (2001). También en: B. Gregori, S. Papadópulos, J. Cruzate, J. J. Kunst, *Rad. Prot. Dos.*, **Vol.101 Nos. 1-4** pp.133-136 (2002).
4. International Standards Organization, X and Gamma Reference Radiations for Calibrating Dosimeter and Doserate Meters and for Determining their Response as a Function of Photon Energy. **ISO 4037** (1992).
5. B. Burgkhardt y E. Piesch. Fading Characteristic of LiF and LiBO TLD Systems Dependent on the Ambient Temperature, the Monitoring Period and the Interval Between Irradiation and Readout. *Radiation Protection Dosimetry*, N° **6** p 338-340 (1984).
6. C. Ross Hirning. Detection and Determination Limits For Thermoluminescence Dosimetry. *Health Physics*. **Vol. 62, Num 3** p 223-227 (1992).
7. Rudolf K. Bock, *Data Analisis Briefbook*, CERN (1998).
8. Instituto Argentino de Normalización y Certificación. Estadística. Procedimientos para la evaluación de la incertidumbre de la medición. **IRAM 35050**. p 26 (2001).
9. International Commission on Radiological Protection, Conversion Coefficients for use in Radiological Protection against External Radiation. **ICRP PUBLICATION 74**. p 179 (1995).
10. Frank H. Attix. *Introduction to Radiological Physics and Radiation Dosimetry*. John Wiley & Sons, Inc., USA (1986).
11. C. R. Edwards, P.J. Mountford, S Green, J.E. Palethorpe y A.J. Moloney. The low energy X-ray response of the LiF:Mg, Cu, P thermoluminescent dosimeter: a comparison with LiF:Mg, Ti. *The British Journal of Radiology*, N° **78** p 543-547 (2005).
12. Comunicación interna ARN. L. Ciocci, B. Gregori, S. Papadopoulos, J. Carelli. Caracterización de los detectores termoluminiscentes LiF: Mg, Cu, P. Aplicaciones a la dosimetría ambiental.(2004).