

# **Produção de Discos Policristalinos de Quartzo Natural para Uso na Dosimetria das Radiações Ionizantes**

**Thiago Fernandes Barros**

Bolsista de Iniciação Científica, Graduando Engenharia de Minas, UFPE

**João Alves Sampaio**

Orientador, Engenheiro de Minas, D. Sc., CETEM

**Pedro Luiz Guzzo**

Co-orientador, Engenheiro Mecânico, D. Sc., UFPE

## **Resumo**

O objetivo deste estudo foi sistematizar a produção de discos policristalinos de quartzo em função de diferentes variáveis de processamento, visando aplicações na dosimetria das radiações ionizantes. Durante a produção dos discos, foram investigados parâmetros tais como: tamanho de partícula, aglomerante e tratamento térmico. Para obtenção de discos coesos com 6 mm de diâmetro, o quartzo foi misturado com teflon e compactado com uma matriz metálica. A integridade e a resistência (mecânica) dos discos foram avaliadas por meio de ensaios de rugosidade, ensaios vibratórios (ultrassom e Rot-up) e por microscopia eletrônica de varredura (MEV). A utilização do teflon como aglomerante do quartzo particulado na faixa granulométrica 75x150 µm apresentou resultados bastante satisfatórios.

## **1. Introdução**

Desde a década de 1960, dosímetros sólidos têm sido produzidos em larga escala para a medição de doses de radiações ionizantes para monitoramento pessoal e na estimativa-dose em medicina nuclear através do princípio da emissão termoluminescente (McKeever, 1985). A emissão termoluminescente (TL) também é utilizada para medidas de datação geológica e arqueológica, pois, para muitos minerais, a quantidade de luz emitida em uma determinada faixa de temperatura é diretamente proporcional à dose de radiação natural absorvida (McKeever, 1985).

Atualmente, os principais dosímetros sólidos são produzidos a partir de fluoreto de lítio dopado com magnésio, cobre, sódio, e silício (LiF:Mg, Cu, Na, Si); fluorita dopada com manganês (CaF<sub>2</sub>:Mn); sulfato de cálcio dopado com disprósio (CaSO<sub>4</sub>:Dy); e óxido de alumínio dopado com carbono (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C). Por outro lado, existem na natureza minerais com propriedades TL, tais como: fluorita (CaF<sub>2</sub>), sulfato de cálcio (CaSO<sub>4</sub>) e quartzo (SiO<sub>2</sub>). Estes minerais são utilizados, sobretudo para fins de datação geológica e arqueológica (McKeever, 1985). Apesar do grande número de minerais com propriedades TL, poucos minerais foram estudados no passado para fins dosimétricos (McKeever 1985; Furreta, 2003).

Recentemente, integrantes dos departamentos de Engenharia de Minas e Energia Nuclear da UFPE, vem realizando pesquisas sobre as propriedades TL de cristais de quartzo natural de diferentes ocorrências

geológicas em função das impurezas e defeitos pontuais que atuam como armadilhas eletrônicas e centros de recombinação. Em particular, foi observado que os cristais de Solonópole (CE) apresentam propriedades TL adequadas ao uso dosimétrico (Silva, 2005, Guzzo et al., 2006). Além disso, constatou-se que alguns cristais de quartzo natural podem ter sua resposta TL aumentada significativamente quando submetidos a altas doses de radiação gama e tratamentos térmicos (Khoury et al., 2007).

Uma das rotas de produção que atualmente está sendo considerada consiste na produção de discos policristalinos de quartzo particulado (Carvalho Jr. et al., 2007). Considerando a potencialidade das reservas de quartzo natural brasileira e o fato de que a maior parte dos dosímetros comerciais utilizada no Brasil é importada, este estudo tem como finalidade viabilizar a produção de discos à base de quartzo natural, bem como realizar a caracterização dimensional, da integridade e da resistência (mecânica) ao manuseio.

## **2. Procedimento experimental**

### **2.1. Preparação do quartzo particulado**

Para a obtenção do quartzo particulado, foram utilizados fragmentos de um mesmo bloco de quartzo natural procedente de Solonópole (CE). Esses fragmentos foram submetidos a um banho por ultrassom com acetona, durante 15 minutos. Em seguida, foram pulverizados manualmente utilizando um almofariz e pistilo de ágata. Após a moagem, o material foi classificado em duas faixas granulométricas, utilizando peneiras da serie Tyler, quais sejam: 150x300  $\mu\text{m}$  e 75x150  $\mu\text{m}$ .

O material particulado, nas duas faixas granulométricas descritas acima, foram sensibilizados com uma pré-dose de 25 kGy no irradiador do Gamalab/DEN/UFPE de  $^{60}\text{Co}$  marca NORDION. Para isso, o material foi encapsulado em invólucros de plástico e colocado dentro de um becker. Decorrido o processo de sensibilização, o material foi submetido a três tratamentos térmicos consecutivos. Estes tratamentos foram realizados com aquecimento das amostras a 400°C por 1h e em seguida, resfriamento contínuo até a temperatura ambiente. Os tratamentos térmicos foram realizados em forno tipo mufla, com as amostras acondicionadas em uma bandeja de alumínio.

### **2.2. Preparação dos discos policristalinos**

Para obtenção de discos coesos policristalinos de quartzo, o material foi misturado com teflon, na proporção 50% quartzo para 50% teflon. O teflon (PTFE - politetrafluoretileno) na forma floculada é procedente da empresa DU PONTS LTDA. A homogeneização da mistura foi feita sobre um vidro de relógio utilizando uma espátula, durante 10 minutos. Após a homogeneização, o material foi prensado usando uma prensa hidráulica Solotest, com capacidade para 20 toneladas, e uma matriz de compactação confeccionada por usinagem convencional. O pino de compressão da matriz, com 6 mm de diâmetro, foi produzido em aço ferramenta VC130 e projetado para suportar uma carga de 3000 kgf, (Carvalho Jr. et al., 2007).

Inicialmente, dois lotes experimentais foram obtidos utilizando uma carga de 500 kgf. O primeiro lote foi obtido com quartzo particulado na faixa 150x300  $\mu\text{m}$ , e o outro utilizando a faixa granulométrica 75x150  $\mu\text{m}$ . Cada lote

possuía 30 discos, os quais foram submetidos a 20 tratamentos térmicos consecutivos. A massa dos discos foram medidas antes dos tratamentos utilizando uma balança analítica, com resolução de 0,0001 g. A massa de cada disco foi de aproximadamente 50 mg. Ao fim de cada tratamento, os discos foram manipulados com pinça e suas massas novamente medidas. A partir das observações feitas nos dois lotes experimentais, um novo lote contendo 30 discos foi produzido com quartzo na faixa 75x150  $\mu\text{m}$ , com tempo de tratamento térmico mais adequado.

O novo lote foi submetido a um tratamento térmico a 400°C durante 6h e em seguida, resfriamento contínuo até a temperatura ambiente. Depois disso, as dimensões dos discos foram medidas utilizando um Micrômetro Digital Mitutoyo-156/101. A espessura e o diâmetro médios foram, respectivamente, 1 mm e 6 mm.

### 2.3. Avaliação da integridade dos discos

A perda de massa foi avaliada por meio de ensaios de ultrassom e Rot-up. O ensaio por ultrassom foi realizado em 5 discos, utilizado um equipamento UltraSonic Cleaner com frequência de 40 KHz. Cada disco foi colocado separadamente dentro de um becker e submetidos à agitação ultrassonora em tempos progressivos entre 3 e 60 minutos. Após o ensaio por ultrassom, os discos foram colocados em recipientes plásticos e então submetidos a um grau de agitação mais severo para o mesmo intervalo de tempo. Para isso, foi utilizado um equipamento de peneiramento Rot-up, marca Via Test, com frequência de 100 Hz. As massas dos discos foram avaliadas entre cada intervalo de tempo em ambos os ensaios.

O perfil de rugosidade de 30 discos e 3 dosímetros comerciais (TLD-100) foram obtidos usando um perfilômetro de contato Mitutoyo SurfTest SJ-400, com valor de cut-off igual a 0,8 mm. Em cada amostra foram realizadas seis medidas em direções aleatórias, sendo três medidas em cada face. A média aritmética dos desvios verticais ( $R_a$ ) e a média aritmética dos cinco maiores desvios pico-vale ( $R_z$ ) foram escolhidas para caracterizar a rugosidade dos discos.

A morfologia da superfície dos discos foi investigada com a técnica de Microscopia Eletrônica de Varredura (MEV). As medidas foram realizadas no Departamento de Eletrônica e Sistemas - UFPE, usando um microscópio eletrônico, modelo JEOL-JSM-6460, com 30 kV.

## 3. Resultados e Discussão

Provavelmente, a dificuldade de obtenção de discos de quartzo puro usando apenas compactação mecânica, deve-se à sua propriedade piezolétrica (Guzzo, 2005). Com isso, tentou-se a compactação do quartzo particulado utilizando teflon como aglomerante. Optou-se pelo teflon, pois este material tem sido utilizado na fabricação de alguns dosímetros comerciais (Campos & Lima, 1986; Carlson et al., 1990).

A Figura 1 apresenta alguns discos prensados com teflon obtidos conforme descrito anteriormente. Com a introdução do teflon, foi possível realizar a manipulação dos discos durante todas as etapas deste estudo. Logo,

constatou-se que o teflon pode ser empregado satisfatoriamente como aglomerante do quartzo para tamanho de partícula entre 75  $\mu\text{m}$  e 300  $\mu\text{m}$ .

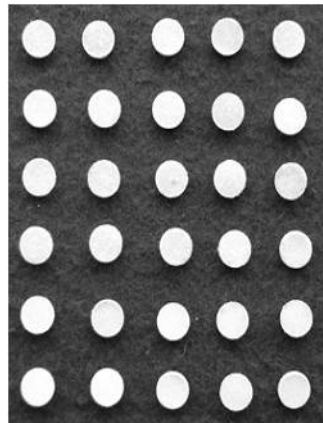


Figura 1. Discos prensados com quartzo particulado 75x150  $\mu\text{m}$  e teflon.

A Figura 2 apresenta o comportamento da massa dos discos produzidos com quartzo particulado nas duas faixas granulométricas após 20 tratamentos térmicos consecutivos. Na Figura 2 (a) observa-se uma queda acentuada da massa dos discos produzidos com grãos 150x300  $\mu\text{m}$  para as 10 primeiras horas de tratamento. Em seguida, nota-se uma estabilidade da massa, seguida de uma leve variação nas 2 últimas horas de tratamento. A Figura 2 (b) apresenta uma perda de massa mais suave para os discos produzidos com grãos 75x150  $\mu\text{m}$  comparada com a massa dos discos produzidos com grãos 150x300  $\mu\text{m}$ . Além disso, nota-se um menor desvio padrão ao longo dos tratamentos térmicos, o que sugere uma maior estabilidade na massa desses discos. A perda de massa observada após os tratamentos foi de aproximadamente 5% para os discos de 75x150  $\mu\text{m}$ , enquanto que para os discos produzidos com grãos 150x300  $\mu\text{m}$  foi de aproximadamente 9%.

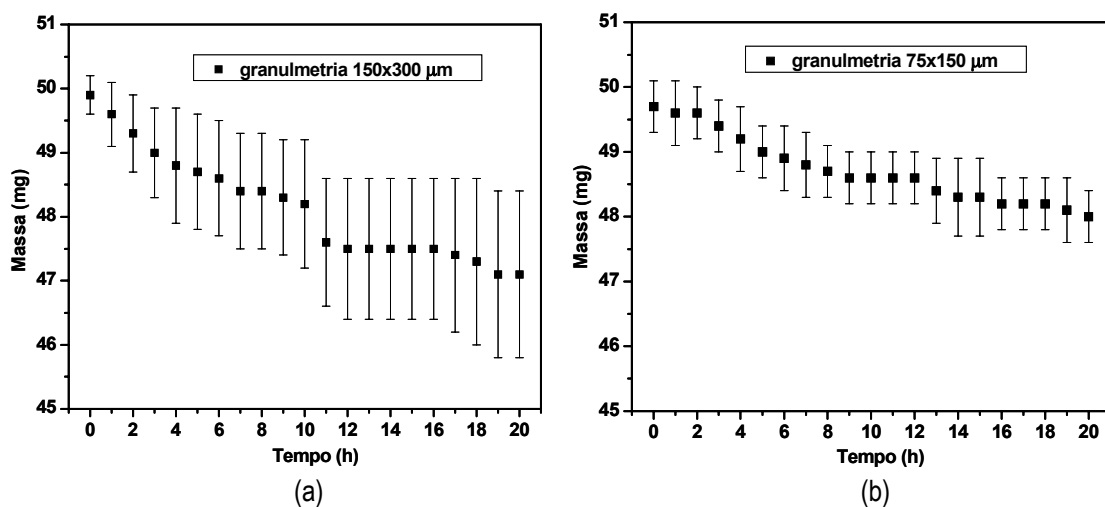


Figura 2. Análise da perda de massa nos discos após 20 tratamentos térmicos.

A Figura 3 apresenta as micrografias obtidas por MEV na superfície dos discos. A Figura 3 (a) mostra que a superfície dos discos produzidos com grãos 150x300  $\mu\text{m}$  encontra-se de forma bastante degradada após os tratamentos térmicos. É possível observar danos nas bordas dos discos supostamente causados pela manipulação com pinça. Nota-se ainda, diversas fraturas e descontinuidades na superfície dos discos causadas pelos descolamentos dos grãos de quartzo. Este resultado explica a queda acentuada na massa desses discos durante os 20 tratamentos térmicos consecutivos seguidos de manipulação.

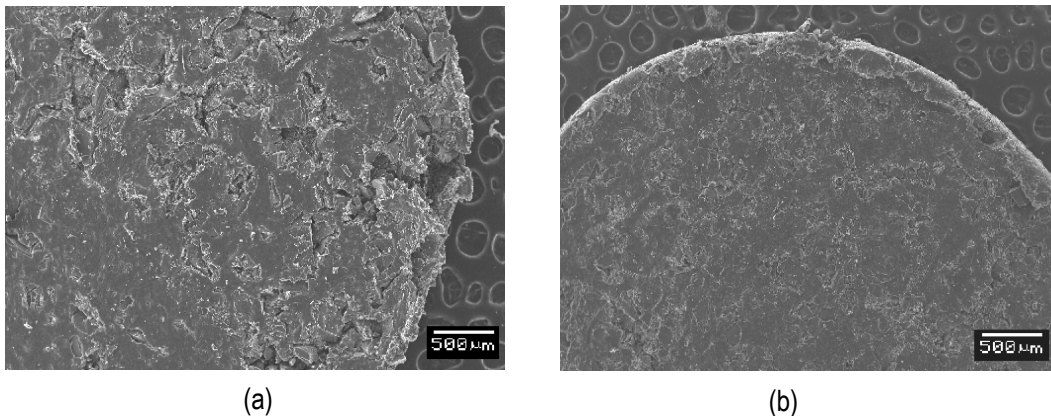


Figura 3. MEV da superfície dos discos produzidos com grãos 150x300  $\mu\text{m}$  (a) e com grãos 75x150  $\mu\text{m}$  (b).

Por outro lado, a Figura 3 (b) mostra que a superfície dos discos produzidos com grãos 75x150  $\mu\text{m}$ , encontra-se de forma mais íntegra após os tratamentos térmicos. Observa-se ainda que as bordas dos discos não apresentaram danos. Além disso, a superfície apresenta poucas falhas indicando que os grãos de quartzo permaneceram coesos aos discos. As micrografias obtidas por MEV após os ensaios vibratórios mostraram que integridade na superfície desses discos não foi afetada pelos ensaios vibratórios.

A Figura 4 apresenta os resultados obtidos após os ensaios de ultrassom e Rot-up nos discos produzidos com grãos 75x150  $\mu\text{m}$ . Observa-se que a massa dos discos não sofreu alteração durante o ensaio por ultrassom. Entretanto, após os 5 primeiros minutos do ensaio Rot-up, nota-se uma pequena queda da massa, que em seguida permanece constante até o término do ensaio. Os valores de  $R_a = 4,53 \pm 0,24 \mu\text{m}$  e  $R_z = 27,62 \pm 4,00 \mu\text{m}$  obtidos nos discos foram maiores que os valores obtidos para os dosímetros (TLD-100), os quais foram  $R_a = 0,42 \pm 0,09 \mu\text{m}$  e  $R_z = 3,47 \pm 0,56 \mu\text{m}$ . Estes resultados indicam que os discos possuem uma superfície mais rugosa que os dosímetros comerciais. Os valores de  $R_a$  e  $R_z$  obtidos nos discos mostraram que os ensaios vibratórios não comprometeram a integridade superficial dos discos. Porém, no futuro, será necessário utilizar um procedimento adicional para aprimorar a qualidade superficial dos discos produzidos.

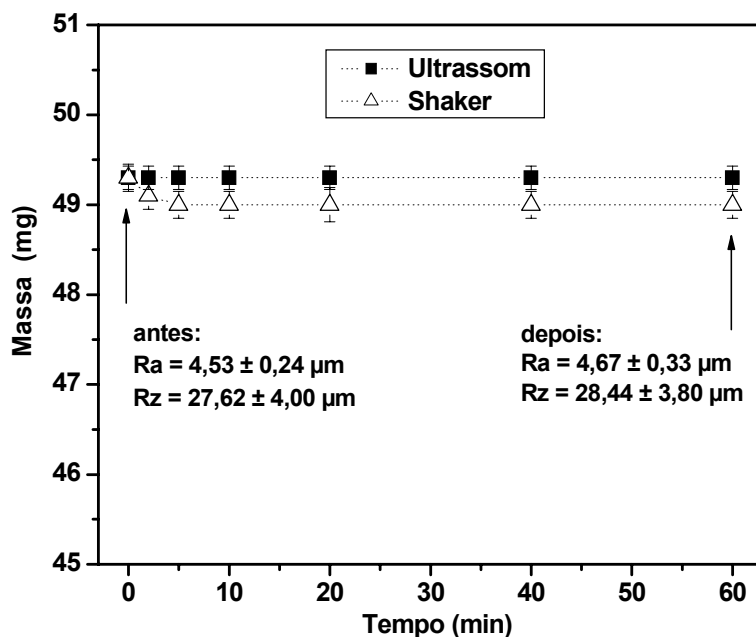


Figura 4. Análise da perda de massa e rugosidade nos discos produzidos com grãos 75x150 μm após os ensaios de ultrassom e Rot-up.

#### 4. Conclusão

Do ponto de vista da integridade e coesão dos discos, os resultados do presente estudo permitiram concluir que o procedimento para obtenção de discos sólidos de quartzo particulado utilizando teflon como aglomerante foi satisfatório. Contudo, discos produzidos com grãos 150x300 μm apresentam maior perda de massa se comparados àqueles produzidos com grãos 75x150 μm. Os valores de  $R_a$  e  $R_z$  indicam uma maior rugosidade para os discos comparados com os dosímetros comerciais (TLD-100). Além disso, esses valores obtidos após os ensaios vibratórios indicam que a integridade dos discos é pouco afetada pela manipulação. As análises na superfície dos discos realizadas com MEV mostram que os discos produzidos com partículas maiores que 150 μm estão mais sujeitos a degradação estrutural. Desta forma, a produção de discos de quartzo utilizando teflon como aglomerante, apresentou resultados satisfatórios ao manuseio quando produzidos com grãos 75x150 μm e submetidos a um tratamento a 400°C por 6h.

#### 5. Agradecimentos

Os autores agradecem à professora Hellen Khoury (Dep. De Energia Nuclear, UFPE) pelo uso da infraestrutura do Laboratório de Metrologia das Radiações Ionizantes. Um dos autores (T.F.B.) agradece ao doutorando Álvaro Carvalho pelo auxílio no planejamento dos experimentos e na discussão dos resultados e ao Programa PIBIC/CETEM/CNPq pela concessão da bolsa de iniciação científica.

## 6. Referências Bibliográficas

- Campos, L.L., Lima, M.F. Dosimetric properties of CaSO<sub>4</sub>:Dy Teflon pellets produced at IPEN. **Radiation Protection Dosimetry**, v. 14, n. 4, p. 333-335, 1986.
- Carlson, G. A.; Lorence, L.; Vehar, D. W.; Klingler, R. S. Particle size effect in CaF<sub>2</sub>:Mn/Teflon TLD response at photon energies from 5 – 1250 keV. **IEEE Transactions on nuclear science**, v. 37, n. 5, p. 1560-1563, 1990.
- Carvalho Jr. AB, Guzzo PL, Khoury HJ. Obtenção de discos policristalinos de quartzo natural para dosimetria das radiações ionizantes. XXII Encontro Nacional de Tratamentos de Minérios e Metalurgia Extrativa, 2007, Ouro Preto, MG, v. 1, p. 767-774.
- Furetta, C. Techniques and Management of Personal Thermoluminescence Dosimetry Services. **Euro Courses**, p.1-25, 1994.
- Guzzo, P. L. 2005. Revisão sobre as propriedade e aplicações do quartzo natural e seu papel no desenvolvimento na indústria de dispositivos piezelétricos. XXI Encontro Nacional de Tratamento de Minério e Metalurgia Extrativa, 2005, Natal, RN, v.2, p.438-445.
- Guzzo, P. L.; Khoury, H. J.; Souza, C. P.; Souza, Jr. A. M.; Schwartz, M. O. E.; Azevedo, W. M. Defect analysis in natural quartz from Brazilian sites for ionising radiation dosimetry. **Radiation Protection Dosimetry, Oxford**, v. 119, p. 168-171, 2006.
- Khoury, H. J.; Guzzo, P. L.; Brito, S.B.; Hazin, C. A. Effect of high gamma doses on the sensitization of natural quartz using TL dosmetry. **Radiation Effects & Defects in Solids**, v. 162: p. 101-107, 2007.
- McKeever, S. W. S. **Thermoluminescence in Solids**. Cambridge Univ. 1985. 376p.
- Silva, C.P.S. **Estudo da Resposta de Cristais de Quartzo para Dosimetria Termoluminescente**. 2005. 88p. Dissertação (Mestrado) - Programa de Pós-Graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares, Universidade Federal de Pernambuco.