



AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**PADRONIZAÇÃO DO MÉTODO DE DOSIMETRIA  
RETROSPECTIVA EMPREGANDO A TÉCNICA DE  
RESSONÂNCIA PARAMAGNÉTICA ELETRÔNICA  
E HIDROXIAPATITA**

**FÁBIO ANTUNES PEREIRA**

Dissertação apresentada como parte  
dos requisitos para obtenção do Grau  
de Mestre em Ciências na Área de  
Tecnologia Nuclear - Aplicações.

Orientadora:  
Dra. Letícia L.C. Rodrigues

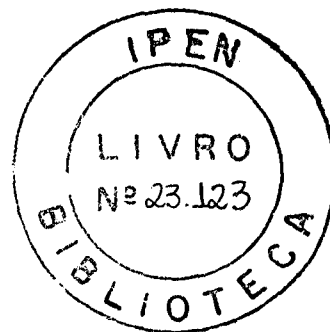
**São Paulo  
2005**

**INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES**

**AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO**

**PADRONIZAÇÃO DO MÉTODO DE DOSIMETRIA RETROSPECTIVA  
EMPREGANDO A TÉCNICA DE RESSONÂNCIA PARAMAGNÉTICA  
ELETRÔNICA E HIDROXIAPATITA**

**FÁBIO ANTUNES PEREIRA**



**Dissertação apresentada como parte dos requisitos para  
obtenção do grau de Mestre em Ciências, na Área de  
Tecnologia Nuclear Aplicações.**

**Orientadora:**

**Dra. Leticia L. C. Rodrigues**

**São Paulo - 2005**

Aos meus Pais, Jairo Antunes Pereira e

Olanda Campos Pereira

À minha namorada, Luciana.

## **AGRADECIMENTOS**

À Dra. Leticia Lucente Campos Rodrigues, pela orientação, paciência, incentivo e pela confiança demonstrada durante todas as fases deste trabalho.

Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares na pessoa do Superintendente, Dr. Cláudio Rodrigues, pela oportunidade oferecida.

Ao amigo Dr. Orlando Rodrigues Jr. pelas discussões e sugestões apresentadas durante o trabalho, e também pela constante ajuda oferecida durante a realização das medidas e na área de informática.

Ao amigo Dr. Plínio Modaffore pela colaboração e amizade demonstrada.

Aos técnicos do Laboratório de Materiais Dentários da Faculdade de Odontologia da Universidade de São Paulo pelo fornecimento das amostras de hidroxiapatita sintética.

À Dra. Maria da Penha Albuquerque Potiens pelas irradiações com Raios-X no Laboratório de Calibração de Instrumentos do Centro de Metrologia das Radiações – CMR - IPEN.

Aos engenheiros Elisabeth S. R. Somessari e Carlos Gaia da Silveira responsáveis pelas irradiações realizadas com as fontes de Cobalto-60 e no acelerador de elétrons do Centro de Tecnologia das Radiações CTR- IPEN.

À Dra Maria Teresa Lamy Freund e aos técnicos do Laboratório de Biofísica do Instituto de Física da Universidade de São Paulo pela possibilidade da realização das medidas com o espectrômetro de ressonância paramagnética eletrônica.

Meus agradecimentos se estendem a todo o pessoal da biblioteca, laboratório de produção de materiais dosimétricos, professores e todas as pessoas que contribuíram direta ou indiretamente, dentro ou fora do IPEN, para a realização deste trabalho.

**PADRONIZAÇÃO DO MÉTODO DE DOSIMETRIA RETROSPECTIVA  
EMPREGANDO A TÉCNICA DE RESSONÂNCIA PARAMAGNÉTICA ELETRÔNICA  
E HIDROXIAPATITA**

**Fábio Antunes Pereira**

**RESUMO**

Este trabalho apresenta os resultados de estudos envolvendo amostras de hidroxiapatita sintética (hidroxiapatita tipo B) e biológica (esmalte dentário), irradiadas com radiação gama do  $^{60}\text{Co}$  e raios-X de energias baixas. O objetivo principal do trabalho foi realizar estudos para implantação dessa modalidade de dosimetria no IPEN, como um procedimento para avaliação retrospectiva de dose em casos de acidente em instalações de radioterapia e radiodiagnóstico. As medidas foram realizadas à temperatura ambiente com as amostras de hidroxiapatita sintética tipo B e esmalte dentário, na forma de pó, encapsuladas em tubo de polietileno, utilizando um equipamento de RPE da Bruker modelo EMX. São discutidos os processos de preparação de amostras, parametrização do equipamento de RPE e avaliação dos espectros brutos. Foram realizados testes de desempenho dos dosímetros de esmalte dentário tais como: avaliação do sinal em função da dose, decaimento do sinal, limite de detecção máximo e mínimo, reprodutibilidade e dependência energética do sinal RPE. Os resultados obtidos confirmam a viabilidade da metodologia aplicada para retrospectiva de dose.

**STANDARDIZATION OF RETROSPECTIVE DOSIMETRY METHOD  
EMPLOYING THE ELETRONIC PARAMAGNETIC RESONANCE TECHNIQUE AND  
HYDROXYAPATITE**

**Fábio Antunes Pereira**

**ABSTRACT**

This work presents the results obtained studying B-type synthetic hydroxyapatite and biological hydroxyapatite (tooth enamel) irradiated with  $^{60}\text{Co}$  gamma radiation and low energy X-rays. The main objective was to perform complementary studies and introduce this dosimetry technique at IPEN such as a procedure for retrospective dose evaluations in cases of accidents in radiotherapy and radio diagnostic facilities. The measurements were performed at room temperature with samples of B-type synthetic hydroxyapatite and tooth enamel, in powder form encapsulated in polyethylene tube, using an EPR equipment Bruker model EMX. Processes of sample preparation, spectrometer parameters settings and evaluation of raw spectra are discussed. The main dosimetric characteristics such as evaluation signal as a function of the dose, fading, lowest detection limit, reproducibility and energy dependence of the sign EPR signal, were performed. The results obtained show the feasibility of the applied methodology for dose retrospective.

## SUMÁRIO

	Página	
1	INTRODUÇÃO	1
2	Objetivos	4
2.1	Objetivos Gerais	4
2.2	Objetivos Específicos	4
3.	FUNDAMENTOS TEÓRICOS	5
3.1	Interação da Radiação com a matéria	5
3.1.1	Absorção Fotoelétrica	5
3.1.2	Efeito Compton	7
3.1.3	Produção de Pares	7
3.2	Dosimetria da Radiações	8
3.2.1	Grandezas Radiométricas	9
3.2.1.1	Dose Absorvida	9
3.2.1.2	Taxa de dose absorvida	10
3.2.1.3	Exposição	10
3.2.1.4	Dose equivalente em um órgão ou tecido	11
3.2.1.5	Dose Efetiva	12
3.3	Influência dos fatores externos em dosimetria	13
3.3.1	Dosimetria em situações de acidente	14
3.3.1.1	Definição de acidente	14
3.3.2	Dosímetros de acidente	18
3.3.3	Técnicas dosimétricas aplicadas em situações de acidente	19



3.3.4	Incertezas	21
3.4	Classificação de dosímetros	23
3.4.1	Dosímetros primários ou de referência	23
3.4.2	Dosímetro padrão de referência	23
3.4.3	Dosímetro de campo ou de transferência	23
3.4.4	Dosímetros de rotina	23
3.4.5	Dosímetros terciários	23
3.5	RESSONÂNCIA PARAMAGNÉTICA ELETRÔNICA (RPE)	24
3.5.1	Princípios do Método	25
3.5.2	Interação spin-rede	27
3.5.3	Tratamento clássico da RPE	29
3.5.4	Interação Hiperfina	31
3.5.5	Princípio de funcionamento de um espectrômetro RPE	32
3.5.6	Fator de desdobramento espectroscópico ou fator “g “	33
3.5.7	Amostra padrão	34
3.5.8	Materiais utilizados como dosímetros RPE	34
3.5.8.1	Aminoácidos	34
3.5.8.2	Alanina	35
3.5.8.3	Tecidos calcificados (hidroxiapatita, dentes)	38
	a) Estrutura da hidroxiapatita	38
	b) Processo de Síntese da hidroxiapatita	40

4.	MATERIAIS E MÉTODOS	41
4.1	Hidroxiapatita sintética tipo B	41
4.2	Hidroxiapatita biológica (Esmalte dentário)	42
4.2.1	Preparação das amostras	42
	a) Separação mecânica	42
	b) Separação dos componentes orgânicos	42
	c) Obtenção do pó	42
	d) Preparo das amostras	43
	e) Porta - detector	43
4.3	Equipamentos Utilizados	45
4.3.1	Estufa	45
4.3.2	Balança Analítica	45
4.4	Sistemas de Irradiações das amostras	45
	a) Fonte de $^{60}\text{Co}$ - Panorâmica	45
	b) Fonte de $^{60}\text{Co}$ - Tipo Câmara (Gammacell)	47
4.4.2	Aparelho de Raios-X	47
4.4.3	Acelerador de elétrons	49
4.4.4	Fonte de $^{137}\text{Cs}$	49
4.4.5	Parametrização do equipamento de RPE	50

5.	RESULTADOS E DISCUSSÕES	52
5.1	Espectros RPE	52
5.1.1	Sensibilidade Relativa do sinal RPE	53
5.2	Testes de desempenho	53
5.2.1	Dependência do sinal RPE com a massa de esmalte dentário	53
5.2.2	Dependência do sinal RPE com o posicionamento do detector no interior da cavidade ressonante	54
5.2.3	Dependência do sinal RPE com o ângulo de rotação do detector na cavidade ressonante	55
5.2.4	Dependência do sinal RPE com a potência de microondas	55
5.2.5	Efeito do choque mecânico no sinal RPE	56
5.2.6	Reprodutibilidade	57
5.2.6.1	Reprodutibilidade do lote	57
5.2.6.2	Reprodutibilidade do Sistema de Leitura	57
5.2.7	Dependência do sinal RPE com o tipo de radiação incidente	57
5.2.8	Dependência do sinal RPE com a taxa de dose	58
5.2.9	Decaimento do sinal RPE em função do tempo e da condição de armazenamento	59
5.2.10	Dependência energética do sinal RPE	61
5.2.11	Curva de resposta com a dose	62
5.3	Limite mínimo de detecção	63
5.4	Teste de confiabilidade do sistema dosimétrico	63
5.5	Cálculo da Incerteza	64

5.5.1	Decaimento	64
5.5.2	Preparação das amostras	64
5.5.3	Medida RPE	65
5.5.3.1	Posicionamento da amostra (variação angular e vertical)	65
5.5.3.2	Estabilidade do espectrômetro RPE	65
5.5.3.3	Ruído no espectro RPE	66
5.5.3.4	Calibração	66
6.	CONCLUSÕES	67
7.	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	68

## 1 INTRODUÇÃO

A Ressonância Paramagnética Eletrônica (RPE) foi descoberta por Zavoisky em 1945 <sup>(78)</sup>.

A história da aplicação da RPE, tem mais de 32 anos. A RPE é um método de ressonância magnética capaz de detectar elétrons desemparelhados pelo seu momento magnético líquido. Essa técnica tem aplicações físicas, químicas e biomédicas e, mais recentemente, tem sido utilizada em dosimetria da radiação e na datação geológica e arqueológica, estas últimas, baseadas na dosimetria dos efeitos da radiação natural. A dose de radiação acumulada é determinada a partir da intensidade do sinal originado por elétrons desemparelhados produzidos pela radiação. A intensidade do sinal é proporcional à dose de radiação absorvida pela amostra <sup>(6,17,21,36,49,80)</sup>.

Bradshaw e colaboradores <sup>(15)</sup> propuseram um dos primeiros trabalhos utilizando a alanina como dosímetro. O dosímetro consistia de um tubo de polietileno com 1,0 cm de diâmetro e 2 a 4 cm de comprimento, preenchido com alanina e selado, entretanto, por causa das dimensões do dosímetro não serem compatíveis com a da cavidade do espectrômetro de RPE utilizado, a amostra foi transferida para outro recipiente com dimensões menores, a fim de ser efetuada a leitura. Em virtude deste problema, Bradshaw não mais utilizou o tubo de polietileno preenchido com alanina como um dosímetro <sup>(15)</sup>.

Entre os vários aminoácidos estudados por Gordy e colaboradores <sup>(31)</sup> utilizando a técnica de RPE, a alanina apresentou um espectro bem resolvido e um grande número de radicais livres formados por unidade de dose absorvida e, em razão destas características, a alanina passou a ser estudada como dosímetro <sup>(27)</sup>.

Regulla e colaboradores <sup>(69)</sup>, relataram que amostras cilíndricas de alanina agregada com parafina ou poliestireno foram desenvolvidas para serem usadas como dosímetros de rotina para irradiação industrial, e, em razão da sua robustez, elas são usadas como dosímetros de referência e enviadas pelo correio como um serviço oferecido por muitos laboratórios <sup>(64)</sup>.

Muitos dosímetros contendo alanina têm sido utilizados por vários pesquisadores, em várias formas e variando-se os materiais agregantes, pois, a alanina quando prensada na forma pura não apresenta boa resistência mecânica.

A bibliografia relata a confecção de dosímetros de alanina em diversas formas:

- **Cilíndrica:** Bermann e colaboradores, <sup>(13)</sup>1971; Regulla e colaboradores, 1981<sup>(69)</sup>; Regulla e Deffner, 1982 e 1985; Shneider e colaboradores, 1985 e Hansen e colaboradores, 1987 <sup>(35)</sup>.
- **Bastão:** Regulla e colaboradores,<sup>(69)</sup> 1981; Bartollota e colaboradores,<sup>(12)</sup> 1985 e Kojima e colaboradores, 1982 <sup>(47)</sup>.
- **Pastilhas:** Kojima e colaboradores, 1986 <sup>(47)</sup>.
- **Filmes:** Instituto de Pesquisa Nuclear, Rez, República Tcheca <sup>(40)</sup>.

Recentemente, a RPE tem sido considerada uma técnica promissora para ser utilizada na determinação da exposição acidental, por meio da avaliação de materiais facilmente disponíveis pela população<sup>(20,56,62,67)</sup>.

Um dosímetro efetivo para medida de exposição à radiação acidental deve ser idealmente sensível, reprodutível e prático <sup>(61)</sup>, bem como ser capaz de medir campos mistos e diferentes energias, taxas de dose e tipos de radiação. Uma vez que muitas situações envolvem uma análise retrospectiva sobre situações de emergência, as amostras devem ter, de preferência, número atômico efetivo equivalente ao tecido, estarem facilmente disponíveis e não serem influenciadas por condições ambientais adversas<sup>(49)</sup>. Todavia, um método dosimétrico para situações de emergência para o público ainda não foi completamente estudado ou estabelecido. Esses critérios limitam, tanto os materiais disponíveis, como a técnica a ser utilizada<sup>(49,61,67,71)</sup>. Os aminoácidos, particularmente a alanina<sup>(28,33,56,69)</sup> e os açúcares<sup>(28,58,59,76)</sup>, são materiais equivalentes ao tecido.

O acidente nuclear de Chernobyl e o acidente de Goiânia<sup>(67)</sup> mostraram o potencial da exposição acidental a que o público em geral está sujeito. Para que se possa providenciar tratamento médico adequado para a população exposta à radiação é necessária a determinação da dose a que elas foram expostas.

Neste trabalho é feito um estudo dosimétrico intensivo das amostras de esmalte dentário, determinando assim uma série de propriedades, que vão padronizar o emprego desse material em caso de acidente. O desenvolvimento de um dosímetro prático, econômico e preciso, é de fundamental importância para a segurança da população, visto o grande interesse do seu uso para situações de emergência.

## **2 OBJETIVOS**

### **2.1 Objetivos Gerais**

Estabelecer e padronizar os parâmetros para implantação da técnica de dosimetria retrospectiva usando hidroxiapatita.

### **2.2 Objetivos Específicos**

- Fixar os parâmetros de obtenção de amostras de esmalte dentário, de preparação das amostras e de leitura do sinal RPE, para padronização da medida da dose em casos de acidente.
- Estudar as propriedades dosimétricas do esmalte dentário, hidroxiapatita biológica, empregando a técnica de RPE, baseado na medida de radicais livres induzidos pela radiação na hidroxiapatita, que é uma fase mineral dos dentes e ossos, para detecção de exposições externas.
- Estudar as propriedades dosimétricas da hidroxiapatita sintética tipo B empregando a técnica de RPE.
- Comparar as respostas RPE para ambos os tipos de amostras.



### 3 FUNDAMENTOS TEÓRICOS

#### 3.1 Interação da Radiação com a matéria

Radiações ionizantes, no contexto biológico, são aquelas capazes de ejetar os elétrons orbitais dos átomos de C, H, O e N. A quantidade de energia depositada por uma radiação ionizante ao atravessar um material depende da natureza química do material e de sua massa específica. É importante ressaltar que a absorção de radiações ionizantes pela matéria é um fenômeno atômico e não molecular.

A transferência linear de energia (*TLE*) é a grandeza utilizada para caracterizar a interação das radiações ionizantes com a matéria. É definida como "a quantidade de energia dissipada por unidade de comprimento da trajetória", e pode ser expressa em keV/mm. As radiações ionizantes de natureza eletromagnética são os raios-X (originados nas camadas eletrônicas) e os raios gama (originados no núcleo atômico). As radiações ionizantes de natureza corpuscular mais utilizadas são os elétrons, as partículas alfa, os nêutrons e os prótons.

A dosimetria das radiações baseia-se no estudo da interação dos mais variados tipos de radiação com a matéria, em particular com os tecidos biológicos.

No intervalo de energia normalmente utilizado em dosimetria de situações de acidente, os principais mecanismos de interesse são: a absorção fotoelétrica e o efeito Compton.

##### 3.1.1 Absorção Fotoelétrica <sup>(48)</sup>

O processo de interação fotoelétrica consiste na transferência total da energia da radiação gama ou X a um único elétron orbital, ejetando esse elétron com uma energia cinética bem definida, dada por:

$$E_C = h\nu - W_o \quad (1)$$

onde  $W_o$  é a energia de ligação da camada eletrônica em que o elétron se encontra e  $h\nu$  é a energia do fóton incidente.

Como os fótons são totalmente absorvidos no processo fotoelétrico, isto requer que os elétrons estejam ligados a átomos ou sólidos, pois um elétron livre não pode absorver um fóton e conservar simultaneamente a energia e o momento relativísticos totais. Isso acontece quando um fóton incide em um átomo transferindo sua energia a um único elétron orbital, fazendo com que ele seja ejetado.

A energia  $E_e$  do elétron ejetado é a diferença entre a energia  $E_f$  do fóton incidente e a energia  $E_{Máx}$  de ligação do elétron orbital:

Para o caso em que o elétron não gasta nenhuma energia adicional, sua energia cinética pode ser dada por esta expressão:

$$E_e = E_f - E_{Máx} \quad (2)$$

O efeito fotoelétrico é predominante para energias baixas e para elementos de número atômico  $Z$  elevado, sendo proporcional a  $Z^5$ , como mostra a figura 1.

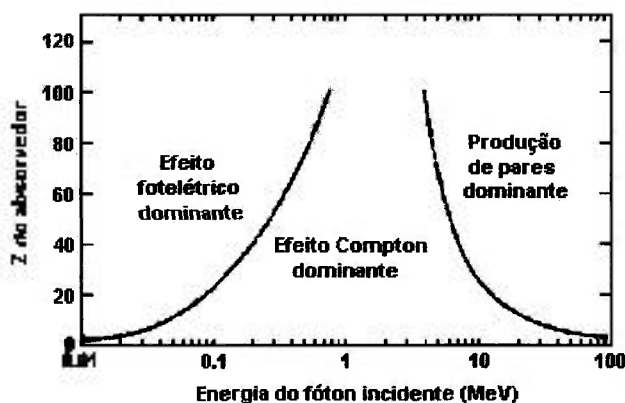


Figura 1. Energia do fóton incidente em função do material absorvedor <sup>(9)</sup>.

Devido à alta probabilidade de interação fotoelétrica com elementos de número atômico elevado, utiliza-se elementos como o chumbo para blindagem para raios-X e para radiação gama de energia baixa.

### 3.1.2 Efeito Compton <sup>(45)</sup>

Ocorre quando um fóton incide sobre um elétron periférico dos átomos do absorvedor. O fóton e o elétron são espalhados. O elétron recebe apenas parte da energia da radiação incidente e o fóton terá energia menor que a inicial, bem como outra direção de propagação.

O efeito Compton é predominante para radiações de energias intermediárias, de modo que o elétron de valência pareça "livre" devido à sua baixa energia de ligação com o átomo frente à energia da radiação incidente. Este efeito depende também da densidade do elemento, e é decrescente com a energia dos fótons incidentes. O efeito Compton é inversamente proporcional à energia do fóton e proporcional ao número atômico do átomo absorvedor. A energia dos fótons espalhados após a colisão é dada por:

$$h\nu' = \frac{h\nu}{1 + \left[ \frac{h\nu}{m_0c^2(1 - \cos\theta)} \right]} \quad (3)$$

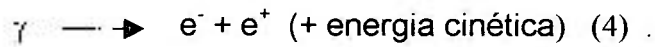
onde  $h\nu$  é a energia do fóton incidente,  $h\nu'$  é a energia do fóton espalhado e  $m_0c^2$  a energia de repouso do elétron.

No espalhamento Compton, o fóton é desviado sob um ângulo  $\theta$ , em relação a direção original e transfere uma parte de sua energia para o elétron, considerado inicialmente em repouso, que é ejetado.

Embora todos os ângulos de espalhamento sejam igualmente possíveis, porém tem probabilidades diferentes, e a energia transferida ao elétron é função do ângulo de espalhamento e pode variar de zero a  $90^\circ$ .

### 3.1.3 Produção de pares <sup>(9)</sup>

A produção de pares ocorre quando fótons com energia maior ou igual a 1,02 MeV passam próximos a núcleos de número atômico elevado. A radiação incidente interage com o núcleo transformando-se em duas partículas, o par elétron – pósitron:



O pósitron, após ser criado, perde sua energia no meio e, finalmente, interagindo com algum elétron, ocorre a aniquilação de ambos, originando radiação gama.

A criação de pares ocorre para altas energias e para elementos de número atômico alto, sendo proporcional à  $Z^2$ .

O processo de formação de pares consiste na absorção de um fóton e a produção de um elétron e um pósitron.

Essa interação ocorre no campo colombiano do núcleo, onde um fóton desaparece e é substituído por um par de elétron –pósitron. Todo o excesso de energia carregado pelo fóton acima de 1,02 MeV, necessário para produção do par, se transforma em energia cinética.

### **3.2 Dosimetria da Radiações**

Tendo em vista os danos biológicos causados pela exposição à radiação, tornou-se necessário estabelecer meios de proteção aos que trabalham com radiação e à população em geral.

Foram criadas organizações internacionais como a “International Commission on Radiological Protection “(ICRP) e a “International Commission on Radiation Units and Measurements” (ICRU) que definem as grandezas de medida da radiação e suas unidades e estabelecem e recomendam os limites máximos admissíveis de dose para os que trabalham com radiação e para o público em geral <sup>(62)</sup>.

No Brasil, a Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN) é a responsável pela legislação e pela fiscalização do uso da radiação. Ela elabora normas básicas de Proteção Radiológica que regem o uso da radiação no país.

A determinação correta de dose absorvida é de grande importância na utilização das radiações ionizantes. Assim, organizações internacionais elaboram e recomendam a utilização de protocolos de dosimetria para que certos cuidados

sejam tomados e para que se possa determinar a dose absorvida nos diversos materiais <sup>(62)</sup>.

A dosimetria tem como objetivo a medida ou a determinação da dose absorvida ou taxa de dose resultante da interação da radiação ionizante com a matéria <sup>(9)</sup>.

### 3.2.1 Grandezas Radiométricas

A medida e o estudo dos efeitos da radiação requerem vários graus de especificação do campo de radiação e do ponto de interesse, seja no ar ou na matéria. As radiações de todos os tipos são caracterizadas por essas grandezas radiométricas <sup>(9)</sup>.

#### 3.2.1.1 Dose Absorvida

O conceito de dose absorvida é aplicável a todo o tipo de radiação, direta ou indiretamente ionizante. A energia absorvida por unidade de massa é a grandeza física mais importante que correlaciona os efeitos destas radiações.

Nos mecanismos de absorção de energia, o importante é a energia que é dissipada localmente no ponto de interesse, e isto depende das colisões das partículas com o meio, resultando na perda de energia <sup>(9,41)</sup>.

A dose absorvida ( $D$ ): é o quociente de  $d\bar{\epsilon}$  por  $dm$ , onde  $d\bar{\epsilon}$  é a energia média depositada pela radiação ionizante na matéria em um elemento de volume e  $dm$  é a massa da matéria no elemento de volume.

$$D = \frac{d\bar{\epsilon}}{dm} \quad (5)$$

A energia média cedida,  $\bar{\epsilon}$ , é o valor esperado da energia cedida  $\epsilon$ .

A grandeza dose absorvida é capaz de abranger todos os tipos de radiação direta ou indiretamente ionizante.

As unidades de dose absorvida são:

Sistema internacional:  $\text{J kg}^{-1}$

Unidade antiga: rad ( $1 \text{ rad} = 10^{-2} \text{ J kg}^{-1}$ )

Unidade restrita: Gray (Gy) ( $1 \text{ Gy} = 1 \text{ J kg}^{-1}$ )

A determinação correta da dose absorvida pelo material irradiado é de grande importância, principalmente na utilização de radiações ionizantes tanto em processos industriais como em terapias, pois dela dependerá o sucesso das aplicações.

A dose absorvida depende de alguns parâmetros importantes como a atividade e a geometria da fonte, a distância do produto em relação à fonte, o tempo de irradiação, a composição e a densidade do produto e até da geometria do produto <sup>(7)</sup>.

**3.2.1.2 Taxa de dose absorvida ( $\dot{D}$ ):** é o quociente de  $dD$  por  $dt$ , onde  $dD$  é o incremento de dose absorvida no intervalo de tempo  $dt$ .

$$\dot{D} = \frac{dD}{dt} \quad (6)$$

As unidades de Taxa de Dose Absorvida são:

- Sistema internacional:  $\text{J kg}^{-1} \text{ s}^{-1}$
- Unidade antiga:  $\text{rad s}^{-1}$
- Unidade restrita:  $\text{Gy s}^{-1}$

### 3.2.1.3 Exposição

A exposição  $X$  é a grandeza que descreve a capacidade dos raios X e da radiação gama de ionizar o ar.

Os métodos dosimétricos que utilizam a ionização do ar como referência têm sido usados por muitos anos devido às características físicas favoráveis. O ar tem número atômico semelhante ao tecido mole, portanto, fica mais fácil correlacionar os

efeitos biológicos causados pelos raios X e a energia requerida para produzir um par de íons no ar (W).

A definição de exposição é dada pelo quociente de  $dQ$  por  $dm$ , onde o valor de  $dQ$  é o valor absoluto da carga total de íons de mesmo sinal produzidos no ar quando todos os elétrons liberados pelos fótons no ar de massa  $dm$  são completamente freados.

$$X = dQ / dm \quad (7)$$

A unidade de exposição no SI é o  $Ckg^{-1}$  e o nome da antiga unidade é o Roentgen cuja relação é  $1R = 2,58 \cdot 10^{-4} Ckg^{-1}$  (38).

#### 3.2.1.4 Dose equivalente em um órgão ou tecido

O conceito de dose equivalente,  $H$ , foi introduzido para definir a relação numérica entre os valores de dose absorvida e o risco dos efeitos estocásticos.

A probabilidade de ocorrência dos efeitos estocásticos depende, além da dose absorvida, também da energia e do tipo da radiação que ocasionou esta dose.

Por isso, a dose absorvida é ponderada por um fator de radiação que considera a qualidade da radiação. Este fator quando aplicado à dose absorvida, para um ponto considerado, é chamado *fator de qualidade* e a dose absorvida ponderada é chamada *dose equivalente H*.

A ICRP adota a grandeza dose equivalente média sobre um tecido ou órgão,  $H_T$ , para um ponto, para indicar as implicações biológicas de exposição à radiação. O fator de ponderação neste caso é chamado fator de ponderação de radiação,  $W_R$ , que é específico para o tipo de energia de radiação incidente no corpo. onde  $D_{T,R}$  é a média das doses absorvidas no tecido ou órgão devido à radiação R e  $W_R$  para fótons e elétrons é igual a 1.

$$H_T = \sum W_R \cdot D_{T,R} \quad (8)$$

A unidade de dose equivalente no Sistema Internacional é a mesma que para dose absorvida  $\text{J kg}^{-1}$ , e seu nome especial é o *Sievert* (Sv) <sup>(38,62)</sup>.

### 3.2.1.5 Dose Efetiva

A relação entre a probabilidade de ocorrência dos efeitos estocásticos e a dose equivalente depende do órgão irradiado. No entanto, é importante definir uma grandeza apropriada, derivada da dose equivalente, para indicar a combinação das diferentes doses para diferentes tecidos e uma forma de correlacioná-los com os efeitos estocásticos totais. A dose efetiva  $E$ , é a soma ponderada das doses equivalentes,  $H_T$ , de 13 órgãos.

O fator de ponderação (Tabela 1), para o órgão ou tecido,  $W_T$ , representa a contribuição para o órgão ou tecido devido aos efeitos resultantes de uma irradiação uniforme de corpo inteiro.

A dose equivalente ponderada (ou dose duplamente ponderada) é definida como dose efetiva,  $E$ .

$$E = \sum_T w_T \cdot H_T \quad (9)$$

onde  $H_T$  é a dose equivalente em um órgão ou tecido e  $W_T$  é o fator de ponderação para o tecido  $T$ .

A unidade de dose efetiva é o  $\text{J} \cdot \text{kg}^{-1}$ , e seu nome especial é o *Sievert* (Sv).

A tabela 1, mostra os valores de  $W_T$  correspondente para cada órgão e tecido.



Tabela 1. Fator de ponderação  $W_T$ , para órgãos e tecidos segundo o ICRP 60 <sup>(39)</sup>.

Órgão ou Tecido	$W_T$ (ICRP 60)
Gônadas	0,20
Medula óssea	0,12
Cólon, pulmão, estômago	0,12
Tórax, tireóide	0,05
Bexiga, fígado, esôfago	0,05
Pele, ossos	0,01

### 3.3 Influência dos fatores externos em dosimetria

Alguns sistemas dosimétricos são usados indiretamente na medida da dose absorvida por satisfazerem aos requisitos para um controle diário, porém, são dependentes de uma série de fatores que não são controlados facilmente.

Entre eles destaca-se: a dependência energética, os efeitos da taxa de dose, as condições ambientais, e a estabilidade em função do tempo.

A dependência energética pode causar incertezas na medida da dose absorvida, principalmente quando o dosímetro é calibrado sob condições específicas de energia e geometria de irradiação, e é usado sob condições que são significativamente diferentes.

A maioria dos dosímetros utilizados depende da medida de uma espécie estável ou relativamente estável, a qual é formada como resultado de uma série de reações envolvendo íons, radicais livres, reações intermediárias, e de competição que ocorrem após a irradiação e antes que o produto mensurável seja formado.

Como as interações dessas espécies reativas são influenciadas por condições adversas tais como concentração de oxigênio, luz, temperatura e umidade relativa, é necessário uma atenção especial a esses fatores, os quais podem afetar a resposta.

### 3.3.1 Dosimetria em situações de acidente

#### 3.3.1.1 Definição de Acidente

Um acidente com radiação é caracterizado por um campo de radiação intenso não intencional ou pela liberação não controlada de grandes quantidades de material radioativo, de tal forma que sejam capazes de causar sérios danos ou morte.

Existem três tipos de acidente envolvendo seres humanos <sup>(62)</sup>:

- Irradiação externa (de corpo inteiro, corpo parcial ou localizada);
- Contaminação externa ou de superfície;
- Contaminação interna (inalação, ingestão, injeção, absorção).

Quando a irradiação é externa, os danos dependem da energia da radiação, do tempo de exposição e da distância à fonte radioativa.

A exposição interna ocorre quando houver contaminação radioativa do organismo com a introdução de radioisótopos por via respiratória, digestiva, transcutânea ou traumática.

O tratamento de qualquer contaminação requer o conhecimento do risco envolvido, onde a urgência e a importância do tratamento dependerão da eficiência do método terapêutico e da severidade da contaminação.

A gravidade da contaminação depende de vários fatores, entre os quais cabe citar: órgão de deposição, a natureza de emissão do radionuclídeo contaminante e meia vida efetiva.

Os estudos dos mecanismos básicos da radiobiologia permitem análises microscópicas do que ocorre com a passagem da radiação e a liberação de energia, em volumes muito pequenos como células ou parte de células.

A energia liberada pode produzir ionização e excitação dos átomos e quebra de moléculas e, como consequência, formação de íons e radicais livres altamente reativos. Estes, por sua vez, podem atacar moléculas, DNA (ácido desoxirribonucléico) do núcleo da célula, causando-lhes danos. A célula resultante vive por um certo tempo, mas como não é capaz de dividir-se acaba morrendo. Se isso ocorrer em um número muito grande de células, sobrevém o mau funcionamento do tecido constituído por essas células e, por fim, a sua morte <sup>(61,62)</sup>.

Os efeitos biológicos produzidos pelas radiações ionizantes podem ser classificados em função de <sup>(22,62)</sup>.

### **1. Momento de aparição:**

- efeitos precoces;
- efeitos tardios.

### **2. Danos sofridos pela pessoa ou por seus descendentes**

- efeitos somáticos;
- efeitos hereditários.

### **3. Suas características:**

- efeitos estocásticos;
- efeitos determinísticos.

Os efeitos a curto prazo ou agudos são aqueles observáveis em apenas horas, dias ou semanas após a exposição do indivíduo à radiação. Esses efeitos estão geralmente associados a doses altas de radiação, acima de 1Gy, recebidas por grandes áreas do corpo, num curto período de tempo. Dependendo da dose, pode ser provocada a chamada síndrome aguda da radiação, em que pode ocorrer náuseas, vômitos, prostração, perda de apetite e de peso, febre, hemorrágicas dispersas, queda de cabelo e forte diarreia.

Os três sistemas de órgãos que parecem ser os mais importantes na síndrome aguda da radiação são: o sistema hematopoético - para doses equivalentes abaixo de 5 Gy; o sistema gastro intestinal - para doses equivalentes entre 5 e 20 Gy, e o sistema nervoso central - para doses acima de 50 Gy<sup>(22,62)</sup>.

A avaliação da severidade é feita por meio de métodos dosimétricos, sinais clínicos e sintomas, dados hematológicos e análise cromossômica.

Os dados hematológicos são de importância para a avaliação da severidade da exposição, sendo que as contagens sangüíneas devem se realizadas várias vezes entre o primeiro e o segundo dia, pois os linfócitos diminuem rapidamente atingindo um mínimo.

Os efeitos a longo prazo ou tardios podem surgir de doses altas num curto intervalo de tempo: são os casos de animais adultos que recebem dose de radiação não letal, portanto, com recuperação aparente, podendo ainda vir a sentir os efeitos muitos anos mais tarde; e de pequenas doses, mas crônicas, num logo intervalo de tempo; são os casos de pessoas ocupacionalmente expostas, como radiologistas e pesquisadores que trabalham com radiação<sup>(62)</sup>.

Os efeitos tardios se subdividem em somáticos e genéticos: Os efeitos somáticos são aqueles que afetam diretamente o individuo exposto à radiação e não são transmitidos a gerações futuras. Esses efeitos dependem dos seguintes fatores: tipo de radiação; profundidade atingida, que esta relacionada à energia da radiação e ao tipo de tecido irradiado; área ou volume do corpo exposto; dose total recebida e tempo de irradiação.

Entre os efeitos somáticos no homem, os mais importantes são o aumento na incidência de câncer, a anormalidade no desenvolvimento do embrião, a indução de catarata e a redução da vida média.

Os efeitos genéticos hereditários consistem de mutações nas células reprodutoras que afetam gerações futuras. Esses efeitos podem surgir quando os órgãos reprodutores são expostos à radiação, e aparentemente não afetam o individuo que sofre a exposição, mas apenas seus descendentes.

Quando a radiação atinge as células reprodutoras e os seus precursores, pode ocorrer uma alteração na informação genética codificada, provocando uma mutação genética. Se o espermatozóide ou o óvulo for utilizado posteriormente na concepção, a alteração será incorporada ao óvulo fertilizado e essa alteração será reproduzida. Algumas dessas mutações podem ser letais ou podem produzir defeitos físicos ou mentais ou, simplesmente, aumentar a suscetibilidade e determinadas doenças crônicas, ou anormalidades bioquímicas.

Os limites máximos permissíveis são estabelecidos de forma a restringirem os efeitos somáticos nos indivíduos expostos, na sua descendência direta e na população como um todo.

O propósito da dosimetria em situações de acidente crítico é avaliar rapidamente os níveis de dose absorvida pelos indivíduos expostos e permitir um rápido diagnóstico, além de elaborar métodos que serão empregados para determinação exata das contribuições dos diferentes tipos de radiação à dose absorvida.

A reconstrução da dose pode ser necessária em uma variedade de situações <sup>(34)</sup>:

- Exposição acidental aguda;
- Fontes roubadas ou perdidas;
- Acidentes de criticalidade;
- Acidentes com reatores;
- Suspeita de superexposição de pessoas do público em geral;
- Reavaliação de exposição de trabalhadores com radiação.

Uma manipulação com sucesso em uma situação de emergência depende da disponibilidade imediata de uma estimativa apropriada da dose total. Isto permite uma separação rápida dos indivíduos severamente expostos. É necessário que esta primeira determinação esteja completa dentro de 48 h com uma incerteza máxima de 50 % <sup>(34)</sup>.

Todas essas informações foram obtidas ao longo dos anos, permitindo aos profissionais da área entenderem como os tecidos humanos respondem à radiação.

Diferentes partes do corpo variam enormemente em suas reações, e a intensidade da dose necessária para causar danos depende se a mesma é dada de uma única vez ou aos poucos.

Certamente, se a dose é alta o bastante, a pessoa irradiada morrerá. Geralmente, doses muito altas, 100Gy ou mais, causam danos ao sistema nervoso central e a morte pode ocorrer dentro de horas ou dias. Doses entre 10-50 Gy no corpo inteiro levam à morte entre 1 e 2 semanas devido a danos gastro intestinais <sup>(62)</sup>.

Doses mais baixas, entre 3-5 Gy, podem causar morte após 1 ou 2 meses, principalmente se o dano for causado à medula óssea vermelha. A medula pode ser afetada inclusive por doses menores que 1Gy. Porém, se o corpo todo não sofrer a exposição, pode ocorrer uma regeneração da medula óssea permitindo a recuperação <sup>(62)</sup>.

Um dos objetivos mais importantes da Agencia Internacional de Energia Atômica (IAEA) é a revisão e investigação da radiação relacionada a acidentes, visando alcançar o uso seguro da radiação <sup>(34)</sup>.

Embora o acidente mais proeminente dos últimos anos tenha sido o acidente com o reator nuclear de Chernobyl em 1986, um grande número de acidentes relacionados à radiação em radiografia industrial, radioterapia, instalações de irradiação e pesquisa ocorreram ao longo dos anos.

### **3.3.2 Dosímetros de Acidente**

Diferentes materiais têm sido estudados para aplicação na dosimetria de acidente. Devem ser materiais encontrados próximos ao local do acidente de fácil obtenção e comuns à uma grande parte da população local.

Um material que vêm sendo amplamente estudado é a hidroxiapatita biológica ou esmalte dentário, bem como as amostras de hidroxiapatita sintética <sup>(70)</sup>.

Um dos materiais também utilizado é o quartzo, cuja composição química é  $\text{SiO}_2$ , ou seja, dois átomos de oxigênio para cada átomo de silício. Pode ser encontrado em amostras de tijolos e telhas. Por apresentar propriedades termoluminescentes bastante importantes, o quartzo pode ser usado também no processo de datação arqueológica, uma vez que ele é encontrado sob a forma de microcristais em vasos cerâmicos <sup>(49,55,60)</sup>.

O cabelo mostra grande aplicabilidade na dosimetria de acidente, porém as amostras apresentam uma considerável variabilidade e uma complexidade no sinal, criando assim uma dificuldade na determinação da dose <sup>(18,76)</sup>.

O carbonato de cálcio extraído da casca de ovos de galinha,  $\text{CaCO}_3$ , tem aplicabilidade na dosimetria de acidentes. No qual é retirado apenas a película protetora interna, que é constituída de proteínas <sup>(18)</sup>.

A sacarose e o destrosol, que são dois tipos de açúcares, também podem ser utilizados como dosímetros de acidente, sem necessidade de receberem nenhum tipo de tratamento preliminar, porque medidas de RPE mostram que as amostras apresentam um sinal nativo muito baixo <sup>(18,76)</sup>.

### **3.3.3 Técnicas dosimétricas aplicadas em situações de acidente**

O efeito da radiação ionizante em muitos materiais cristalinos é produzir elétrons livres que podem ser armadilhados na rede cristalina. O tempo de vida nessas armadilhas pode ser longo, permitindo um registro dos efeitos da radiação.

A maioria das moléculas orgânicas contém um número par de elétrons e, portanto, são diamagnéticas, visto que o momento magnético líquido resultante dos spins é zero. O momento magnético de cada par de elétrons de valência envolvidos na formação de ligações também é zero, pois as ligações covalentes são formadas por elétrons de spins opostos. O efeito das radiações ionizantes é quebrar essas

ligações em duas partes paramagnéticas com um elétron desemparelhado em cada uma.

Os produtos dessas quebras são chamados radicais livres, que é um efeito biologicamente importante e quantitativamente acessível em substâncias orgânicas <sup>(24,58,59,76)</sup>.

Nos acidentes, a dosimetria retrospectiva é conduzida usando uma variedade de técnicas.

As técnicas dosimétricas físicas baseiam-se na medida da concentração de radicais livres. Qualquer decaimento ou transformação de radicais entre o momento de irradiação e a leitura afetam o resultado final. Para uma avaliação qualitativa, a estabilidade desses radicais é uma característica importante.

A estabilidade dos radicais depende da vizinhança molecular, especialmente da estrutura do cristal, e da temperatura.

Em soluções ou materiais orgânicos aquosos, o tempo de vida dos elétrons desemparelhados é muito pequeno. Em certos materiais cristalinos, eles podem existir por muitos anos. No estado sólido e em temperaturas baixas os radicais formados são relativamente estáveis <sup>(69)</sup>.

Em primeira interação um radical pode recombinar com outro, mas existem imperfeições na rede cristalina que impedem seu trajeto. Porém, em temperaturas mais elevadas, a difusão nos sólidos é mais rápida e o tempo de vida do radical é menor.

Como as irradiações ocorrem entre 273 e 300 K, as desexcitações de moléculas, os processos de conversão e as transformações de radicais primários ocorrem dentro de uma escala de tempo da ordem de micro segundos <sup>(69)</sup>.

Em moléculas grandes, por exemplo, os radicais que são observados após a irradiação são freqüentemente produtos de uma grande cadeia de eventos, e não são necessariamente os produtos imediatos da interação entre a partícula ionizante e o meio.



A dosimetria de acidente usando sistemas biológicos nos quais a quantificação das aberrações cromossômicas ou taxas entre diferentes proteínas do sangue podem dar uma indicação da exposição é dificultada pelas características da vítima (ex.: saúde geral, dieta, etc.) e pela complexidade das técnicas. Estes problemas podem ser evitados adotando uma aproximação mais física <sup>(34)</sup>.

A termoluminescência (TL)<sup>(22,60)</sup> bem como a ressonância paramagnética eletrônica (RPE)<sup>(6,19,21,36,65)</sup> foram previamente utilizadas para analisar elétrons aprisionados em tecidos calcificados. A avaliação da dose usando diferentes técnicas pode discordar por um fator de 2-5 <sup>(32)</sup>.

Na termoluminescência, o aquecimento do material permite que alguns elétrons previamente aprisionados retornem aos níveis de energia mais baixos com a liberação de energia na forma de luz. Sob condições controladas é possível relacionar a quantidade de luz liberada com a dose absorvida pelo material.

Contudo, para ossos e dentes há problemas associados com a termoluminescência por causa da composição orgânica desses materiais, problemas que não ocorrem com a ressonância paramagnética eletrônica.

A ressonância paramagnética eletrônica detecta elétrons desemparelhados armadilhados na rede cristalina.

A aplicação da técnica RPE para medidas da dose absorvida tem progredido recentemente em vários campos de aplicação tais como a dosimetria de acidente <sup>(3,17,27,34)</sup>, a avaliação da dose absorvida durante a explosão da bomba atômica <sup>(2,37,75)</sup>, a microdosimetria <sup>(34)</sup>, a datação <sup>(31)</sup> de materiais arqueológicos e geológicos e a detecção de materiais irradiados.

### **3.3.4 Incertezas**

Para um sistema dosimétrico específico, alguns fatores afetam a detecção e a precisão dos dosímetros e, desta maneira, contribuem para incertezas na medida da dose absorvida.

Em virtude de uma diversidade enorme de tipos de dosímetros, que abrangem um grande número de aplicações, não é possível quantificar potenciais incertezas para cada tipo específico de dosímetro, em geral os possíveis fatores que influenciam a detecção precisa da radiação são <sup>(7)</sup>:

- Variação na resposta de um grupo de dosímetros irradiados com o mesmo nível de dose.
- Variação na espessura ou massa de cada dosímetro.
- Análise da instrumentação do sistema dosimétrico (ex: variação na leitura, comprimento de onda, etc).
- Reprodutibilidade da dose absorvida.
- Correção do decaimento da fonte de radiação.
- Estabilidade de resposta do dosímetro.

Um material para ser utilizado com sucesso na dosimetria das radiações deve ter propriedades dosimétricas que são consideradas fundamentais, tais como, linearidade, a estabilidade e a reprodutibilidade da resposta.

**Linearidade:** o dosímetro deve apresentar uma sensibilidade adequada em um determinado intervalo de dose absorvida, fornecendo uma resposta linear dentro de limites estabelecidos, facilitando os cálculos e a interpretação dos resultados.

**Reprodutibilidade:** está relacionada com os processos de precisão e exatidão, pois, precisão é o quanto uma medida é reprodutível, ou seja, esta relacionada com a concordância das medidas entre si. Exatidão esta relacionada com a medida mais próxima verdadeira, isto é, o valor esperado.

Um material para ser utilizado como dosímetro deve ser de baixo custo, de fácil obtenção, simples manuseio e propriedades de absorção semelhantes aos produtos irradiados.

### **3.4 Classificação de dosímetros**

#### **3.4.1 Dosímetros primários ou de referência:**

São aqueles capazes de medir a dose absorvida diretamente ou uma grandeza física que possa ser associada com a dose absorvida, sem a necessidade de ser calibrado em feixes de radiação conhecidos. Tem a mais alta qualidade metrológica e são reconhecidos como tais pelas autoridades nacionais e internacionais.

**3.4.2 Dosímetro padrão de referência:** São dosímetros de qualidade metrológica alta que fazem parte do acervo da instalação de irradiação, e são coincidentes com os padrões primários nacionais (calibrados por dosímetros primários em laboratório de padronização internacional).

**3.4.3 Dosímetro de campo ou de transferência:** São dosímetros suficientemente precisos e são calibrados por um dosímetro de referência. Podem ser usados para calibrar a resposta característica dos dosímetros de rotina. São também usados como **dosímetros secundários**.

**3.4.4 Dosímetros de rotina:** São sistemas padronizados, usados de forma rotineira nas unidades de irradiação. Estes dosímetros devem ser freqüentemente calibrados por dosímetros de transferência. São usados para a monitoração das irradiações, garantindo a qualidade.

**3.4.5 Dosímetros terciários:** São os que fornecem uma estimativa de dose absorvida. São classificados como terciários os corantes químicos que mudam de cor quando são irradiados ou com o aumento de dose.

### 3.5 RESSONÂNCIA PARAMAGNÉTICA ELETRÔNICA (RPE)

Este método analítico, que foi descoberto em 1945 por Y.K. Zavoisky, tem sido muito utilizado por apresentar vantagens em relação a outros métodos. É comumente usado em processos envolvendo radiações ionizantes tais como: dosimetria das radiações com alanina; controle da irradiação de alimentos; datação arqueológica e geológica; dosimetria de acidentes e dosimetria de irradiação industrial<sup>(51,65,79)</sup>.

A técnica de ressonância paramagnética eletrônica detecta elétrons desemparelhados armadilhados na rede cristalina. Os elétrons armadilhados são medidos por espectroscopia de absorção de microonda, e a intensidade do sinal RPE é proporcional à dose absorvida. A natureza não destrutiva da detecção de RPE permite o estudo de espécies armadilhadas em amostras biológicas<sup>(34)</sup> tais como ossos<sup>(24)</sup>, dentes<sup>(63)</sup>, cabelos<sup>(41)</sup>. Os materiais inorgânicos mais utilizados são o  $\text{MgO:Mn}^{2+}$ , estalactites, estalagmites, corais, conchas, hidroxiapatita, minerais, quartzo e  $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}^{3+}$  (rubi), os orgânicos são os aminoácidos e os açúcares.

As vantagens que esta técnica apresenta são: informação cumulativa com a dose; leitura não destrutiva; alta sensibilidade; facilidade de manuseio boa reprodutibilidade; pequeno decaimento do sinal; grande intervalo de linearidade; pequena dependência energética; permite o uso de materiais orgânicos, uma vez que a medida é feita em temperatura ambiente ou do nitrogênio líquido.

Como desvantagens pode-se citar o alto custo do equipamento de ressonância paramagnética eletrônica e o fato dos materiais orgânicos não poderem ser reutilizados, uma vez que não podem sofrer tratamento térmico a temperaturas altas para eliminar o sinal.

### 3.5.1 Princípios do método

As substâncias que apresentam paramagnetismo são aquelas que contém elétrons cujos momentos magnéticos não estão cancelados, isto é, os átomos, íons ou moléculas que contém um número ímpar de elétrons, portanto, estão desemparelhados <sup>(19,65)</sup>.

Quando uma amostra é colocada em um campo magnético, a absorção ressonante de microondas em tal sistema é chamada RPE, e os elétrons desemparelhados são convenientemente detectados por esta técnica. As moléculas e os átomos apresentam estados distintos, cada um com uma energia correspondente. Com a técnica de espectroscopia com RPE é possível medir e interpretar as diferenças de energia entre os estados atômicos e moleculares <sup>(19,65,79)</sup>.

As propriedades fundamentais de um elétron são massa, carga, momento angular intrínseco e momento magnético. O momento angular intrínseco é também conhecido como spin e é representado pelo símbolo  $S$ .

O momento magnético de um elétron tendo spin  $S$  é expresso por:

$$\vec{\mu} = -g \cdot \beta \cdot \vec{S} = \gamma \cdot \hbar \cdot \vec{S} \quad (10)$$

onde  $\beta = e\hbar/2.m.c$  é o magnéton de Bohr cujo valor é  $0,927320 \times 10^{20}$  erg/gauss,  $\gamma = e/2.m.c$  é a razão giromagnética,  $\hbar$  é a constante de Planck, e  $g$  é o fator de desdobramento espectroscópico, que é igual a 2,002319 para um elétron livre.

As diferenças de energia são predominantemente causadas pela interação dos elétrons desemparelhados com o campo magnético produzidas pelo magnéton no laboratório, este efeito é chamado de efeito Zeeman.

Ao aplicar um campo magnético  $\vec{H}_0$ , os spins se quantificam tomando os valores possíveis:  $m_z = 1/2$  e  $m_z = -1/2$ , isto é, se alinham paralelos ou antiparalelos ao campo aplicado <sup>(1,14,19,78)</sup>.

Nas interações entre o elétron e o campo magnético a energia que aparece é dada pela *Hamiltoniana*:

$$H = -\vec{\mu} \cdot \vec{H}_0 \quad (11)$$

Os elétrons em um campo magnético podem ter duas energias, como mostram as equações 12 e 13 e a figura 2 <sup>(19,37,53)</sup>:

$$E_+ = +1/2 \cdot g \cdot \beta \cdot H_0 \quad \text{para } m_z = 1/2 \quad (12)$$

$$E_- = -1/2 \cdot g \cdot \beta \cdot H_0 \quad \text{para } m_z = -1/2 \quad (13)$$

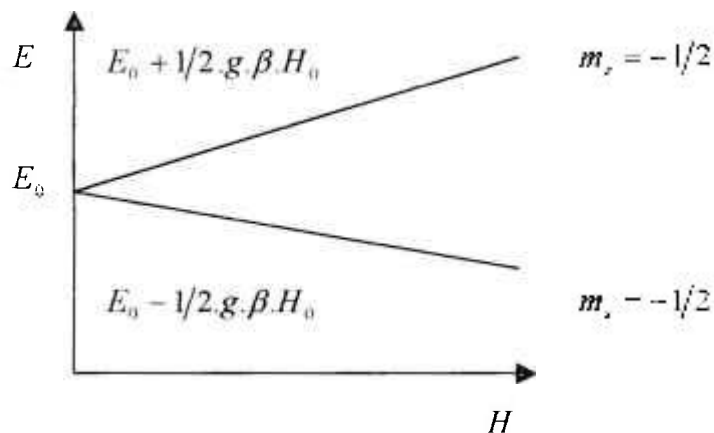


Figura 2 - Efeito de um campo magnético sobre a energia de um elétron desemparelhado <sup>(65)</sup>.

A aplicação de um campo magnético cria dois níveis de energia, e transições de um nível para outro podem ser induzidas se a diferença de energia  $\Delta E = g \cdot \beta \cdot H_0$  é fornecida ao sistema. Dois métodos podem ser aplicados ao espectrômetro: um com campo magnético constante variando a frequência da radiação eletromagnética (microondas) e outro mantendo a frequência da radiação eletromagnética constante e variando o campo magnético, este último método é o que apresenta melhor desempenho. Um pico na absorção ocorrerá quando o campo magnético ajustar os dois níveis de spin e quando a diferença de energia igualar à energia da radiação. Este campo é chamado de campo de ressonância. A absorção de energia é normalmente registrada como a primeira derivada da curva de absorção por causa do próprio sistema de detecção do sinal.

As formas da curva de absorção e de sua primeira derivadas são mostradas nas figuras 3-(a) e 3-(b).

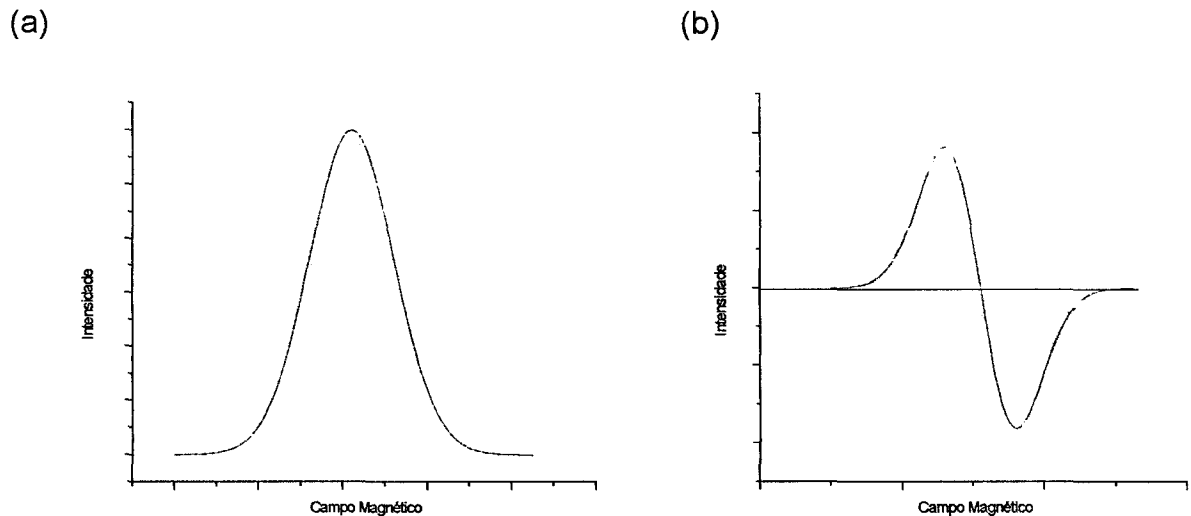


Figura 3 - (a) Pico de absorção típico

(b) 1ª derivada do pico de absorção típico<sup>(65)</sup>.

### 3.5.2 Interação spin-rede

A aplicação de um campo magnético oscilante produz transições entre os níveis mostrados na figura 2. Ocorre absorção de energia quando o elétron desemparelhado é promovido de um nível inferior para um superior, ou então, ocorre emissão de energia quando a transição ocorre do nível superior para o nível inferior. A absorção ocorre pelo fato que, no equilíbrio térmico existe um número maior de spins no nível inferior. Essa relação é dada pelo fator de Boltzmann,  $e^{(-g \cdot \beta \cdot H / k \cdot T)}$ . À temperatura ambiente e um campo de 3000 G o valor é igual a 1,001. Como ocorre mais absorção de energia do que emissão pode-se então pensar que, em certo momento, isto levaria a cessar as absorções, quando ocorresse a transição de todos os elétrons. O que acontece é que os spins estão em contato com reservatórios térmicos na sua vizinhança (rede cristalina) o que tende a manter a diferença na população.

A diferença de população  $n$  pode ser expressa de forma quantitativa do seguinte modo:

$$n = N \downarrow - N \uparrow \quad (14)$$

onde  $N \downarrow$  e  $N \uparrow$  são os números de elétrons com spin de nível inferior e superior, respectivamente.

A taxa de transição da diferença da população  $n$  é dada pelo campo de microondas e pela rede:

$$\frac{dn}{dt} = \left. \frac{dn}{dt} \right|_{\text{microonda}} + \left. \frac{dn}{dt} \right|_{\text{rede}} \quad (15)$$

Se  $P(\downarrow \uparrow)$  é a probabilidade de que as microondas induzam transições do nível superior para o inferior, a teoria da perturbação mostra que  $P(\uparrow \downarrow) = P(\downarrow \uparrow) = P$ , então:

$$\left. \frac{dn}{dt} \right|_{\text{microonda}} = -2Pn \quad (16)$$

O equilíbrio térmico produzido é dado na equação 19 e a velocidade com que a rede restaura a diferença na população é dada pela força de acoplamento do spin à rede. Este acoplamento é descrito pelo tempo de relaxação "spin-rede"  $T_1$ .

$$\left. \frac{dn}{dt} \right|_{\text{rede}} = (n_0 - n) \frac{1}{T_1} \quad (17)$$

A taxa total de variação é: 
$$\frac{dn}{dt} = -2.P.n + (n_0 - n) \frac{1}{T_1} \quad (18)$$

Para a situação de equilíbrio  $\frac{dn}{dt} = 0$  então:

$$n = n_0 \frac{1}{1 + 2.P.T_1} \quad (19)$$



Quando ocorrem transições com taxas muito superiores a  $1/T_1$ , isto é,  $P \gg 1/T_1$ , ocorre a saturação e a população dos dois níveis tende a ser exatamente igual. Em RPE este efeito é chamado de “saturação de microondas” e pode ser evitado pela redução da potência de microonda incidente.

Visto que o sinal RPE, ou seja, a potência absorvida do campo de microonda é proporcional a  $n$ , grandes erros podem ser cometidos quando se deseja estimar o número de centros paramagnéticos trabalhando sob condições de saturação. Assim, o aumento da potência de microonda para elevar a sensibilidade é limitada pela saturação do sinal.

### 3.5.3 Tratamento clássico da RPE

Os fenômenos da ressonância paramagnética podem ser mostrados por equações clássicas. Nos elétrons livres independentes que possuem um momento magnético  $\vec{\mu}$  quando estão na ausência de um campo magnético  $\vec{H}_0$  os spins estão orientados aleatoriamente, mas tenderão a se orientarem na direção de um campo magnético aplicado, por exemplo, se for a direção z, eles tenderão a um alinhamento nessa direção, precessionando em torno do eixo z com uma frequência característica  $\omega_0$  (frequência de Larmor), como mostrado na figura 4.

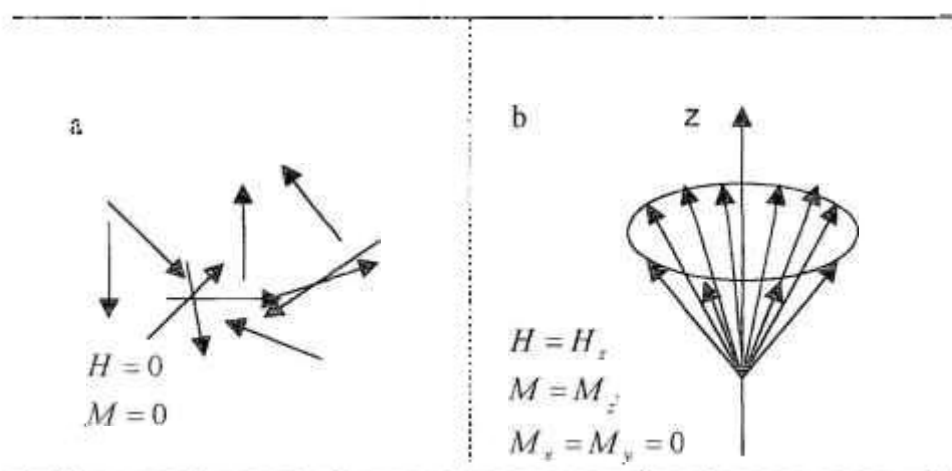


Figura 4 - (a) Orientação aleatória dos spins na ausência de campo magnético. (b) Precessão dos spins em torno do eixo z quando é aplicado um campo magnético <sup>(78,65)</sup>.

A interação de  $\vec{\mu}$  com  $\vec{H}_0$  resulta em um torque  $\vec{\tau}$ , que atua para produzir uma mudança no momento angular de spin e é dado por <sup>(19,65,78)</sup>:

$$\vec{\tau} = \vec{\mu} \times \vec{H}_0 \quad (20)$$

A equação do movimento para um elétron em um campo magnético é dada por:

$$\frac{d\vec{S}}{dt} = \vec{\tau} \quad (21)$$

Em um sistema fixo de laboratório:  $\frac{d\vec{\mu}}{dt} = \gamma\vec{\mu} \times \vec{H}_0$  (22)

Quando se tem  $N$  dipolos por unidade de volume, a magnetização  $\vec{M}$  que é o momento magnético por unidade de volume, é dada simplificada por :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = \vec{M} \times \vec{H}_0 \quad (23)$$

A magnetização tem movimento de precessão com velocidade angular constante  $\omega_0 = \gamma\vec{H}_0$ , como mostra a figura 5. Visto que  $\alpha$  é constante, a energia do sistema permanece inalterada, ou seja, não existe absorção de energia neste processo.

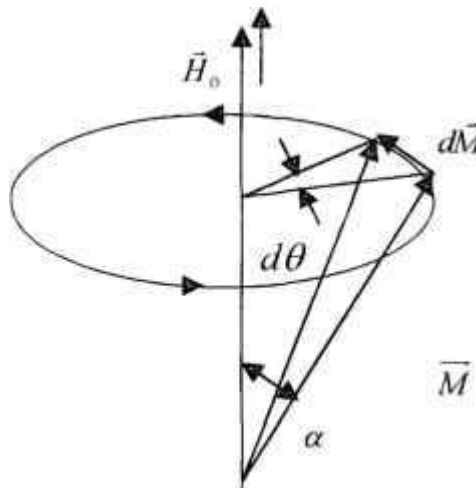


Figura 5 - Precessão do momento magnético  $\vec{M}$  em um campo magnético <sup>(65,78)</sup>.

Mudando o ângulo  $\alpha$ , isto é, inclinando a magnetização, a absorção pode ocorrer. Para tanto, aplica-se um campo magnético alternado na frequência de Larmor e perpendicular ao campo externo  $\vec{H}_0$ . Este campo em sincronismo com a precessão da magnetização produzirá um torque  $\vec{M} \times \vec{H}_0$  que tenderá a mudar o ângulo  $\alpha$ .

Quando a magnetização for girada em  $180^\circ$  o processo de absorção não mais poderá continuar, pois, o ângulo  $\alpha$  começará a diminuir. Para continuar a absorção é necessário que a magnetização interaja com o ambiente externo.

Quando se inclina a magnetização, o valor de sua componente  $M_z$  sai do valor de equilíbrio  $M_0$  (equivalente a mudança nas populações  $N \downarrow$  e  $N \uparrow$ ). O valor de equilíbrio da componente de  $z$  da magnetização tenderá a ser restaurado pela rede com uma taxa proporcional a  $1/T_1$ ,  $T_1$  é chamado de tempo de relaxação spin-rede.

As componentes  $x$  e  $y$  da magnetização são zero no equilíbrio térmico e decaem sem um acoplamento com a rede com um tempo  $T_2$  (tempo de relaxação spin – spin) que é um pouco menor que  $T_1$  <sup>(19,65,77)</sup>.

#### 3.5.4 Interação Hiperfina

Interação hiperfina é definida como a interação de um elétron desemparelhado com um núcleo magnético. Os dois tipos existentes são:

a) clássica - interação de dois dipolos  $\vec{\mu}_s$  e  $\vec{\mu}_I$  (núcleo) separados pela distância  $\vec{r}$ ; esta interação depende do ângulo entre a linha que une os dipolos e o campo magnético externo e é chamada de interação anisotrópica;

b) não clássica - se origina da probabilidade finita de encontrar elétron no núcleo; esta interação é isotrópica ou interação de Fermi, é representada por  $A \times \vec{I} \times \vec{S}$ , onde  $\vec{I}$  é o spin nuclear e A uma constante de acoplamento hiperfino, conforme mostra a figura 6.

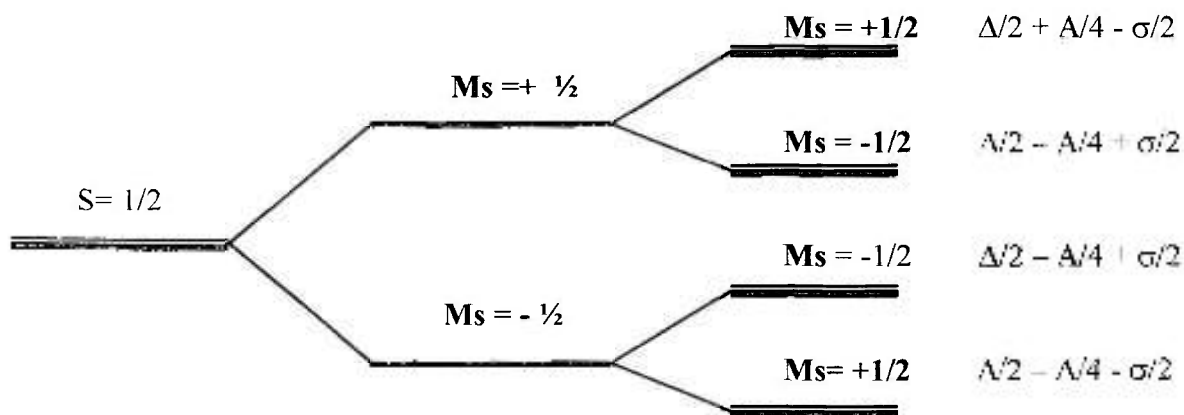


Figura 6. Níveis de energia para um sistema com  $S = \frac{1}{2}$   $I = \frac{1}{2}$  em um campo magnético,  $\sigma$  refere-se ao efeitos Zeeman nuclear <sup>(19)</sup>.

### 3.5.5 Princípio de funcionamento de um espectrômetro RPE

Um espectrômetro simples tem três componentes básicos: uma fonte de radiação eletromagnética, uma cavidade para a amostra, e um detector.

A cavidade da amostra está localizada entre os pólos de um magnéton. Para poder obter um espectro varia-se a frequência da radiação eletromagnética e mantém-se constante o campo magnético  $B_0$ .

Nos espectrômetros, a microonda gerada através de um oscilador, o qual pode ser uma válvula Klystron ou um diodo Gunn, é conduzida através de um guia de onda até a cavidade no campo magnético estático produzido por um eletroímã.

A amostra é inserida na cavidade na posição de máxima intensidade de  $B_0$ . Devido o uso de cabos de guias de onda e cabos coaxiais, a frequência de microondas é mantida fixa e o campo magnético do eletroímã é variado a fim de registrar o espectro. A amostra é colocada na cavidade de microondas, que é uma caixa metálica que amplifica o sinal na amostra.

A amostra é posicionada onde  $B_0$  é máximo de acordo com as linhas de indução do campo magnético. Há um magnétron posicionado dos lados da cavidade para sintonizar os níveis de energia eletrônica. Um computador é usado para analisar os dados e coordenar todos os parâmetros para a aquisição do espectro. A figura 7 mostra os componentes básicos de um espectrômetro RPE.

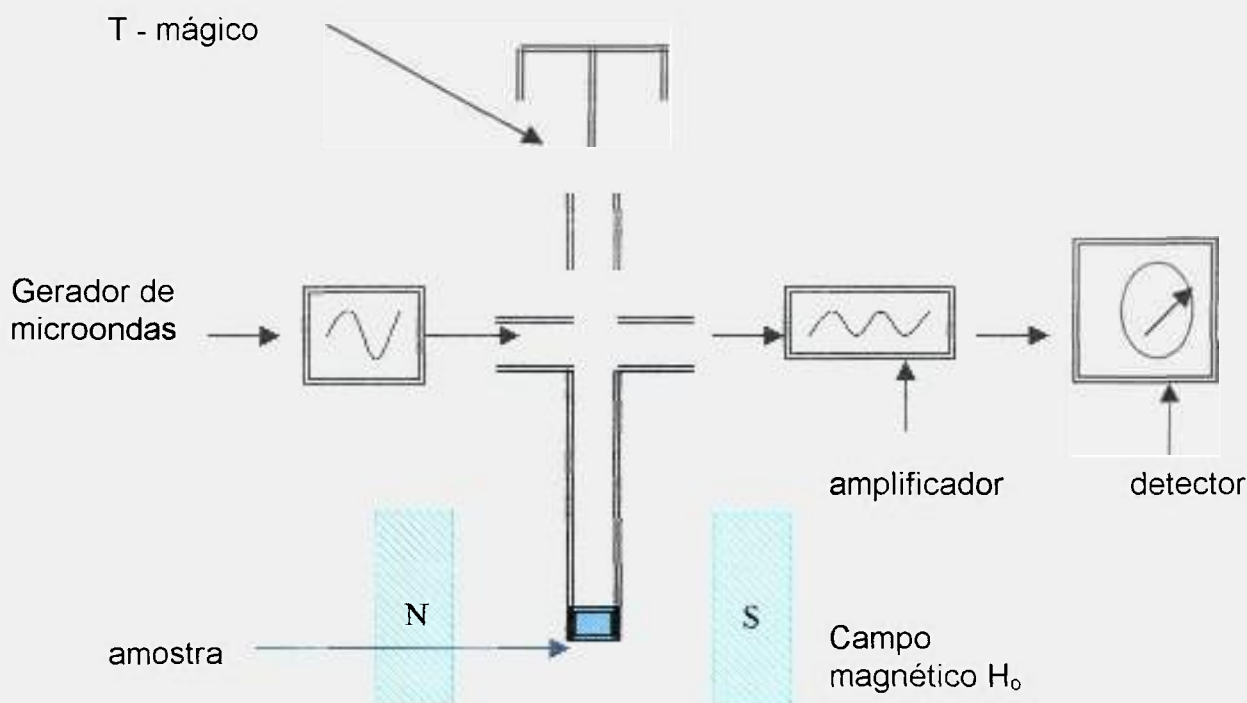


Figura 7. Componentes básicos de um espectrômetro RPE.

### 3.5.6 Fator de desdobramento espectroscópico ou fator “g”

É definido pela condição de ressonância  $\Delta E = g \beta H$ , onde  $g$  expressa a proporcionalidade entre o campo magnético e a diferença de energia entre os níveis <sup>(67)</sup>.

A posição e o número de linhas de absorção paramagnética dependem de interações internas da substância paramagnética. O valor do fator  $g$ , para partículas de  $\text{spin} = \frac{1}{2}$  está em torno de 2,0.

### **3.5.7 Amostra padrão**

As amostras padrão são úteis para testes de desempenho dos sistemas, calibração do espectrômetro e medidas qualitativas de concentração. A amostra padrão deve conter espécies paramagnéticas estáveis de longa vida, e ser facilmente preparada com métodos estáveis e controlados. Deve-se respeitar os fatores de leitura tais como: tempo de relaxação e divisão da estrutura fina e hiperfina.

Para calibrar a fase e a amplitude de modulação do campo do espectrômetro de RPE, foi utilizado um padrão de  $MgO:Mn^{2+}$ , que foi também utilizado nas medidas.

### **3.5.8 Materiais utilizados como dosímetros RPE**

#### **3.5.8.1 Aminoácidos**

Os aminoácidos são os materiais mais empregados na aplicação da técnica de RPE, por suas propriedades dosimétricas, baixo custo, facilidade de obtenção e número atômico efetivo próximo do tecido.

O aminoácido mais estudado pela técnica de RPE é a alanina, e o dosímetro de alanina/RPE é considerado padrão secundário na dosimetria de doses altas.

Aminoácidos são compostos orgânicos que apresentam simultaneamente um grupo amina ( $NH_2$ ) e um grupo carboxílico ( $COOH$ ). Quando o grupo funcional amina estiver ligado ao primeiro carbono vizinho ao da carboxila, o aminoácido é denominado alfa-aminoácido. Assim, há também os beta-aminoácidos e os gama-aminoácidos, como mostra a tabela 2 <sup>(5,16,54)</sup>.

Tabela 2 - Classificação dos aminoácidos de acordo com a posição do grupo funcional amina.

Alfa-aminoácidos	Beta-aminoácidos	Gama-aminoácidos
$  \begin{array}{c}  H \\    \\  R - C - COOH \\    \\  NH_2  \end{array}  $	$  \begin{array}{c}  H \quad H \\    \quad   \\  R - C - C - COOH \\    \quad   \\  NH_2 \quad H  \end{array}  $	$  \begin{array}{c}  H \quad H \quad H \\    \quad   \quad   \\  R - C - C - C - COOH \\    \quad   \quad   \\  NH_2 \quad H \quad H  \end{array}  $

Os aminoácidos mais encontrados e também os mais importantes são os alfa-aminoácidos.

Aminoácidos com mesmo número de grupos amina e carboxílico são denominados aminoácidos neutros. Os que apresentam maior número de grupo amina são denominados aminoácidos básicos e os com maior número de grupo carboxílico são os aminoácidos ácidos, conforme mostrados na tabela 3.

Tabela 3 - Classificação dos aminoácidos de acordo com a quantidade do grupo amina e grupo carboxílico presente na estrutura.

Neutros	Básicos	Ácidos
$  \begin{array}{c}  H_2C - COOH \\    \\  NH_2  \end{array}  $	$  \begin{array}{c}  H_2C - CH_2 - CH - COOH \\    \quad \quad \quad   \\  NH_2 \quad \quad \quad NH_2  \end{array}  $	$  \begin{array}{c}  HCOO - CH_2 - CH - COOH \\  \quad \quad \quad   \\  \quad \quad \quad NH_2  \end{array}  $

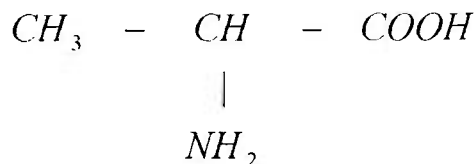
Os aminoácidos também são classificados como essenciais e não essenciais. Essenciais são aqueles que o organismo não consegue sintetizar a partir dos carboidratos, ou seja, eles têm de existir nos alimentos ingeridos. Não essenciais são os aminoácidos que o organismo consegue sintetizar.

### 3.5.8.2 Alanina

A utilização da alanina cristalina tem se mostrado um método versátil na dosimetria de radicais livres, considerando-se a produção por unidade de dose absorvida e o tempo de vida desses radicais <sup>(32)</sup>.

A alanina é disponível na forma de pó, é de fácil obtenção e apresenta custo baixo.

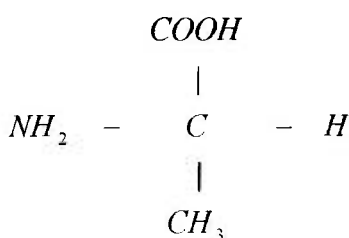
A alanina <sup>(14)</sup> é um aminoácido não essencial, alifático neutro do tipo:



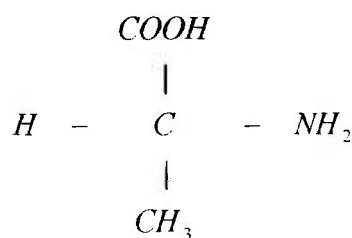
- **Fórmula molecular:** C<sub>3</sub> H<sub>7</sub> O<sub>2</sub> N
- **Fórmula centesimal:** C<sub>40,44%</sub> H<sub>7,92%</sub> O<sub>35,92%</sub> N<sub>15,72%</sub>

A fórmula centesimal indica os elementos constituintes da substância e a quantidade de cada elemento, em 100 g da substância.

- **Peso molecular:** 89,10 g/mol
- **Número atômico efetivo:** 6,79
- **Estruturas e designação dos estereoisômeros:**



**L (+) alanina**



**D (-) alanina**

A degradação da alanina, induzida pela radiação, provoca reações de deaminação e os principais produtos formados são: amônia, dióxido de carbono, aminas e ácidos <sup>(19)</sup>.



Entre os radicais formados pela deaminação da alanina, a espécie  $CH_3 - \dot{C}H - COOH$  é predominante à temperatura ambiente, e pode ser analisada e quantificada por RPE <sup>(19,77)</sup>.

A figura 8 mostra um espectro característico da alanina quando irradiada. A amplitude pico a pico indicada por **h** é a parte de interesse na dosimetria com a alanina.

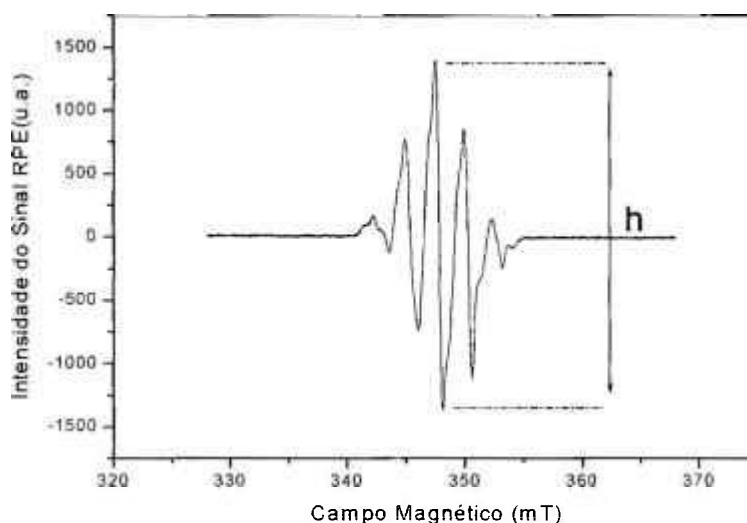


Figura 8. Espectro característico da alanina após irradiação.

Cada sinal apresentado consiste de alguns picos causados pela interação hiperfina do elétron desemparelhado com átomos de nitrogênio e hidrogênio. O radical predominante é causado pela ruptura de uma ligação  $C - H$  <sup>(19,68)</sup>.

Os dosímetros de alanina são usados em dosimetria de doses altas por apresentarem sensibilidade alta, número atômico efetivo próximo ao do tecido humano, fácil manuseio e boa reprodutibilidade <sup>(44,47)</sup>.

O sistema dosimétrico utilizando alanina contida em um material agregante pode ser considerado um sistema confiável para medidas de dose absorvida em processos de irradiação industrial, e também está sendo utilizado para doses baixas <sup>(8)</sup>.

Na caracterização de materiais que apresentam propriedade RPE, é empregado como dosímetro padrão.

### 3.5.8.3 Tecidos calcificados (hidroxiapatita, dentes)

Os tecidos calcificados consistem de uma parte orgânica chamada colágeno e uma parte inorgânica, a apatita, cuja fórmula molecular é  $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{X})_2$ ; X = OH, F, Cl, Br.

A hidroxiapatita,  $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$ , é o constituinte mineral do osso natural representando de 30 a 70% da massa dos ossos e dentes, cuja fórmula molecular é  $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{X})_2$ ; X = OH, F, Cl, Br.

A fórmula da hidroxiapatita estequiométrica é  $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$ , com razão Ca/P igual a 1,67.

A radiação ionizante gera centros paramagnéticos tanto na parte orgânica quanto na parte mineral, cujas estruturas locais estão intimamente relacionadas com sua estabilidade.

Os defeitos na apatita mudam sua estrutura devido à substituição de íons por impurezas catiônicas e aniônicas<sup>(10,11,36,72)</sup>, constituindo assim um sistema aberto ao ambiente.

Nas carboapatitas sintéticas do tipo A, os íons carbonato localizam-se em canais e ocupam os mesmos sítios que os íons hidroxila. Nas carboapatitas do tipo B, os íons carbonato ocupam os sítios dos íons fosfatos. As carboapatitas do tipo B têm composição similar ao tecido ósseo e dentário<sup>(50)</sup>.

#### a) Estrutura da hidroxiapatita

A hidroxiapatita cristaliza-se no sistema hexagonal, grupo espacial  $P6_3/m$  e dimensões de célula unitária  $a=b=9,42 \text{ \AA}$  e  $c=6,88 \text{ \AA}$ <sup>(50)</sup>.

A célula unitária hexagonal da hidroxiapatita contém 10 íons cálcio localizados em sítios não equivalentes, quatro no sítio I ( $Ca_I$ ) e seis no sítio II ( $Ca_{II}$ ). Os íons cálcio no sítio I estão alinhados em colunas, enquanto os íons cálcio do sítio II estão em triângulos equiláteros perpendiculares à direção c da estrutura.

Os cátions do sítio I estão coordenados a 6 átomos de oxigênio pertencentes a diferentes tetraedros de  $PO_4$  e também a 3 outros átomos de oxigênio relativamente distantes. A existência de dois sítios de íons cálcio traz conseqüências importantes para as hidroxiapatitas que contém impurezas catiônicas, pois suas propriedades estruturais podem ser afetadas dependendo do sítio ocupado pelo cátion da impureza.

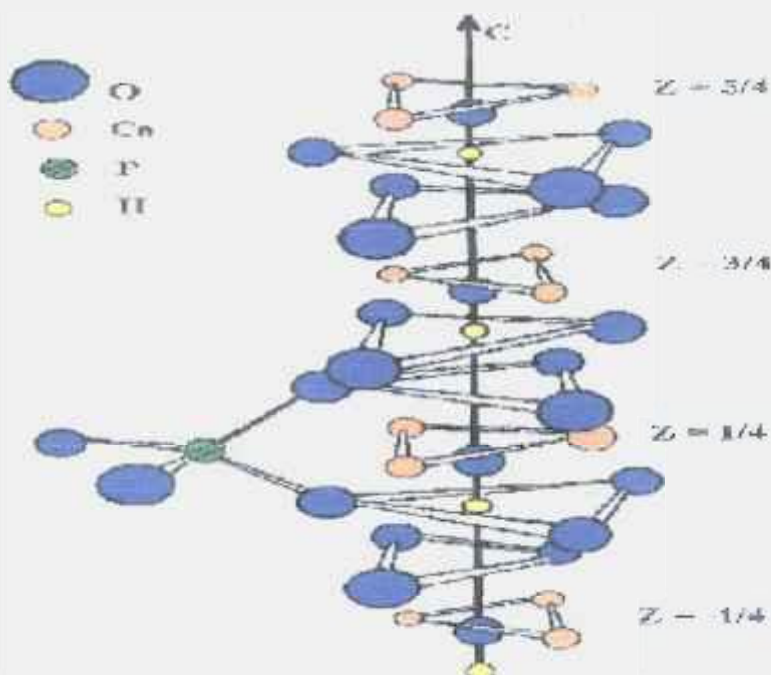


Figura 9. Estrutura da hidroxiapatita ao longo do eixo c.

Os átomos de cálcio e fósforo formam um arranjo hexagonal no plano perpendicular ao eixo cristalino de mais alta simetria (eixo c, figura 9). Colunas constituídas pelo empilhamento de triângulos equiláteros de íons óxidos ( $O^{2-}$ ) e de íons cálcio ( $Ca^{2+}$ ) estão ligados entre si por íons fosfato. Os átomos de oxigênio e os íons hidroxila estão situados a 0.9 Å abaixo do plano formado pelos triângulos de

cálcio e a ligação O-H forma um ângulo de aproximadamente 30° com a direção C (figura 9).

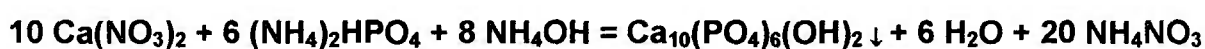
Dos quatro átomos de oxigênio que constituem os grupos fosfatos, dois estão situados em planos perpendiculares à direção c e os outros dois são paralelos a esta direção, como mostra a figura 9. Os tetraedros dos grupos PO<sub>4</sub> estão arranjados de tal forma que possibilitam a formação de dois tipos de canais perpendiculares ao plano basal. O primeiro canal com diâmetro de 2 Å é paralelo aos eixos ternários e são ocupados por átomos de Ca(I). Em cada célula unitária, encontram-se 2 canais ocupados por íons Ca(I) que estão localizados em z=0 e z=½ do parâmetro cristalino. O segundo canal que tem diâmetro de 3,0 a 3,5 Å, é constituído por íons Ca(II) e estão localizados em z= ¼ e z= ¾. No interior desses canais dá-se a distinção entre a forma hexagonal e a monoclinica. Na estrutura hexagonal o grupo hidroxila ocupa apenas 50% das posições estatisticamente possíveis.

Deformações na rede causadas pelo deslocamento das hidroxilas tornam a estrutura monoclinica, um arranjo mais fechado, com grupo espacial P2<sub>1</sub>/b. Exceto a posição do grupo OH, todas as outras posições atômicas na Ca<sub>10</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>6</sub>OH<sub>2</sub>, são essencialmente iguais como às da fluorapatita [Ca<sub>10</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>6</sub>F<sub>2</sub>].

A estrutura da hidroxiapatita permite substituições catiônicas e aniônicas isomorfas com grande facilidade <sup>(42)</sup>. O Ca<sup>2+</sup> pode ser substituído por metais tais como o Pb<sup>2+</sup>, Cd<sup>2+</sup>, Cu<sup>2+</sup>, Zn<sup>2+</sup>, Sr<sup>2+</sup>, Co<sup>2+</sup>, Fe<sup>2+</sup>, etc; os grupos fosfatos por carbonatos e vanadatos e as hidroxilas por carbonatos, flúor e cloro. Essas substituições podem alterar a cristalinidade, os parâmetros de rede, as dimensões dos cristais, a textura superficial, a estabilidade e a solubilidade da estrutura da hidroxiapatita.

### **b) Processo de síntese da hidroxiapatita**

A hidroxiapatita sinterizada é quase estequiométrica, com razão: [Ca<sup>2+</sup>]/[PO<sub>4</sub><sup>3-</sup>]= 1,65, sendo sinterizada em temperatura de 80 ° C <sup>(70)</sup>. O material precipitado por via úmida a partir da seguinte reação:



## 4 MATERIAIS E MÉTODOS

A parte experimental foi dividida em três etapas:

- 1) Seleção de diferentes amostras de dente, separação do esmalte e tratamento para retirada dos componentes orgânicos;
- 2) Parametrização do equipamento de medida e estudo dos parâmetros físicos envolvidos.
- 3) Estudo das propriedades dosimétricas: estabilidade do sinal devido à radiação de fundo, sensibilidade relativa, limites de detecção máximo e mínimo, influencia dos fatores externos, dependência energética do sinal com a dose, taxa de dose e energia da radiação incidente.

### 4.1 Hidroxiapatita sintética tipo B

As amostras de hidroxiapatita sintética <sup>(30,70)</sup> foram obtidas da Faculdade de Odontologia da USP. O material, na forma de pó, possui as seguintes características:

- Fórmula molecular:  $\text{Ca}_5\text{PO}_4\text{OH}$
- Peso molecular: 502,32 g/mol
- Numero atômico efetivo: 113
- Tamanho dos grãos: 80 –200  $\mu\text{m}$ .

Na hidroxiapatita tipo-B o espectro é composto basicamente dos sinais de espécies de  $\text{CO}_2^-$  isotrópica e ortorrômbica <sup>(50)</sup>.

## 4.2 Hidroxiapatita biológica (Esmalte dentário)

A hidroxiapatita natural (esmalte dentário), foi extraída de dentes os quais não puderam ser recuperados em tratamentos odontológicos, mas sem apresentar doenças como cáries, tártaro, etc.

Os dentes escolhidos foram os molares e os pré-molares <sup>(23,72)</sup>, pois são os que apresentam menor exposição à radiação UV natural e artificial <sup>(23)</sup>. Todos os dentes possuem históricos conhecidos, garantindo que não sofreram raios-X dentários, o que contribui para o crescimento do sinal nativo.

### 4.2.1 Preparação das amostras:

**a-) Separação mecânica:** o esmalte foi separado da dentina com o auxílio de uma broca dentária de 0,5mm. Durante todo o processo de separação o sistema foi resfriado com água, para evitar o aquecimento do esmalte, o que induz outros sinais espúrios <sup>(25)</sup>.

**b-) Separação dos componentes orgânicos:** as amostras foram submetidas a um banho ultra-sônico, em água destilada, por 4 horas, à uma potência de 50 W, e secas à temperatura ambiente por 4 horas <sup>(81)</sup>.

**c-) Obtenção do pó:** Com o auxílio de um almofariz, a camada de esmalte foi triturada, padronizando o tamanho dos grãos entre 80 – 200  $\mu\text{m}$ , para evitar a dependência do sinal anisotrópico RPE do esmalte dentário com o posicionamento da amostra na cavidade ressonante.

**d-) Preparo das amostras:** As amostras, na forma de pó, foram pesadas com o auxílio de uma balança analítica (Mettler -USA), com precisão de 0,001 com massa constante de 120 mg, e devidamente encapsuladas em tubo de polietileno especialmente desenvolvido para dosimetria RPE/alanina com dimensões de 2 mm de diâmetro interno e 30 mm de comprimento <sup>(29)</sup>. O tubo de polietileno não apresenta sinal RPE induzido, qualquer que seja a dose de radiação aplicada. Esse sistema denominado detector, facilita o manuseio das amostras e evita a perda de material.

**e-) Porta detector:** O porta-detector foi desenvolvido e produzido em polietileno de alta densidade. Este material apresenta boas propriedades para usinagem, não apresentando variações de dimensões e fornecendo um porta-detector com qualidade. As paredes possuem 4 mm de espessura, o que garante equilíbrio eletrônico para radiação gama do <sup>60</sup>Co. O comprimento do porta-detector foi determinado de acordo com o comprimento do detector, que é de 30 mm, adequado para a cavidade do espectrômetro RPE, conforme mostra a figura 10 <sup>(29)</sup>.

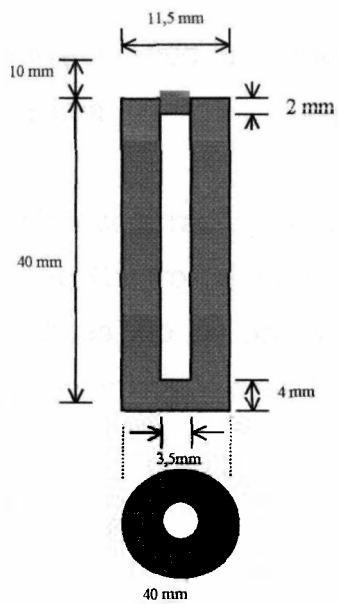
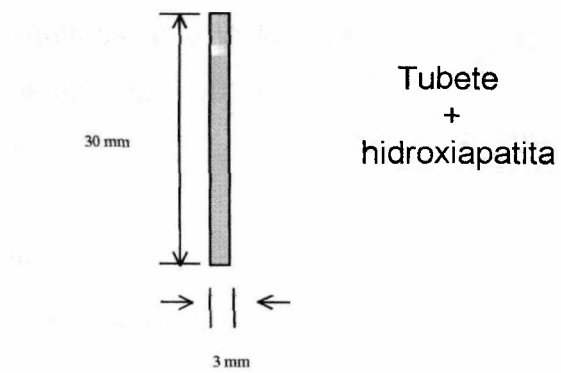


Figura 10. Conjunto detector + porta- detector (29)



### **4.3 Equipamentos Utilizados**

#### **4.3.1 Estufa**

Estufa elétrica cirúrgica para tratamento térmico, modelo 315SE, marca Fanem, com intervalo de temperatura entre 0 – 200 °C, usada para secagem dos tubos de polietileno.

#### **4.3.2 Balança Analítica**

Balança analítica, marca Mettler, modelo H35, com pesagem de 0-280 g, com intervalo de leitura de 0,001g, com certificado de calibração da Rede Suíça de Calibração de Instrumentos.

- Mykro Uaage
- nº de certificado: 4784-04
- data: Novembro/2004.

### **4.4 Sistemas de Irradiações das amostras:**

#### **4.4.1 Radiação Gama**

As irradiações com radiação gama foram realizadas utilizando 2 fontes de  $^{60}\text{Co}$ , pertencentes ao Centro de Tecnologia das Radiações do IPEN. As amostras foram sempre irradiadas, no ar, posicionadas a 40 cm da fonte, em condições de equilíbrio eletrônico. As taxas de dose foram determinadas por dosimetria Fricke.

##### **a-) Fonte de $^{60}\text{Co}$ - Tipo Panorâmica**

- ◆ Fabricante: YOSHIZAWA KIKO Co, Ltda. (Japão).
- ◆ Mesa suporte 15 x 15 cm
- ◆ Fonte: Cobalto metálico, encapsulado em aço inoxidável em forma de lápis, diâmetro de 1,2 cm e comprimento de 20 cm.
- ◆ Taxa de dose: 54,6 Gy/h à 40cm da fonte em Novembro de 2004.
- ◆ Atividade em Novembro de 2004: (32,62 TBq).
- ◆ A incerteza na dose de radiação:  $\pm 1,7 \%$ .

A figura 11 mostra um esquema da mesa para posicionamento da posição de irradiação, as marcações indicam as posições de irradiação, que estão relacionadas com as taxas de dose.

Neste trabalho os dosímetros foram irradiados nas posições de 10, 20, 30, 40 e 50 cm atrás da fonte e em 20 e 40 cm na frente da fonte, para verificação da dependência da resposta com a taxa de dose, conforme mostra a tabela 4.

Para os demais testes foi utilizada a posição de 40 cm atrás da fonte. Em todas as irradiações, os dosímetros foram posicionados a 10 cm de altura em relação à mesa de irradiação, o que corresponde ao centro geométrico da fonte, por meio de um suporte de madeira.

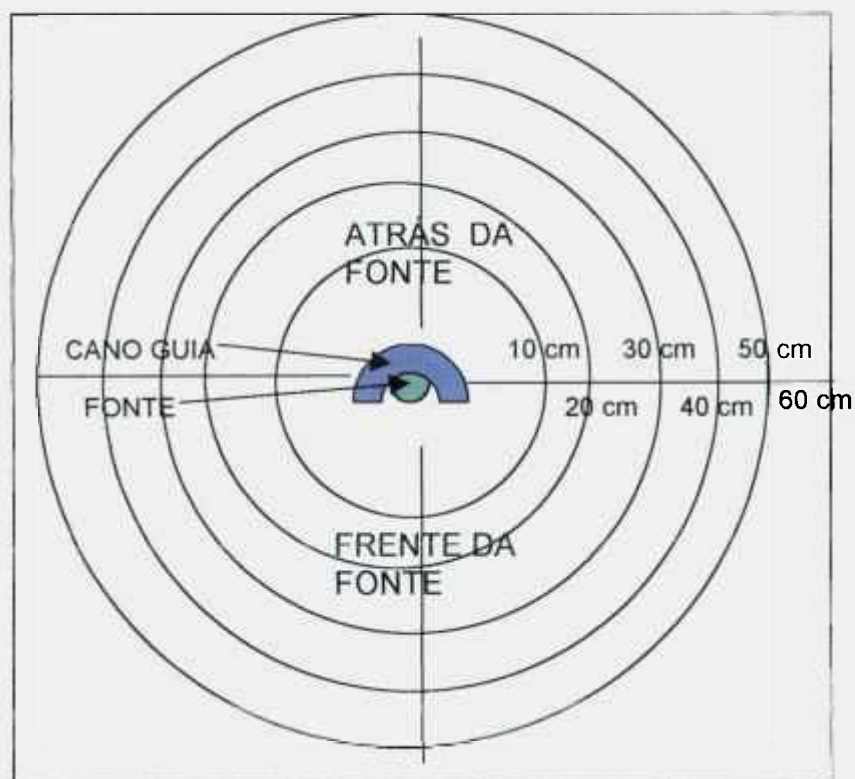


Figura 11. Esquema de posicionamento da fonte Panorâmica.

Tabela 4. Posições de irradiação com as respectivas taxas de dose.

Posição (cm)	Taxa de dose (kGy/h)
10 atrás	0,508
20 atrás	0,275
30 atrás	0,152
40 atrás	0,096
50 atrás	0,065
20 frente	0,304
40 frente	0,111

#### b-) Fonte de $^{60}\text{Co}$ - Tipo Câmara ( Gammacell)

- ◆ Fabricante: Atomic Energy of Canada Ltda.
- ◆ Fonte: 26 lápis colocados simetricamente, cada um contendo 7 pastilhas de Cobalto.
- ◆ Taxa de dose: 3,97 kGy/h à 40 cm da fonte em Novembro de 2004.
- ◆ Atividade em Novembro de 2004: (177,67 TBq).
- ◆ A incerteza na dose de radiação:  $\pm 1,7\%$ .

#### 4.4.2 Aparelho de Raios-X

As irradiações com raios-X foram realizadas empregando uma máquina Rigaku, modelo Geigerflex, pertencente ao Laboratório de Calibração e Instrumentos do IPEN, a uma distância de 50 cm da fonte, no ar, com energias efetivas de 14,3, 17,7 e 21,2 keV e taxas de dose respectivamente iguais à: 350,4 mGy/h, 438 mGy/h e 554,5 mGy/h. A incerteza na dose é de  $\pm 2\%$ . As condições de irradiação, segundo Norma NPL (National Physical Laboratory) (\*), são apresentadas na tabela 5. A figura 12 apresenta os espectros NPL das energias empregadas.

---

(\*) Certificate of Calibration of an x-rays exposure meter. Middles Ex, Jan.16,1980.

Tabela 5. Parâmetros de irradiação com raios-X segundo a norma NPL.

Corrente (mA)	Tensão (kV)	Filtros (mm Al)	Energia Efetiva (keV)	1° CSR (mm Al)	2°CSR (mm Al)	Coef. Hom.
30	25	0,44	14,3	0,25	0,34	0,68
30	40	0,68	17,7	0,53	0,81	0,59
25	50	1,02	21,2	0,89	1,40	0,58

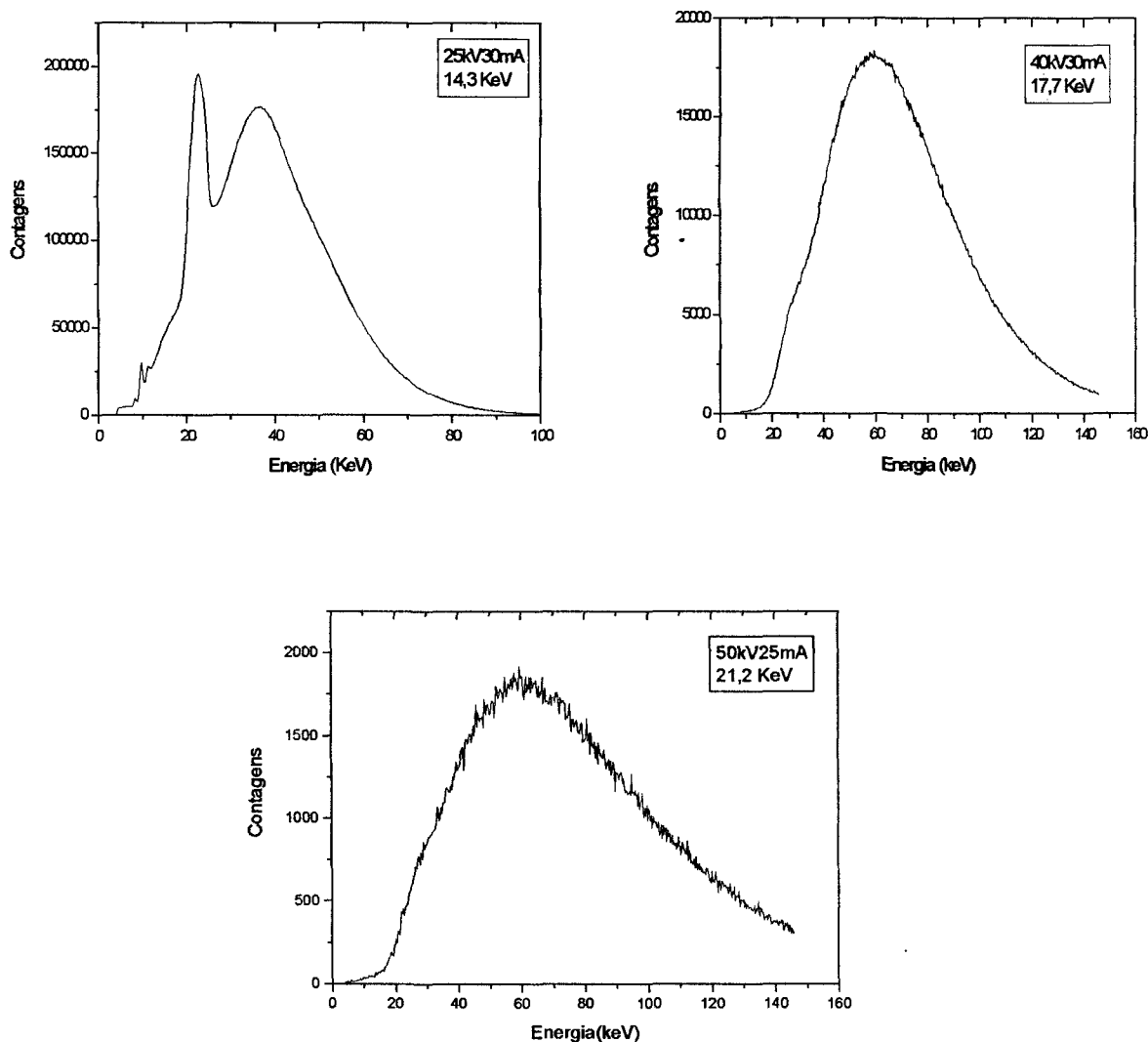


Figura 12. Espectros NPL dos raios-X de energias: 14,3, 17,7 e 21,2KeV.

#### 4.4.3 Acelerador de elétrons

As características do acelerador de elétrons modelo JOB 188 pertencente ao Centro de Tecnologia das Radiações do IPEN, são apresentados na tabela 6.

Tabela 6. Características do acelerador de elétrons modelo JOB 188.

Parâmetros	
Energia (MeV) ;	1,108
Corrente (mA) :	0,32
Potência (kW):	0,52
Varredura do feixe (cm):	112
Taxa de dose (kGy/s):	1,35

As amostras foram posicionadas a 19 cm de distância da fonte, perpendicular ao eixo central do feixe de radiação, a uma altura de 5cm da base de lucite que faz parte do sistema de irradiação e foram irradiados com uma dose de 5 Gy. A incerteza na dose da radiação é de  $\pm 5\%$ .

#### 4.4.4 Fonte de $^{137}\text{Cs}$

As amostras foram posicionadas a 1,8 m de distância da fonte com atividade de 50TBq em 11/Nov/2004 e taxa de dose 65,5 Gy/h, perpendicular ao eixo central do feixe de radiação, a uma altura de 5cm da base de lucite que faz parte do sistema de irradiação e foram irradiados com uma dose de 5 Gy. A incerteza na dose de radiação é menor que 5%.

#### 4.4.5 Parametrização do Equipamento de RPE

As leituras RPE foram feitas em um espectrômetro Bruker – EMX, equipado com cavidade ressonante retangular modelo ER4102ST, que opera na banda X, pertencente ao Instituto de Física da Universidade de São Paulo –IFUSP, conforme mostra a figura 13.

Os parâmetros do espectrômetro foram ajustados especificamente para realizar as leituras do esmalte dentário. Todas as amostras foram lidas à temperatura ambiente.



Figura 13. Espectrômetro de Ressonância Paramagnética Eletrônica (RPE). Bruker EMX pertencente ao Instituto de Física da USP.

A tabela 7 apresenta a parametrização do equipamento de RPE para medidas de hidroxiapatita.

Tabela 7. Parametrização do equipamento de RPE, para as medidas de hidroxiapatita.

Parâmetros	Valores
Campo Central	348 mT
Largura de Varredura	8 mT
Resolução	1024 pontos
Tempo de Conversão	164 ms
Constante de tempo	164 ms
Nº de scans	5
Frequência de modulação	100 kHz
Potencia de microondas	10 mW
Amplitude de modulação	0,3 mT

Todos os resultados apresentados são a média de 3 medidas e as barras de erro, o desvio padrão da média.

Os espectros brutos de RPE são compostos por dois grupos de sinais:

- Sinais de Background, produzidos pelo tratamento do material.
- Sinais decorrentes da interação da radiação ionizante com a matéria.

Todas as leituras foram efetuadas utilizando um padrão de  $\text{MgO:Mn}^{2+}$ , para corrigir as flutuações na estabilidade do espectrômetro, o qual foi medido simultaneamente com as amostras, em uma posição fixa na cavidade.

## 5 RESULTADOS E DISCUSSÕES

### 5.1 Espectros RPE

As figuras 14 e 15 mostram os espectros característicos da hidroxiapatita sintética tipo B e do esmalte dentário, após irradiação com radiação gama do  $^{60}\text{Co}$ , com dose de 5Gy. A amplitude pico a pico, indicada por **h**, é a parte de interesse na dosimetria com hidroxiapatita.

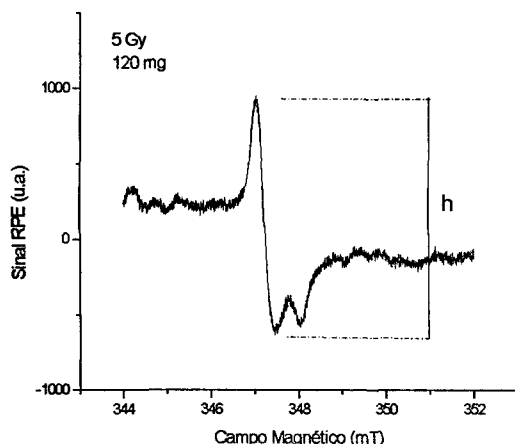


Figura 14. Espectro característico da hidroxiapatita sintética tipo B, após irradiação com radiação gama do  $^{60}\text{Co}$ .

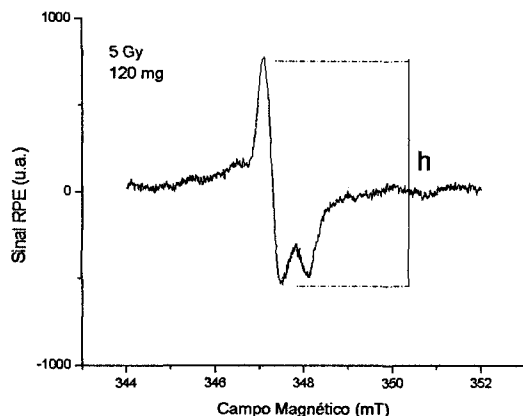


Figura 15. Espectro característico do esmalte dentário, após irradiação com radiação gama do  $^{60}\text{Co}$ .

Os espectros obtidos estão de acordo com os apresentados na literatura <sup>(74)</sup> para esses tipos de amostras. Em todas as avaliações foi sempre utilizado o padrão de  $\text{MgO}:\text{Mn}^{2+}$  para normalização das respostas.



### 5.1.1 Sensibilidade Relativa do sinal RPE

A sensibilidade relativa do sinal RPE da hidroxiapatita sintética tipo B para a energia do  $^{60}\text{Co}$  com dose de 5 Gy é aproximadamente 25% maior do que para o esmalte dentário, indicando maior sensibilidade do material sintético.

## 5.2 Testes de desempenho

### 5.2.1 Dependência do sinal RPE com a massa de esmalte dentário

Para a determinação da dependência da intensidade do sinal RPE com a massa de esmalte dentário e de hidroxiapatita sintética, foram avaliadas amostras com massas entre 50 e 200 mg.

As amostras foram irradiadas no ar, no porta detector, com dose de 10 Gy, na fonte Gammacell, no centro da câmara, a meia altura, sob condição de equilíbrio eletrônico. Para a leitura no espectrômetro as amostras foram colocadas em tubos de quartzo e, ajustados os parâmetros de trabalho, foram efetuadas as leituras. Os resultados podem ser vistos na figura 16. Os valores apresentados são a resposta de uma única amostra que foi medida três vezes. Os desvios padrão das médias ( $1\sigma$ ) não ultrapassaram 1%.

Nota-se o crescimento do sinal com o aumento da massa, tendendo à saturação para valores acima de 120 mg.

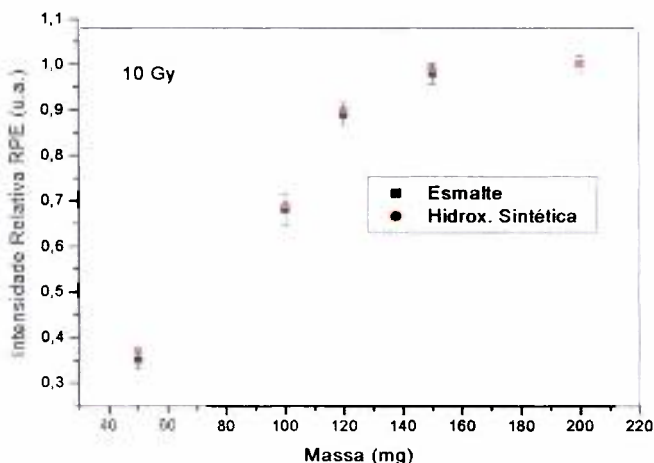


Figura 16. Amplitude do sinal RPE em função da massa de hidroxiapatita sintética tipo B e esmalte dentário.

A partir dos resultados obtidos padronizou-se os detectores com massas de 120 mg, também adequada para as dimensões do tubo e da cavidade.

### 5.2.2 Dependência do sinal RPE com o posicionamento do detector na cavidade ressonante

Para analisar a influência do posicionamento do detector dentro da cavidade foram efetuadas medidas do sinal RPE do esmalte utilizado amostras com 120 mg, irradiadas como descrito em 5.2.1, variando-se a posição do detector na cavidade. O tubo de quartzo com o detector foi posicionado no fundo da cavidade efetuando-se a primeira leitura, denominada posição zero. A partir deste ponto o tubo de quartzo foi deslocado para cima de 5 em 5mm, realizando-se leituras nas várias posições.

Como mostra a figura 17, o sinal RPE aumenta até o detector atingir o centro da cavidade, diminuindo a partir deste ponto. Isto indica que, fora do centro da cavidade o detector não recebe o máximo de intensidade do campo magnético, o que implica que o posicionamento deve ser reproduzível, e sempre na posição de máximo.

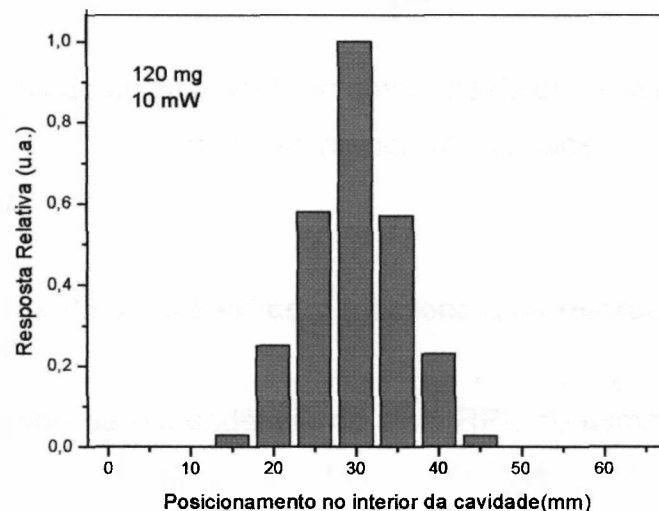


Figura 17. Intensidade do sinal RPE de amostras de esmalte em função do posicionamento do detector na cavidade.

### 5.2.3 Dependência do sinal RPE com o ângulo de rotação do detector na cavidade ressonante

Para o estudo da variação angular da resposta RPE foram utilizadas amostras com 120 mg, irradiadas conforme descrito em 5.2.1. Com o auxílio de um goniômetro posicionou-se o tubo de quartzo contendo o detector de esmalte em posição zero e efetuou-se a primeira leitura, depois, rotacionando 90 graus efetuou-se a segunda leitura e assim por diante para as posições 180, 270 e 360 graus. O resultado é mostrado na figura 18. O desvio padrão da média ( $1\sigma$ ) encontrado varia entre 1,5 e 3%, mostrando que o sinal RPE das amostras em forma de pó, independe do ângulo de rotação do detector na cavidade.

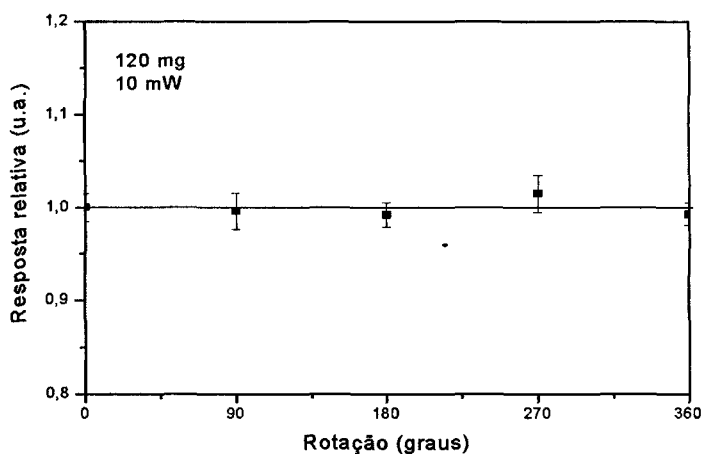


Figura 18. Amplitude do sinal RPE de amostras de esmalte em função do ângulo rotação no interior da cavidade.

### 5.2.4 Dependência do sinal RPE com a potência de microondas

Para o estudo da dependência do sinal RPE do esmalte com a potência de microondas foram irradiados dois dosímetros, conforme descrito em 5.2.1, com doses de 5 e 100Gy.

Utilizando os parâmetros de trabalho e variando a potência entre 5 e 32 mW, os detectores foram avaliados, e os resultados podem ser observados na figura 19,

que mostra que a intensidade do sinal RPE em função da potência de microondas satura em 20 mW.

Pode ser observado que o comportamento do sinal em função da potência de microondas não sofre alteração em relação às diferentes doses aplicadas. A potência de trabalho escolhida foi de 10 mW para, desta forma, garantir a proporcionalidade do sinal com o número de spins, que em termos absolutos está diretamente relacionado à dose absorvida no material.

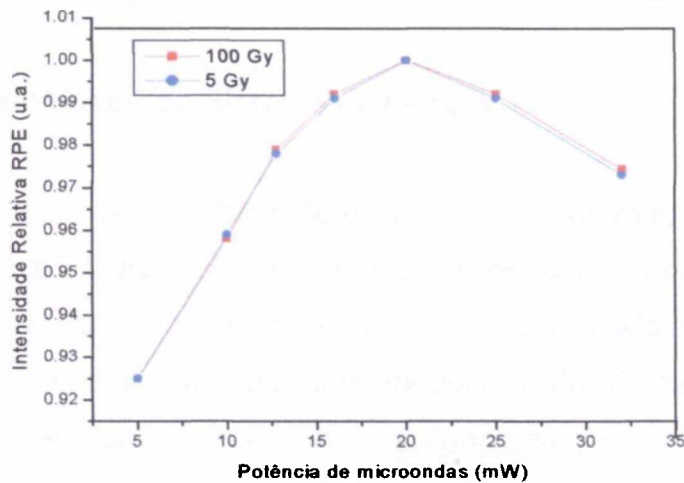


Figura 19. Intensidade do sinal RPE do esmalte dentário em função da potência de microondas.

### 5.2.5 Efeito do choque mecânico no sinal RPE

Após irradiação com dose de 10 Gy, conforme 5.2.1, os detectores de esmalte dentário foram retirados do porta-detector e submetidos a quedas provocadas de uma altura de 2m.

As diferenças de amplitude do sinal RPE não ultrapassaram 3%. Nesta etapa foram avaliados três dosímetros.

## **5.2.6 Reprodutibilidade**

### **5.2.6.1 Reprodutibilidade do lote**

Para verificar a reprodutibilidade do sistema de produção dos detectores foi preparado um lote de 20 detectores de esmalte. Após a irradiação com 10Gy na fonte Panorâmica, nas condições de equilíbrio eletrônico, os detectores foram avaliados no espectrômetro RPE.

Os dados obtidos indicaram um desvio padrão da média ( $1\sigma$ ) de 4%.

### **5.2.6.2 Reprodutibilidade do Sistema de Leitura**

Para verificar a reprodutibilidade do sistema de leitura foi preparado um lote de cinco detectores de hidroxiapatita sintética, sendo que 3 foram irradiados com 10Gy e 2 com 500Gy. Foram realizadas três medidas para cada detector, na mesma posição, e observou-se um desvio padrão da média ( $1\sigma$ ) de 5% para a dose de 10Gy e 4% para a dose de 500Gy. Esses valores concordam com os encontrados na reprodutibilidade do lote.

## **5.2.7 Dependência do sinal RPE com o tipo de radiação incidente**

Nesta etapa, foram irradiados dosímetros de esmalte dentário, com doses de 0,5, 2, 5, 10, 50 e 200kGy na fonte de  $^{60}\text{Co}$  e no Acelerador de elétrons. Para o  $^{60}\text{Co}$  foram mantidas as condições de equilíbrio eletrônico. Nas irradiações com elétrons, os detectores foram irradiados sem a capa de equilíbrio eletrônico, visto que os elétrons são menos penetrantes.

A energia média do  $^{60}\text{Co}$  é de 1,25 MeV e para os elétrons a energia média foi de 1,459 MeV.

Na figura 20 são apresentados os resultados obtidos para o esmalte dentário, onde cada ponto é a média de três leituras. Os desvios padrões das médias variaram entre 1e 5%. Observa-se a linearidade da resposta RPE para ambos os tipos de radiação para doses entre 0,5 e 100kGy, conforme indicado na literatura <sup>(2,3)</sup>.

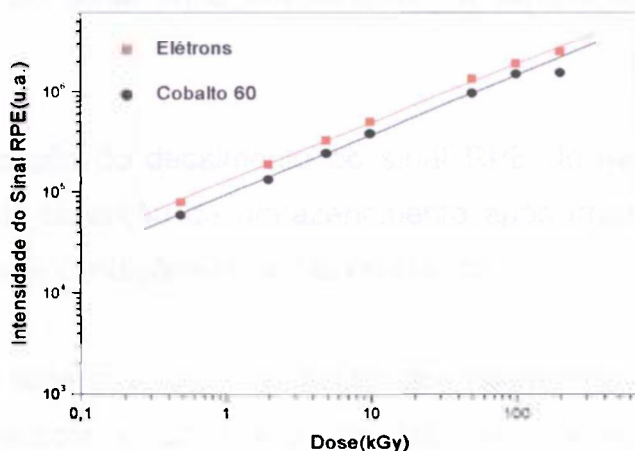


Figura 20. Resposta RPE do esmalte dentário em função do tipo de radiação incidente.

### 5.2.8 Dependência do sinal RPE com a taxa de dose

A influência da taxa de dose no sinal RPE do esmalte foi estudada para radiação gama do <sup>60</sup>Co. As taxas de dose aplicadas com a fonte Panorâmica foram de 0,12, 0,15, 0,27, 0,3 e 0,51kGy/h, sendo que a taxa de dose menor foi obtida utilizando um atenuador de chumbo para reduzi-la em 70%. Os detectores de esmalte foram irradiados com doses de 5 e 10Gy. O desvio padrão da média (1σ) da resposta RPE para as taxas de dose aplicadas foi de aproximadamente 0,8%. Os resultados obtidos podem ser observados na figura 21, onde cada ponto é a média de duas leituras.

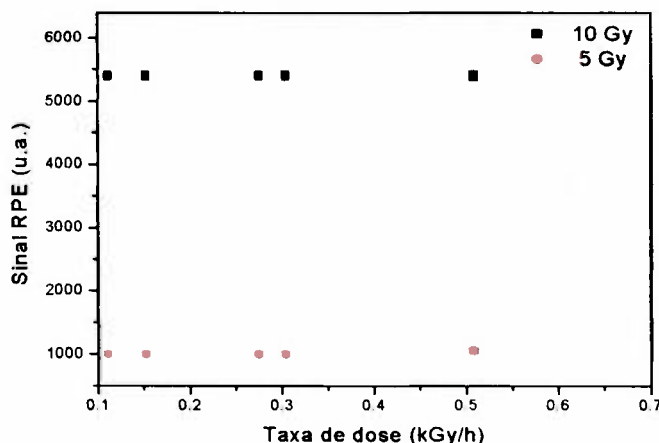


Figura 21. Dependência do sinal RPE do esmalte dentário em função da taxa de dose aplicada.

### **5.2.9 Decaimento do sinal RPE em função do tempo e da condição de armazenamento**

Para verificação do decaimento do sinal RPE do esmalte em função do tempo decorrido e da condição de armazenamento após irradiação, os detectores foram avaliados em três condições de armazenamento:

**-Condições ideais:** após a irradiação dos dosímetros os detectores foram mantidos em dessecador e ao abrigo da luz, em condições controladas de temperatura e umidade;

**-Condição de exposição à luz natural:** após a irradiação dos dosímetros os detectores foram mantidos expostos à luz natural, nas condições ambientais de temperatura e umidade;

**-Condição de exposição à luz fluorescente:** após a irradiação dos dosímetros os detectores foram mantidos em uma sala escura, onde foi montado um arranjo com três lâmpadas fluorescentes, posicionado a 1 metro de distância dos detectores.

A primeira leitura dos detectores, denominada zero, foi feita imediatamente após irradiação, as demais foram efetuadas, como mostra a tabela 8.

Tabela 8. Tempo decorrido após a irradiação dos detectores mantidos nas condições de estudo.

Leitura	Tempo decorrido (dias)
1º	zero
2º	1
3º	2
4º	3
5º	8
6º	15
7º	36
8º	57
9º	64

Para cada condição foram irradiados 3 dosímetros simultaneamente, a dose aplicada foi de 10Gy. O decaimento do sinal RPE dos detectores de esmalte expostos à luz natural foi de 48% em 64 dias. Os detectores expostos à luz fluorescente e os mantidos em condições ideais apresentaram decaimento de aproximadamente 2%. Os resultados obtidos podem ser vistos na figura 22.

O rápido decaimento do sinal para estocagem em condições de luz natural pode estar relacionado com alterações de temperatura, devido ao armazenamento em local sem um controle prévio de temperatura; os demais ficaram em ambiente com temperatura controlada, aproximadamente 25°.



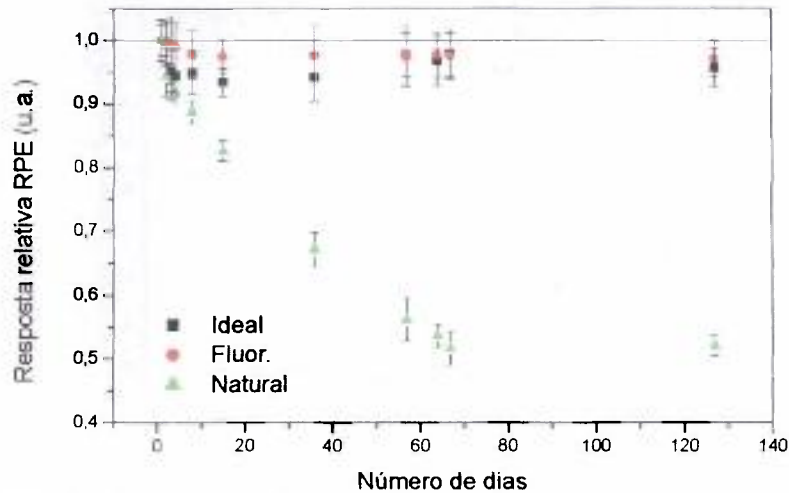


Figura 22. Decaimento do sinal RPE do esmalte em função do tempo e da condição de armazenamento.

### 5.2.10 Dependência energética do sinal RPE

Para avaliação da dependência energética do sinal RPE do esmalte e da hidroxiapatita sintética com a radiação X e gama incidentes foram irradiados 2 dosímetros de cada tipo, para cada energia, com dose de 10Gy, no intervalo de energias entre 14,3 e 1250keV. Os resultados obtidos foram normalizados para a resposta referente ao  $^{60}\text{Co}$ .

Pode se observar uma maior dependência energética com a radiação X na região entre 14,3 e 21,2 keV, região onde predomina o efeito fotoelétrico, pois o número atômico da hidroxiapatita é alto, 113. A figura 23 mostra o resultados obtidos.

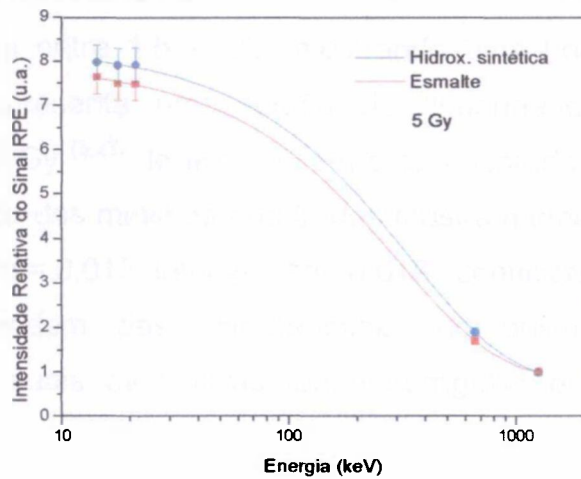


Figura 23. Curva de dependência energética da hidroxapatita sintética e do esmalte dentário.

### 5.2.11 Curva de resposta com a dose

Para construção da curva dose-resposta para o  $^{60}\text{Co}$ , foram tomadas as amplitudes pico a pico dos espectros RPE brutos das amostras de esmalte dentário com 120 mg, irradiadas no ar, com doses entre 0,2 Gy e 200 kGy, em condições de equilíbrio eletrônico. Os resultados são apresentados na figura 24.

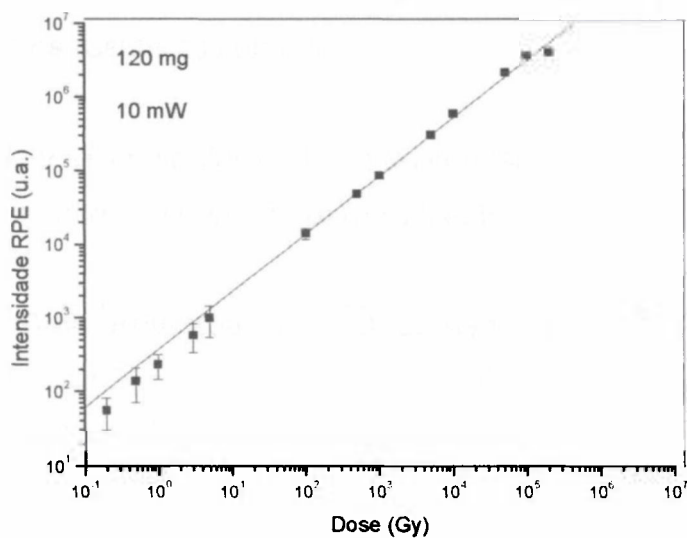


Figura 24. Curva dose – resposta do esmalte para a radiação gama do  $^{60}\text{Co}$ .

Cada ponto representa a média de três leituras. O desvio padrão da média ( $1\sigma$ ) encontrado varia entre 1,5 e 2%, mostrando uma boa reprodutibilidade das leituras. A curva apresenta uma região de linearidade extensa, de 10 até aproximadamente  $10^5$  Gy <sup>(3,23)</sup> de acordo com o apresentado na literatura. Os dados ajustados pelo método dos mínimos quadrados mostram uma reta com os seguintes coeficientes inclinação = 0,013, intersecção= 0,018 , coeficiente de correlação = 0,98. Estes valores dependem das características dos dosímetros, das condições ambientais para as quais as leituras foram corrigidas e das características do espectrômetro <sup>(19)</sup>.

### 5.3 Limite mínimo de detecção

O limite mínimo de detecção dos detectores de esmalte calculado foi de 0,2Gy determinado tomando-se 3 vezes o desvio padrão da média de 10 leituras de menor leitura significativa somada ao valor da média.

### 5.4 Teste de confiabilidade do sistema dosimétrico

Para o teste de confiabilidade do sistema dosimétrico foram irradiados 12 dosímetros de esmalte dentário com doses desconhecidas, três dosímetros para cada dose, na fonte Panorâmica. Utilizando a curva de dose-resposta, da figura 23, ajustada pelo método dos mínimos quadrados, foram calculadas as doses aplicadas. A tabela 9 mostra os resultados obtidos.

Tabela 9 - Resultados do teste de confiabilidade do dosímetro, RPE de esmalte dentário para radiação gama do <sup>60</sup>Co.

Dose Aplicada (Gy)	Dose Avaliada (Gy)	Diferença (%)
50 ± 0,8	48 ± 0,7	2
100 ± 1,7	90 ± 1,4	10
500 ± 8,5	490 ± 8,3	2
1000 ± 17	970 ± 16,5	3

## 5.5 Cálculo da Incerteza

O resultado de uma medida é somente uma aproximação ou estimativa de um valor e, então, é completa somente quando acompanhada por fontes de incertezas combinadas <sup>(39)</sup>.

Entre as possíveis fontes que podem contribuir para a incerteza da dose de radiação por dosimetria RPE com esmalte, estão <sup>(39)</sup>:

- Decaimento do sinal ( $\sigma$  fading)
- Preparação da amostra ( $\sigma$  amostra)
- Medida RPE ( $\sigma$  RPE);  $\sigma$  RPE =  $(\sigma \text{ ruído}^2 + \sigma \text{ posic}^2 + \sigma \text{ stab}^2)^{1/2}$
- Calibração da dose resposta RPE ( $\sigma$  Calib.)

A incerteza total combinada da dose RPE no esmalte dentário pode ser expressa como:

$$\sigma \text{ DOSE RPE} = (\sigma \text{ fading}^2 + \sigma \text{ amostra}^2 + \sigma \text{ RPE}^2 + \sigma \text{ Calib}^2)^{1/2}$$

### 5.5.1 Decaimento

Considerando que o decaimento do sinal RPE do esmalte dentário, mantido em condições adequadas, é inferior a 2 % nos três primeiros dias após irradiação, e tendo em vista que os centros paramagnéticos de  $\text{CO}_2^-$  são extraordinariamente estáveis, com um tempo de vida em torno de  $10^7$  anos, podemos considerar a incerteza no decaimento nula <sup>(23)</sup>.

$$\sigma \text{ fading} = 0.$$

### 5.5.2 Preparação das amostras

Atualmente, existem várias aproximações para a preparação das amostras. Dos resultados apresentados em intercomparações internacionais de medida de reconstrução de dose RPE, a escolha do método de preparação das amostras não influencia. Pequenas modificações na aplicação de um método foram encontradas,

de acordo com o método de preparação utilizado, o MRRC (Mechanically Method) <sup>(81)</sup>, a incerteza está em torno de 10% <sup>(39)</sup>. Então,  $\sigma$  amostra  $\cong$  10 %.

### 5.5.3 Medida RPE

#### 5.5.3.1 Posicionamento da amostra (variação angular e vertical)

A incerteza no posicionamento é do tipo A, incerteza devida a erros estatísticos, e o desvio padrão da média ( $1\sigma$ ), encontrado foi de 3%, mostrando que o sinal RPE das amostras em forma de pó, independe do ângulo.

Para analisar a influência do posicionamento do detector dentro da cavidade foram efetuadas medidas do sinal RPE do esmalte, mantendo a amostra em uma posição fixa na cavidade do espectrômetro RPE. Foram realizadas 5 medidas, retirando a amostra da posição fixa e retornando-a na mesma posição. Os resultados encontrados variaram 0,8 %. Então:

$$\sigma \text{ Posic} = (0,03^2 + 0,008^2)^{1/2} \cong 0,03 \text{ ou } 3\% .$$

#### 5.5.3.2 Estabilidade do espectrômetro RPE

A estabilidade do espectrômetro de RPE está relacionada com a potência de microondas, fator de qualidade, e campo magnético aplicados. Estes componentes são influenciados pela umidade e temperatura. A variação de saída do sinal RPE é analisada experimentalmente pelo estudo da intensidade do espectro RPE de uma amostra padrão estável (strong pitch) como função do tempo. A estabilidade a curto prazo estimada é uma incerteza tipo A, e foi obtida pela referência <sup>(39)</sup> sendo  $\sigma \cong$  1 %.

$$\sigma \text{ Stab} = 1\% .$$

### 5.5.3.3 Ruído no espectro RPE

A intensidade do sinal dosimétrico RPE do esmalte dentário é composta por ruídos de baixa e alta frequência. A incerteza associada é do tipo A.

Para isso foram irradiadas amostras na forma de pó com 120 mg, com uma fonte de  $^{60}\text{Co}$ , com dose de 1Gy. Os componentes devidos à radiação foram obtidos pela subtração do espectro registrado antes e após a irradiação <sup>(66)</sup>. A relação sinal ruído variou entre 3 e 30 para doses absorvidas de 0,1Gy e 1Gy respectivamente <sup>(39)</sup>. Sendo que o quociente entre as intensidades do ruído e do sinal para a dose de 1Gy são respectivamente:

$$\sigma \text{ Ruído} = 30 (I_{\text{ruído}} / I_{\text{Sinal}}) = 30 (75 / 800) = 2,8\%.$$

$$\text{então: } \sigma \text{ RPE} = (\sigma \text{ Ruído}^2 + \sigma \text{ Posic}^2 + \sigma \text{ Stab.}^2)^{1/2}$$

$$\sigma \text{ RPE} = (0,028^2 + 0,03^2 + 0,01^2)^{1/2}$$

$$\sigma \text{ RPE} = 4,2\% .$$

### 5.5.3.4 Calibração

Para a irradiação das amostras foi utilizado a fonte de  $^{60}\text{Co}$ , Panorâmica. A incerteza na dose absorvida é de 1,7%, devido aos erros sistemáticos (incerteza tipo B).

Então, a incerteza combinada é:

$$\sigma \text{ DOSE RPE} = (\sigma \text{ fading}^2 + \sigma \text{ amostra}^2 + \sigma \text{ RPE}^2 + \sigma \text{ Calib}^2)^{1/2}$$

$$\sigma \text{ DOSE RPE} = (0^2 + 0,01^2 + 0,042^2 + 0,017^2)^{1/2} =$$

$$\sigma \text{ DOSE RPE} = 4,6\%.$$

## 6. CONCLUSÕES

A partir dos resultados obtidos, podemos concluir que:

- O método de escolha dos dentes e de extração do esmalte dentário (MRRC) empregado foi adequado, permitindo obter um espectro RPE apropriado para o emprego em dosimetria retrospectiva.
- A parametrização escolhida para o equipamento BRUKER permite a obtenção do sinal RPE bem definido e com uma relação sinal-ruído satisfatória.
- A técnica de encapsulamento em tubo de polietileno, que facilita a manipulação e o controle de qualidade do detector, pode ser empregada para qualquer outro material, além da alanina, não interferindo no sinal RPE.
- Os resultados inéditos obtidos mostraram a dependência energética do sinal RPE para energias baixas (14,3 à 21,2KeV) e a forte influência que pode exercer na avaliação da dose em caso de acidente, mostrando a necessidade de se conhecer o histórico radiológico do dente, ao se colher uma amostra.
- A reprodutibilidade 4%, o largo intervalo de linearidade (10Gy à 100kGy) e a estabilidade do sinal RPE, em condições adequadas que é da ordem de 2%, indicam que a técnica estudada empregando o esmalte dentário pode ser empregada para retrospectiva de dose, sendo que a hidroxiapatita sintética pode ser empregada como padrão de referência, para calibração, em casos de acidente.
- Todos os objetivos foram atingidos e a metodologia estudada é viável, os parâmetros foram padronizados e está disponível.

## 7. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. ABRAGAM, A; BLEANEY, B. **Electron Paramagnetic Resonance of Transition Ions**. New York, N. Y: Dover Publications, INC, 1996.
2. ALDRICH, J.E., PASS, B. AND MAILER, C. Charges in the paramagnetic centers in irradiated and heated enamel studied using electron paramagnetic resonance. **Int. J. Radiat. Biol.**, v. 61, p. 433-437, 1992.
3. ALDRICH, J.E., PASS, B. Dental Enamel as an in vivo radiation dosimeter: separation of the diagnostic X –ray dose from the dose due to natural sources. **Radiat. Prot. Dosim.**, v.17, p. 175-179, 1986.
4. ALDRICH, J.E., PASS, B. Determination radiation exposure from nuclear accidents and atomic tests using dentals enamel. **Health Phys**, v. 54, p. 469-471, 1998.
5. ALENCASTRO, R.B.; PEIXOTO, J.S.; PINHO, L.R.N. **Química Orgânica**, Ed. Guanabara Koogan S.A., 1978.
6. ALGER, R. S. **Electron paramagnetique resonance, elementary theory and practical application**, London, Interscience Publishers, (1964).
7. AMERICAM SOCIETY FOR TESTING AND MATERIALS. **Standard Guide for Selection and Applications of Dosimetry Systems for Radiation Processing of Food**. Oct. 6-11, ( ASTM E - 1261), 1991.
8. AMERICAM SOCIETY FOR TESTING AND MATERIALS. **Standard Practice for Use of Alanine – EPR Dosimetry System**. V. 12.02, p. 855-860 (ASTM E - 1607), 1994.
9. ATTIX, F.H. **Introduction to radiological physics and radiation dosimetry**. London: Willely, 1986.



10. BACQUET, G. TRUONG, V. Q., VIGNOLES, M., TROMBE, J.C. AND BONEL, G. ESR of  $\text{CO}_2^-$  in x-irradiated tooth enamel and A-type carbonated apatite. *Calc. Tiss. Int.*, v. 33, p. 105-108, 1981.
11. BAN, S.; MARUNO, S. **Morphology and microstructure of electrochemically deposited calcium phosphates in a modified simulated body fluid.** *Biomater.*, v. 19, p. 1245-1253, 1998.
12. BARTOLOTTA, A.; CACCIA, B.; INDOVINA, P. L.; ONORI, S.; ROSATI, A. **Application of Alanine-based Dosimetry.** In *High-dose Dosimetry*, Proc. Symp. Viena, p. 245. IAEA, Viena, 1984.
13. BERMANN, F.; DE CHOUDENS, H.; DESCOURS, S. **Application à la Dosimétrie de la Mesure par Résonance Paramagnétique Électronique des Radicaux Libres Créés dans les Acides Aminés.** In *Advances in Physical and Biological Radiation Detector*, Proc. Symp. 1970, Viena. Proceedings... Viena: IAEA, 1971. p. 311.
14. BERSOHN, M.; BAIRD, J. M. **An Introduction to Electron Paramagnetic Resonance.** New York, N. Y. W. A. Benjamin, INC, 1996.
15. BRADSHAW, W.W.; CADENA, D. G.; CRAWFORD, G. W.; SPETZLER, H. A. The Use of Alanine as a Solid Dosimeter. *Radiat. Res.*, v.17, p. 11-21, 1962.
16. CAMPOS, M. M. **Fundamentos de Química Orgânica.** São Paulo, S.P Ed Edgard Blucher Ltda, 1980.
17. CHUMAK, V. , PAVLENKO, J. U. ; SHOLOM , S. An approach to assessment of overall uncertainty of determination of dose using and ESR technique. *Appl. Radiat. Isot.*, 47 (11/120): 1287-1291, 1996.
18. COSTA, Z. M. **Desenvolvimento de um sistema dosimétrico para situações de emergência envolvendo pessoas do público em geral.** IPEN-SP. Tese de Doutorado, 1999.

- 19.COSTA, Z. M. **Desenvolvimento de sistemas de DL- Alanina para dosimetria da radiação gama e beta.** IPEN - SP. Dissertação (Mestrado), 1994.
- 20.COSTA, Z. M.; CAMPOS, L.L.; YAMASAKI, M. C. **Preparação e calibração de dosímetros de alanina para dosimetria de altas doses pela técnica de ressonância paramagnética eletrônica.** Anais do II Encontro Nacional de Aplicações Nucleares, Caxambu MG p. 241, 1993.
- 21.DALGARNO , B. G.; MCCLYMONT, J. D. Evaluation of ESR as a radiation accident dosimetry technique. **Appl. Radiat. Isot.** 40 (10-12), 1013-1020, (1989).
- 22.DALTRO, T. F. L. **Desenvolvimento de um sistema dosimétrico para monitoração individual em campo misto beta e gama.** São Paulo: 1996. Tese (Doutoramento)- Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.
- 23.DESROSIERS, M. F.; Schauer, D. A." Electron paramagnetic resonance (EPR) biodosimetry". **Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. B** (184), p.219 – 228, 2000.
- 24.DESROSIERS, M. F. EPR bone dosimetry: a new approach to spectral deconvolution problems. **Appl. Radiat. Isot.** 44, 1-2,81-83, 1993.
- 25.DESROSIERS, M. F.; SIMIC, M.G.; EICHMILLER, F. C.; JOHNSTON, A. D.; BOWEN,R. L. "Mechanically-induced generation of radicals in tooth enamel". **Appl. Radiat. Isot.** 40, p.1195-1197, 1989.
- 26.DERRICO, F.; FATTIBENE, P.; ONORI, S.; PANTALONI, M. Criticality accident dosimetry with ESR Spectroscopy. **Appl. Radiat. Isot.**, v. 47 n. 11/12, p. 1335-1339, 1996.
- 27.EGERSDOFER, S. WIESER, A. Tooth enamel as a detector materials for retrospective EPR dosimetry. **Appl. Radiat. Isot.**,v.47, n.11/12, p. 1299-1303, 1996.
- 28.FATTIBENE, P.; DUCKWORTH, T.L.; DESROSIERS, N.F. Critical evaluation of the sugar- EPR dosimetry system. **Appl. Radiat. Isot.**, 47 (11/12): 1375-1379, 1996.

29. GALANTE, O.L." **Padronização do método de dosimetria de doses altas pela Técnica de Ressonância Paramagnética Eletrônica.** "Dissertação de Mestrado IPEN/USP - São Paulo, 2000.

30. Gauglitz, R. et al., **Radiochimica Acta**, vol 58/59, p. 253-257, 1992.

31. GORDY, W.; ARD, W. B.; SHIELDS, H. Microwave Spectroscopy of Biological Substance I-Paramagnetic Resonance in X-irradiated Amino Acids and Proteins. **Proc. Nat. Acad. Sci.**, v. 41, p. 983-996, 1955.

32. GREENSTEIN, J.; WINITZ, M. **Chemistry of the Amino Acids.** New York, Robert E. Krieger Publishing Company, INC, 1986.

33. GREENSTOCK, C. L.; TREVEDI, A., KOLIOS, M., MEHTA S. AND BONNOT, J. **Using bio-organic substances for emergency dosimetry.** In: Radiation Research: A Twenty Century Perspective V.1 p. 319 Academic Press 1993.

34. GRIFFITH, R. V. Retrospective Dosimetry needs from an IAEA Perspective. **Radiat. Prot. Dosim.**, v.77, n. 1/2, p. 3-9, 1998.

35. HANSEN, J.W., OLSEN, K.J.; WILLE, M. The Alanine Radiation Detector for High- and Low Let Dosimetry. **Radiat. Prot. Dosim.**, v. 19,43, 1987.

36. IKEYA, M. **New application of Electron Spin Resonance – dating, dosimetry and microscopy.** Singapore: World Scientific, 1993.

37. IKEYA, M.; MIYAJIMA, J.; OKAJIMA, S. ESR Dosimetry for Atomic Bomb Survivors Using Shell Buttons, and Tooth Enamel. Jpn. **J. Appl. Phys**, v. 23, p.679-710, 1984.

38. INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION. **Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. 1991 (ICRP-60).**

39. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY-IAEA-TECDOC-1331. **Use of electron paramagnetic resonance dosimetry with tooth enamel for retrospective dose assessment**, 2002.

40. JANOVSKY, I.; HANSEN, J.W.; CERNOCH, P. A Polymer-Alanine Film for Measurements of Radiation Dose Distributions. *Appl. Radiat Isot.*, v. 39, n 7, p. 651-657, 1985.

41. JOHNS, H. E. & CUNNINGHAM, J. R. **The physics and radiation dosimetry**. Illinois, Charles C. Thomas. Publishers, 1983.

42. KAI, A.; MIKI, T.; IKEYA, M. ESR Dating of teeth, bones and eggs shells excavated at a palaeolithic site of Douara cave, Syria. *Quat. Sci. Rev.*, v. 7, p. 503-507, 1988.

43. KAY, M. I. et al, 1964. Crystal Structure of Hydroxyapatite. *Nature* vol 204, p.1050-1055.

44. KEIZER, P. N.; NOTON, J. R.; PRESON, K. F. Electron Paramagnetic Resonance Radiation Dosimetry: Possible Inorganic Alternatives to the EPR/Alanine Dosimeter. *J. Chem. Soc. Faraday Trans.*, v. 87 ( 19 ), p 3147-9, 1991.

45. KLEVENHAGEN, S.C. Physics and dosimetry of therapy electron beams. Madison: *Med. Phys.*, 1993.

46. KNOLL, G.F. **Radiation detection and measurement**. New York, N.Y.: Willey, 1989.

47. KOJIMA, T.; TANAKA, R.; MORITA, Y. Alanine Dosimeters Using Polymers as Binders. *Appl. Radiat. Isot.* v. 37, p.517-20, 1986.

48. MARSHALL, T. O. **Radiation quantities and units principles of radiation dosimetry**. Ispra: CEC, 1995.

49. MATSUOKA, M.; TATUMI, S. H.; WANABE, S.; INABE, K. AND NAKAYIMA, T. ESR in quartz from a Brazilian sediment. ESR and TL in quartz from a Brazilian sediment. *Appl. Radiat. Isot.* 44, 1-2-185-189, 1993.

50. MAVROPOULOS, ELENA. **A hidroxiapatita como absorvedor de metais.** (Mestrado) Fundação Oswaldo Cruz, Escola Nacional de Saúde Pública; 1999.
51. MCMILLAN, J.A. **Paramagnetismo Eletrônico.** , Washington, D.C. Editora Eva V. Chesneau. Programa Regional de Desarrollo Científico y Tecnológico, 1975.
52. MCMILLAN, J.A.; BOYD, A.W.; CHADWICK, K., MCDONALD, J.C.; MILLER A. **Dosimetry for Radiation Processing.** New York, Philadelphia. Taylor & Franco, London, 1989.
53. MCLAUGHLIN, W. L.; DESROSIERS, M. F. **Dosimetry Systems for Radiation Processing.** New York, Philadelphia. Taylor & Francis, London, 1989.
54. MORAES, R. **Química Orgânica.** Cap. 5 a 20. Ed. Saraiva, 1976.
55. MCKEEVER, S. W.S. **Thermoluminescence of solids.** Cambridge Solid State, Science Series, 1985.
56. MULLER, W.U. AND STUFFER C. Biological indicators for radiation damage. *Int. J. Radiat. Biol.* 59,863-873, 1991.
57. NAKAJIMA, T. Estimation of absorbed dose to evacuees at Pripjat-City using ESR measurements of sugar and exposure rate calculations. *Appl. Radiat. Isot.*, 45(1), 113-120, 1994.
58. NAKAJIMA, T. ESR of sugar as a personnel monitor for radiation emergencies. *Appl. Radiat. Isot.*, 46 (8), 819-825, 1995.
59. NAKAJIMA, T. Sugar as emergency popular dosimeter for radiation accidents. *Health Phys.*, 55: 951-955, 1988.
60. NAKAJIMA, T. **Effect of powderization of irradiated LIF crystal on thermoluminescence emission.** J. Appl. Phys., v. 56, p. 2908-2912, 1984.

61. NISHIWAKI, Y.; NAKAJIMA, T.; HARA, H. **Radiation accident emergency dosimeters for the public.** In: Proc. Emergency 88 Congress on disaster education. Training and public information, London, (1988).
62. OKUNO, E.; CALDAS, I. L.; CHOW, C. **Física para Ciências Biológicas e Biomédicas.** Harper e How. São Paulo, SP., 1986.
63. OLIVEIRA, L. M.; ROSSI, A. M.; LOPES, R. T.; RODRIGUES, L. N. The influence of unstable signals for electron spin resonance dosimetry with synthetic a-type carbonated apatite. *Radiat. Prot. Dosim.* 1-4, 539-544, 2002.
64. OLSSON, S.K.; BADHERIAN, S.; LUND, E.; CARLSSON, G.A.; LUND, A. Ammonium Tartrate as an ESR Dosimeter Material. *Appl. Radiat. Isot.*, v. 50, p. 955-965, 1999.
65. PAKE, G. E. **Paramagnetic Resonance.** New York, N. Y. Washington University, W. A Benjamin, INC, 1962.
66. POOLE C.P. **Electron spin resonance: data sources, computer technology, relaxation, and ENDOR.** Edited by Charles P. Poole, Jr. and Horacio A. Farach. New York: American Institute of Physics. (1994).
67. RAMALHO, A.T.; NASCIMENTO, AC.H AND NATARAJAN, A. Dose assessment by cytogenetic analysis in the Goiânia (Brazil) radiation accident. *Radiat. Prot. Dosim.* 25, 95-100 (1998).
68. REGULLA, D. F.; U.; TUSCHY, H. A. **A practical High- level Dose Meter Based on Tissue-Equivalent Alanine.** In: International Atomic Energy Agency. Standardization and High-dose Intercomparison for Industrial Processing, September 25-29, 1978 Viena.: Advisory Group Meeting on Held in Viena, Technical Reports, Series No. 205, p. 139-151.
69. REGULLA, D.F. AND DEFFENER, U. Dosimetry of ESR spectroscopy of alanine. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, 33, 1101-1114, 1982.

70. RUANO R, JAEGUER RG, JAEGUER MM. Effect of a ceramic and a non-ceramic hydroxyapatite on cell growth and procollagen synthesis of cultured human gingival fibroblasts. *J.Periodontol.*2000, Apr;71(4):540-5. PMID:10807115(PubMed - indexed for MEDLINE)
71. SAGSTUEM, E.; THEISEM H.; HENRIKSEN, T. Dosimetry by ESR spectroscopy following a radiation accident. *Health Physics*, 45 (5) 961-968, (1983).
72. SATO, K. Study of an Asymmetric ESR Signal in X-irradiated Human Tooth Enamel. *Calcif. Tissue Int.* , v. 29, p. 95-99, 1979.
73. SCHAUER, D. A.; DESROSIERS, M.F., KUPPUSAMY, P.K.; ZWEIER, J.L. Radiation dosimetry of an accidents overexposure using EPR spectrometry and imaging of human bone. *Appl. Radiat. Isot.*, v. 47, p. 1345-1350, 1996.
74. SCHRAMM, D.U.; ROSSI, A. M. " Electron spin resonance (ESR) studies of CO<sub>2</sub><sup>-</sup> radicals in irradiated A and B-type carbonate-containing apatites. *Appl. Rad. Isot.* 52, p.1085- 1091, 2000.
75. TATSUMI , J. & OKAJIMA, S. ESR. Dosimetry for atomic bomb survivors and radiologic technicians. *Nucl. Instrum. Meth.*, v A257, p. 417-422, 1988.
76. TRIVEDI, A. AND GREENSTOCK, C. L. Use of Sugars and hair for ESR emergency dosimetry. *Appl. Radiat. Isot.*, 44,(1-2), 85-90, 1993.
77. ZAGÓRSKI, Z. P. Role of the Matrix in the Alanine-powder Dosimetry. *Radiat. Phys. Chem.*, v. 52, n. 1-6, p. 575-578, 1998.
78. ZAVOISKY, et. al. E. Zavoisky, *J Phys.* USSR 9:211-245, (1945).
79. WEBER, R. T. **EMX User's Manual**. Billerica, USA: ERP Division Bruker Instruments, Inc, 1995.
80. WERTZ, J.; BOLTON, J. **Electron spin resonance, elementary theory and application**, London, Interscience Publishers, 1986.

81. WIESER, A.; ONORI, S.; ARAGNO, D. " Comparison of sample preparation and signal evaluation methods for EPR analysis of tooth enamel". *Appl. Radiat. Isot.* 52, p.1059-1064, 2000.