

**UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO**  
**FFCLRP-Departamento de Física e Matemática**  
**Programa de Pós-Graduação em FÍSICA APLICADA À MEDICINA E BIOLOGIA**

**ESTUDO DE OTIMIZAÇÃO DO REGISTRO DE  
ESPECTROS DE RESSONÂNCIA PARAMAGNÉTICA  
ELETRÔNICA DE DOSÍMETROS DE ALANINA EM  
BAIXAS DOSES.**

**Felipe Chen Abrego**

**Dissertação de Mestrado apresentada à Faculdade  
de Filosofia, Ciências e Letras de Ribeirão Preto –  
USP, como parte das exigências para obtenção do  
título de MESTRE EM CIÊNCIAS – ÁREA:  
FÍSICA APLICADA À MEDICINA E BIOLOGIA.**

**RIBEIRÃO PRETO – SP**

**ABRIL – 1999**

**UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO**  
**FFCLRP-Departamento de Física e Matemática**  
**Programa de Pós-Graduação em FÍSICA APLICADA À MEDICINA E BIOLOGIA**

**ESTUDO DE OTIMIZAÇÃO DO REGISTRO DE  
ESPECTROS DE RESSONÂNCIA PARAMAGNÉTICA  
ELETRÔNICA DE DOSÍMETROS DE ALANINA EM  
BAIXAS DOSES.**

**Felipe Chen Abrego**

**Orientador: Prof. Dr. Oswaldo Baffa Filho**

**RIBEIRÃO PRETO – SP**

**ABRIL – 1999**

## Agradecimentos

Desejo expressar minha gratidão a todas aquelas pessoas e instituições que contribuíram, direta ou indiretamente, para a culminação deste trabalho:

- ao Prof. Dr. Oswaldo Baffa Filho, por oferecer-me a oportunidade de realizar estudos de pós-graduação, e pela orientação e apoio constantes em todas as etapas deste trabalho;
- ao Prof. Dr. Carlos F. O. Graeff, pelo auxílio e suporte na parte experimental do espectrômetro de ressonância paramagnética eletrônica;
- ao Prof. Dr. José Enrique Rodas Duran pelos seus conselhos e pela sua amizade;
- ao Professores Drs. Oswaldo Baffa Filho, Thomaz Ghilardi Netto, José Roberto Drugowich de Felício, José Enrique Rodas Duran, Carlos F. O. Graeff, pelo conhecimento oferecido nas diferentes disciplinas cursadas;
- aos técnicos do Departamento: Aziani, Carlão, Lourenço, Eldereis, Liander e Élcio, pelo apoio constante e dedicação na parte técnica;
- às secretarias Sônia, Rosângela, Gisele, e Inês pela sua atenção;
- aos amigos Eder, Adilton e Dráulio, pela ajuda e explicações oferecidas para poder mexer com o Origin e MATLAB;
- à Prof<sup>a</sup> Aparecida de Cássia Soares pela sua dedicação na correção do português ;
- ao Programa UNIPAN-BID pelo apoio financeiro oferecido, sem o qual não houvesse sido possível minha estadia na Universidade de São Paulo;
- à CAPES pelo apoio financeiro parcial;
- aos funcionários do setor de Radioterapia do HCFMRP pelo acesso às fontes de irradiação;
- e finalmente, a todos os colegas, docentes e funcionários do Departamento de Física e Matemática, não citados explicitamente, mas que, compartilharam sua vivência e ofereceram-me sua sincera amizade.

## Resumo

Realizou-se um estudo da otimização dos parâmetros de operação de um espectrômetro de ressonância paramagnética eletrônica para o registro de espectros de EPR de dosímetros de DL e L-alanina irradiados com radiação gama do  $^{60}\text{Co}$ , visando estabelecer-se um procedimento de dosimetria Alanina/EPR capaz de detectar na faixa de doses terapêuticas ( $\sim 1$  Gy).

Para lograr o anteriormente mencionado, fabricaram-se dosímetros com 80% em peso de alanina mais 20% em peso de parafina e com dimensões nominais de 4,7 mm de diâmetro e 12 mm de comprimento. Estudou-se a variação da amplitude do espectro de EPR de pastilhas irradiadas com a potência de microondas e com a amplitude de modulação do campo magnético.

Posteriormente, registraram-se espectros de EPR do primeiro e segundo harmônico de pastilhas irradiadas e não irradiadas com uma amplitude de modulação de 10 G e com um campo de varredura de 40 G, encontrando-se que para este valor de modulação, a amplitude do segundo harmônico não é desprezível em comparação ao primeiro harmônico e representa uma contribuição em amplitude ao redor de 38%. Na faixa de 1-20 Gy, a L-alanina mostrou ser 20% mais sensível que a DL-alanina. Na faixa de 0,05-1 Gy a sensibilidade de ambas é semelhante apresentado uma diferença de somente 3%. A amplitude do sinal de EPR para as pastilhas não irradiadas representou uma dose de 0,5 Gy e este valor estabelece o limite inferior de detecção do sistema.

## Abstract

An optimization of the operation parameters for an electron paramagnetic resonance (EPR) spectrometer was made for the acquisition of EPR signals from DL and L-alanine dosimeters irradiated with  $^{60}\text{Co}$  gamma radiation, with the aim of establish an Alanine/EPR dosimetry procedure capable to detect doses in the therapeutic range ( $\sim 1$  Gy).

To attain this aim, dosimeters with 80% weight of alanine and 20% weight of paraffin and nominal dimensions: 4,7 mm diameter and 12 mm length were made. A study of the variation of the EPR signal amplitude from irradiated alanine pellets with the microwave power and with the magnetic field modulation amplitude was made.

Later, EPR signals of first and second harmonic from irradiated and non-irradiated pellets were recorded with 10 G (1 mT) modulation amplitude and 40 G (4 mT) of scan width. With this overmodulation value was found that, the amplitude of the second harmonic is not small in comparison with the amplitude of the first harmonic and represent approximately 38% of the amplitude of the first harmonic. In the dose range of 1-20 Gy, the L-alanine was 20% more sensitive than the DL-alanine. In the dose range 0,05-1 Gy, the sensitive of both were similar showing a 3% difference only. The EPR signal amplitude from non-irradiated pellets represented a dose of 0,5 Gy, and this value fix the lower limit of detection for the Alanine/EPR dosimetric system.

# Índice

<b>Capítulo 1. Introdução.....</b>	<b>1</b>
<b>Capítulo 2. Interação da Radiação Eletromagnética Ionizante com a Matéria.....</b>	<b>5</b>
<b>2.1 Aspectos Gerais.....</b>	<b>5</b>
<b>2.2 Dispersão e Absorção Compton.....</b>	<b>6</b>
Processo de Colisão.....	7
Processo de Dispersão.....	8
Processo de Absorção.....	9
Secção de Choque por átomo.....	10
<b>2.3 Efeito Fotoelétrico.....</b>	<b>12</b>
Secção de Choque por átomo.....	13
Energias maiores de 2 MeV.....	13
Energias entre 0,35 – 2 MeV.....	13
Energias entre 0,1 – 0,35 MeV.....	14
Cálculo Relativístico.....	14
Cálculo Não Relativístico.....	14
Secção de Choque de Energia Transferida.....	14
<b>2.4 Produção de Pares.....</b>	<b>17</b>
Secção de Choque por átomo.....	18
Secção de Choque de Energia Transferida.....	18
<b>2.5 Combinação dos três processos.....</b>	<b>19</b>
Atenuação Exponencial.....	19
Coeficiente Mássico de Atenuação.....	21
Coeficiente Mássico de Absorção.....	22
Coeficiente Mássico de Transferencia de Energia.....	22
Coeficiente Mássico de Absorção de Energia.....	23
<b>2.6 Interação da Radiação Ionizante com a molécula de Alanina.....</b>	<b>24</b>
O aminoácido Alanina.....	24
Efeito da Radiação Ionizante sobre a alanina.....	25

<b>Capítulo 3. Dosimetria das Radiações.....</b>	<b>27</b>
<b>3.1 Aspectos Gerais.....</b>	<b>27</b>
<b>3.2 Características Gerais de um Dosímetro.....</b>	<b>28</b>
Caráter Absoluto.....	28
Precisão e Exatidão.....	28
Faixa de Dose.....	29
Sensibilidade.....	29
Fundo e Limite Inferior de Detecção da Faixa de Dose.....	29
Estabilidade.....	29
Pre-irradiação.....	29
Pós-irradiação.....	29
Dependência com a Energia.....	29
<b>3.3 Quantidades Físicas associadas a Dosimetria das Radiações.....</b>	<b>30</b>
Energia Cedida.....	30
Dose Absorvida.....	31
Fluência de Partículas.....	31
Fluência de Energia.....	31
Energia Transferida.....	32
Kerma.....	32
Exposição.....	34
<b>3.4 Equilíbrio de Partículas Carregadas (EPC).....</b>	<b>34</b>
Definição de EPC.....	34
<b>3.5 Teoria da Cavidade.....</b>	<b>36</b>
Teoria de Bragg-Gray.....	36
O Dosímetro e a Teoria da Cavidade.....	39
<b>3.6 Determinação da Dose Absorvida para Feixes Externos de Fótons.....</b>	<b>40</b>
<b>3.7 Características Dosimétricas do Sistema Alanina/EPR.....</b>	<b>41</b>
Curva Dose-Efeito.....	42
Limite Inferior de Detecção.....	42
Região de Linearidade.....	42
Região de Saturação.....	43
Dependência com a Energia.....	43
Fontes de Incertezas.....	43
Avaliação da Dose.....	44

<b>Capítulo 4. Fundamentos da Ressonância Paramagnética Eletrônica.....</b>	<b>45</b>
4.1 Aspectos Gerais.....	45
4.2 O fenômeno da ressonância paramagnética.....	45
4.3 Absorção de Energia e Relaxação Spin-Rede.....	48
4.4 Interação nuclear hiperfina.....	51
Interação com vários núcleos.....	53
4.5 Parte Experimental da Ressonância Paramagnética Eletrônica.....	55
Fonte do Campo Magnético Externo.....	56
Fonte de Microondas.....	56
Guia de Ondas e Cavidade Ressonante.....	57
Sistema de Detecção e Registro do Espectro.....	58
4.6 Formas de linha e largura.....	62
4.7 Espectro de EPR da alanina.....	64
<b>Capítulo 5. Materiais e Métodos.....</b>	<b>65</b>
5.1 Preparação dos dosímetros.....	65
5.2 Irradiação dos dosímetros.....	66
5.3 Parâmetros de operação do espectrômetro para a aquisição do espectro de EPR.....	68
Potência de Microondas.....	70
Amplitude de modulação do campo magnético.....	71
Posicionamento da amostra e Reproducibilidade do sinal de EPR.....	71
5.4 Espectro de EPR da alanina. Detecção do Primeiro e Segundo Harmônicos.....	71
5.5 Aplicação: Determinação de Curvas de Isodoses em Radioterapia... .....	72
<b>Capítulo 6. Resultados e Discussão dos dosímetros.....</b>	<b>74</b>
6.1 Preparação dos dosímetros.....	74
6.2 Aquisição dos espectros de EPR.....	74
Potência de microondas.....	74
Reproducibilidade do sinal de EPR.....	76
Amplitude de modulação do campo magnético.....	76
6.3 Espectro de EPR da alanina. Detecção do primeiro e segundo harmônicos.....	80



<b>Espectros para altas doses.....</b>	<b>80</b>
<b>Espectros para baixas doses.....</b>	<b>84</b>
<b>6.4 Curva Dose-Efeito.....</b>	<b>84</b>
<b>No caso de altas doses.....</b>	<b>84</b>
<b>No caso de baixas doses.....</b>	<b>87</b>
<b>Limite inferior de detecção.....</b>	<b>89</b>
<b>6.5 Aplicação: Determinação de Curvas de Isodoses em Radioterapia....</b>	<b>91</b>
<b>Capítulo 7. Conclusões Finais.....</b>	<b>93</b>
<b>Bibliografia.....</b>	<b>94</b>

## Capítulo 1. Introdução.

Os métodos tradicionais de dosimetria tem sido baseados nos efeitos da radiação sobre substâncias inorgânicas. Como alguns exemplos, podem-se mencionar a dosimetria de íons baseada na ionização em ar; a calorimetria, que consiste na medida do calor depositado em carbono e metais; a dosimetria de Fricke, baseada na variação da absorção ótica de uma solução de sulfato ferroso; a dosimetria termoluminescente, que consiste na luminescência dos sólidos quando aquecidos; a dosimetria de filmes fotográficos, onde o efeito da radiação mede-se pela produção de centros de imagem latente em grãos de AgBr; e a dosimetria utilizando diodos semicondutores, onde a radiação é detectada por uma mudança na corrente do diodo.

Por outro lado, o método de dosimetria que utiliza compostos orgânicos sólidos, particularmente aminoácidos, tem sido pouco desenvolvido embora, considera-se que este método talvez seja mais vantajoso já que, a resposta a radiação de moléculas biológicas está mais próxima daquela do tecido vivo do que a resposta à radiação de moléculas inorgânicas. O efeito da radiação sobre as substâncias orgânicas quantifica-se pela produção de radicais livres, os quais, em biomoléculas cristalinas, são produtos relativamente estáveis. Numerosos estudos tem sido feitos sobre a produção de radicais livres em substâncias orgânicas cristalinas irradiadas com raios  $\text{-X}$  e gama.

Um dos primeiros trabalhos sobre o efeito da radiação na alanina foi desenvolvido em 1956, quando naquele ano Van Roggen e outros (Van Roggen et. al., 1956) fizeram um estudo da ressonância de spin induzida por raios-X sobre um monocristal de L-alanina. Como uma continuação desse trabalho, em 1960, Miyagawa e Gordy (Miyagawa e Gordy, 1960) fizeram um estudo de ressonância paramagnética eletrônica de monocristais de L-alanina e D-alanina à temperatura ambiente conseguindo identificar o radical livre estável produzido pela radiação ionizante. Posteriormente, vários trabalhos foram feitos (Rotblat et. al., 1963; Snipes e Horan, 1967) pela técnica de ressonância paramagnética eletrônica para estudar a relação dose-efeito na produção de radicais livres induzidos pela radiação na alanina, encontrando-se que a curva não é linear para doses acima dos megarads ( $10^6$  rads ou  $10^4$  Gray) apresentando uma região de saturação.

Foi em 1962 que Bradshaw e outros, realizaram um dos primeiros trabalhos onde foi mostrado a potencialidade da alanina como dosímetro pela técnica de ressonância

paramagnética eletrônica (Bradshaw et. al., 1962). Eles escolheram a alanina por sua alta sensibilidade ao dano por radiação, por sua estabilidade e, por sua similaridade a sistemas biológicos na absorção de radiação. Em 1982, Regulla e Deffner fizeram um trabalho completo sobre o método de dosimetria alanina/EPR (Regulla e Deffner, 1982) utilizando a L-alanina e radiação gama do  $^{60}\text{Co}$ . Encontraram que a alanina possui características desejáveis para ser usado como dosímetro e, sugeriram que esta técnica de dosimetria pode ser utilizada em diversas aplicações como por exemplo, em radioterapia.

A técnica de dosimetria alanina/EPR tem sido usada com muito sucesso para dosimetria de altas doses (100 Gy a 100 kGy), por exemplo: aplicações industriais da radiação, aceleradores de alta energia, etc.... e, desde 1989 tem-se reportado vários trabalhos sobre este assunto (Van Laere et. al. 1989; Wieser e Regulla, 1989; Miller et. al. 1989; Coninckx et. al, 1989; Bartolotta, A. et. al, 1989 ).

Um dos primeiros trabalhos reportados aplicando a técnica de alanina/EPR em radioterapia foi o trabalho de Chu e outros (Chu et. al., 1989) onde foram realizadas medições de doses profundas com elétrons de alta energia produzidos por um acelerador linear de 21 MeV. Neste trabalho reportou-se que a técnica de dosimetria alanina/EPR é capaz de detectar doses tão pequenas como 1 Gy e, que a curva dose-efeito foi linear numa faixa de dose de 1-10 Gy. No trabalho de Nette e outros concluiu-se que aplicando a mesma técnica, pode-se detectar, em radioterapia com  $^{60}\text{Co}$ , um nível de dose até de 1 Gy, no entanto, cuidados tem que se tomar na determinação de doses menores de 10 Gy (Nette et. al., 1993). Bartolotta e outros estudaram as diferentes fontes de incertezas na avaliação da dose absorvida em radioterapia com  $^{60}\text{Co}$ , e com a técnica de alanina/EPR, encontrando um limite inferior de detecção de 0,1 Gy (Bartolotta et. al., 1993). Usando dosímetros de L-alanina (85%) misturado com parafina (15%) e irradiados com radiação gama do  $^{60}\text{Co}$ , Wieser e outros encontraram uma curva dose-efeito linear na faixa de 0,5 Gy até 1 kGy com a subtração do sinal de fundo, embora, este sinal de fundo representasse uma dose zero entre 0,15-0,70 Gy para diferentes lotes de dosímetros (Wieser et. al., 1993).

O primeiro ensaio clínico para determinar a dose de radiação recebida por um paciente em radioterapia usando a técnica de alanina/EPR foi reportado no trabalho de Kudynski e outros (Kudynski et. al., 1993). Irradiando dosímetros de L-alanina e DL-alanina à uma dose de 7 Gy aproximadamente, de  $^{60}\text{Co}$ , eles encontraram que a L-alanina é mais sensível porque produzem-se mais radicais para uma mesma dose que na DL-alanina. Por

este motivo, usaram a L-alanina e encontraram que numa faixa de doses de 0,6-8 Gy, a curva dose-efeito é linear com um coeficiente de correlação  $r = 0,9995$ . Seu limite inferior de detecção reportado foi de 0,6 Gy (para a L-alanina). Usando dosímetros de alanina (90%) mais parafina (10%), Sharpe e outros reportaram um limite inferior de detecção de 5 Gy (Sharpe et al, 1996). Schaeken e Scalliet irradiaram dosímetros de L-alanina com radiação gama do  $^{60}\text{Co}$  numa faixa de doses de 0,3-200 Gy encontrando que a intensidade do espectro de EPR aumenta linearmente com a dose e, que os sinais de fundo de dosímetros não irradiados representam uma dose que variou entre 0,44-1,7 Gy dependendo do fabricante do dosímetro (Schaeken e Scalliet, 1996). Também, neste mesmo trabalho de Schaeken e Scalliet, utilizaram-se os dosímetros de alanina para determinar curvas de distribuição de dose ao redor de uma fonte linear de  $^{192}\text{Ir}$  e, para realizar dosimetria *in vivo* em braquiterapia. Kuntz e outros utilizaram dosímetros de L-alanina para fazer mapeamento de dose numa superfície com raios-X, para determinar curvas de doses profunda com raios-X de 25 MeV e, em braquiterapia (Kuntz et al, 1996). No trabalho de Mehta e Girzikowsky sugere-se que o sistema de dosimetria alanina/EPR pode ser aplicado a radioterapia para doses acima de 6 Gy (Mehta e Girzikowsky, 1996). Variando a potência de microondas de 2-5 mW e, a amplitude de modulação de 6-12,5 G, Juncheng e Zaiyong encontraram que o sinal de EPR, para dosímetros de alanina/parafina sem irradiar, representou uma dose de 0,1-0,2 Gy (Juncheng e Zaiyong, 1996). Também encontraram que o coeficiente de variação para medições de reproducibilidade, retirando e voltando a colocar a amostra na cavidade, foi de 7% para uma dose de 2,5 Gy e de 0,42% para uma dose de 100 Gy. Eles recomendaram que seu sistema de dosimetria pode determinar doses acima de 5 Gy. Callens e outros compararam os espectros de EPR da L-alanina e da DL-alanina, encontrando que, na faixa de doses de 100 Gy até centenas de kGy, a L-alanina tem uma produção de radicais 25% maior que a DL-alanina (Callens et al, 1996). Irradiando dosímetros de L-alanina (85%) mais parafina (15%) e utilizando o método da transformada de Fourier rápida (Fast Fourier Transform), Ruckerbauer e outros registraram sinais de EPR de dosímetros irradiados com doses até de 0,05 Gy (Ruckerbauer et al, 1996).

Devido à utilização da detecção síncrona em EPR, na totalidade dos trabalhos mencionados anteriormente registrou-se a primeira derivada do sinal de absorção na tomada do espectro de EPR. Em condições de não saturação da potência de microondas e de modulação compatível com a largura dos sinais a serem detectados, a amplitude pico a pico pode ser utilizada para quantificar a concentração dos centros paramagnéticos presentes na amostra e correlaciona-la com a dose de radiação, conforme discutido nos capítulos 3 e 4.

Recentemente, a American Association of Testing Materials (ASTM) divulgou procedimentos para a medida do sinal de EPR de dosímetros de alanina onde uma modulação de campo magnético com amplitude de 10 G (1 mT) é recomendada (ASTM E 1607-94). Essa intensidade é elevada quando comparada à largura de linha dos sinais da alanina irradiada levando a uma sobremodulação do espectro. Embora do ponto de vista dos pressupostos físicos de resolução espectral, essa condição não seja a ideal, do ponto de vista metrológico (medida de grandeza física, reproducibilidade e transferência de método) parece ser aceitável. Tendo em vista o aumento da intensidade do sinal advindo da sobremodulação, a utilização da primeira derivada do sinal de absorção ou primeiro harmônico da expansão em série de potências pode ser feita da linha de absorção em presença de um campo de modulação. Como esse campo de modulação não é pequeno, existe a possibilidade que outros termos dessa série sejam também de amplitude não desprezível. Uma questão que pode ser colocada é: por que não utilizar os harmônicos de ordem superior a um para aumentar a relação sinal/ruído? De fato em outros instrumentos, como algumas configurações de magnetômetros de fluxo saturado (fluxgate), tem-se empregado um esquema de detecção de todos os harmônicos pares aumentando dessa forma a relação sinal/ruído. No caso dos fluxgates, um circuito eletrônico somador é utilizado para acumular todo o sinal possível. No caso em questão, o amplificador lock-in poderia ser utilizado para detectar todos os harmônicos que depois seriam combinados numericamente ou de alguma outra maneira. No momento, existem amplificadores lock-in baseados em processadores digitais de sinais (DSP) que podem realizar simultaneamente a medida de diversos harmônicos tornando essa possibilidade relativamente fácil de ser implementada. Com o objetivo de estudar essa situação experimental, pretendeu-se neste trabalho desenvolver uma técnica de dosimetria alanina/EPR baseada na detecção de espectros de EPR do primeiro e do segundo harmônicos de pastilhas de alanina irradiadas a diferentes doses. Também, foi feita uma comparação da curva doses-efeito de dosímetros de L-alanina e DL-alanina em relação a linearidade, sensibilidade e limite inferior de detecção. Para obter o mencionado anteriormente, foi realizado um estudo de otimização dos parâmetros do equipamento de EPR no registro dos espectros, principalmente, a potência de microondas e a amplitude de modulação do campo magnético visando a possibilidade de estabelecer um sistema de alanina/EPR capaz de detectar baixas doses de radiação (pelo menos, até 1 Gy).

## Capítulo 2. Interação da Radiação Eletromagnética Ionizante com a Matéria.

### 2.1 Aspectos Gerais.

Quando um feixe de fótons incide sobre um material, interage com os átomos deste, e pode experimentar uma perda total, parcial, ou não perder nada de sua energia. Existem basicamente, dependendo da energia dos fótons, dois tipos de interações: dispersão ou absorção de energia. Entre os processos de dispersão estão: Dispersão Rayleigh, Dispersão Compton, Dispersão Thomson, e Dispersão Nuclear Ressonante. Entre os processos de absorção estão: Absorção Compton, Efeito Fotoelétrico, Produção de Pares, e Fotodesintegração. Na faixa de energia de 10keV a 50MeV, os processos mais importantes são o Compton, fotoelétrico e produção de pares (ver figura 2.1), já que eles resultam na transferência de energia dos fótons para os elétrons, sendo estes últimos, os que repartem essa energia ao material. Segundo a figura 2.1, a predominância relativa do efeito fotoelétrico, Compton, e produção de pares depende tanto da energia dos fótons como do número atômico  $Z$  do material. Para baixas energias predomina o efeito fotoelétrico; o Compton predomina a energias intermediárias; e a produção de pares domina a altas energias. Para valores pequenos de  $Z$ , a região de efeito Compton é muito ampla, no entanto essa região vai diminuindo à medida que  $Z$  aumenta.

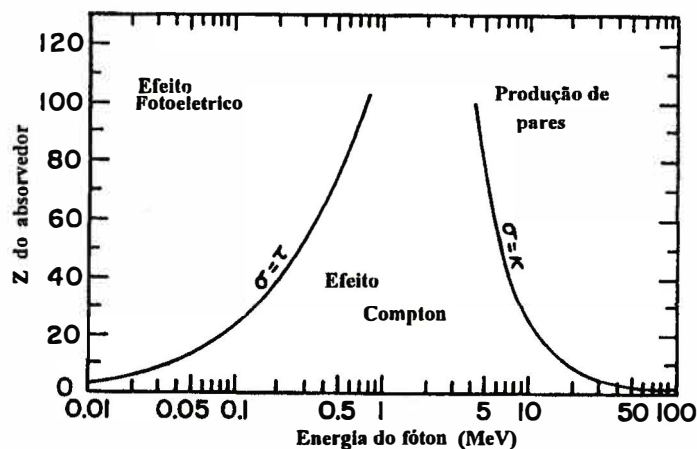


Figura 2.1 Importância relativa dos três tipos de interações em função do número  $Z$  do material e da energia do fóton incidente. (Modificada de Evans, 1955/1982)\*.

\* Nas figuras que se seguem a referência entre parêntesis indica a fonte de figura modificada.

## 2.2 Dispersão e Absorção Compton.

Neste processo, ilustrado na figura 2.2, um fóton incidente de energia  $h\nu$  e momentum inicial  $h\nu/c$ , interage com um elétron do meio, que se considera estacionário e de energia de ligação desprezível, e não tem energia cinética nem momentum iniciais. Depois da interação, o elétron sai com um ângulo  $\theta$ , com energia cinética  $T$  e momentum  $p$ . O fóton é dispersado com ângulo  $\phi$ , com energia inferior  $h\nu'$  ( $h\nu' < h\nu$ ) e momentum  $h\nu'/c$ .

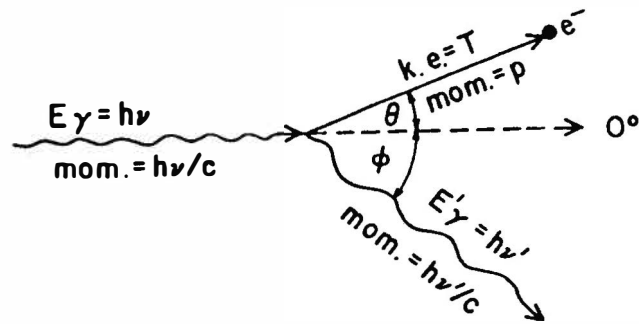


Figura 2.2 Diagrama esquemático da interação Compton. (Attix, 1986).

Para encontrar as energias do fóton e elétron dispersados, usam-se as leis de conservação de energia e momentum. Para a conservação da energia tem-se que:

$$h\nu = T + h\nu' \quad (2.1)$$

que equivale a:

$$h\nu = m_0 c^2 \left( \frac{1}{\sqrt{1 - \beta^2}} - 1 \right) + h\nu' \quad (2.2)$$

onde  $m_0$  é a massa em repouso do elétron, e  $\beta = v/c$ .

Para a conservação do momentum tem-se que:

(paralelo à direção do fóton incidente)

$$\frac{h\nu}{c} = \frac{m_0 c \beta}{(1 - \beta^2)^{1/2}} \cos \theta + \frac{h\nu'}{c} \cos \phi \quad (2.3)$$

(perpendicular à direção de incidência):

$$0 = \frac{m_0 c \beta}{(1 - \beta^2)^{1/2}} \sin \theta - \frac{h \nu'}{c} \sin \phi \quad (2.4)$$

Resolvendo as equações (2.2), (2.3) e (2.4) temos:

Energia do fóton dispersado:

$$h \nu' = \frac{h \nu}{1 + \alpha (1 - \cos \phi)} \quad (2.5)$$

onde  $\alpha = h \nu / m_0 c^2$ .

Energia cinética do elétron dispersado:

$$T = h \nu \left[ 1 - \frac{1}{1 + \alpha (1 - \cos \phi)} \right] \quad (2.6)$$

O ângulo em que é dispersado o elétron vem dado por:

$$\cot \theta = \left( 1 + \frac{h \nu}{m_0 c^2} \right) \tan \left( \frac{\phi}{2} \right) \quad (2.7)$$

As equações (2.5), (2.6) e (2.7) só estabelecem como os diferentes parâmetros ( $h \nu$ ,  $h \nu'$ ,  $T$ ,  $\theta$ ,  $\phi$ ) relacionam-se entre si quando uma interação tipo Compton acontece, mas não falam nada acerca da probabilidade de ocorrência da interação.

### Processo de Colisão:

A secção de choque diferencial de colisão Compton por elétron e por ângulo sólido (equação de Klein-Nishina) representa a probabilidade por unidade de ângulo sólido e por elétron de que um fóton incidente de energia  $h \nu$  seja dispersado num ângulo  $\phi$  quando atravessa um material absorvedor de espessura tal que contem um elétron/cm<sup>2</sup> e é dada por:

$$\frac{d(\sigma_e)}{d\Omega} = \frac{r_0^2}{2} \left( \frac{\nu'}{\nu} \right)^2 \left( \frac{\nu}{\nu'} + \frac{\nu'}{\nu} - \sin^2 \phi \right) \quad (2.8)$$



onde  $r_0 = e^2 / m_0 c^2$  é o raio clássico do elétron.

A soma das probabilidades de todas as possíveis colisões entre o fóton incidente e cada elétron livre é chamada *secção de choque total de colisão Compton por elétron*  ${}_e\sigma$  :

$${}_e\sigma = \int_0^\pi \frac{d({}_e\sigma)}{d\Omega} d\Omega = \int_0^\pi \frac{d({}_e\sigma)}{d\Omega} 2\pi \sin \phi d\phi \quad (2.9)$$

Substituindo a equação (2.8) na (2.9) e integrando temos que:

$${}_e\sigma = 2\pi r_0^2 \left\{ \frac{1+\alpha}{\alpha^2} \left[ \frac{2(1+\alpha)}{1+2\alpha} - \frac{1}{\alpha} \ln(1+2\alpha) \right] + \frac{1}{2\alpha} \ln(1+2\alpha) - \frac{1+3\alpha}{(1+2\alpha)^2} \right\} \text{ (cm}^2\text{/elétron)} \quad (2.10)$$

${}_e\sigma$  interpreta-se como a probabilidade de remover um fóton de energia  $h\nu$  do feixe colimado incidente enquanto atravessa um material absorvedor que contém 1 elétron/cm<sup>2</sup>.

### Processo de Dispersão:

A secção de choque diferencial de dispersão Compton por elétron e por ângulo sólido é dada por:

$$\frac{d({}_e\sigma_s)}{d\Omega} = \frac{\nu'}{\nu} \frac{d({}_e\sigma)}{d\Omega} \quad (2.11)$$

a qual representa a fração da energia incidente  $h\nu$  que é dispersada como energia  $h\nu'$  por ângulo sólido  $d\Omega$ . Introduzindo a equação (2.8) na (2.11) temos:

$$\frac{d({}_e\sigma_s)}{d\Omega} = \frac{r_0^2}{2} \left( \frac{\nu'}{\nu} \right)^3 \left( \frac{\nu}{\nu'} + \frac{\nu'}{\nu} - \sin^2 \phi \right) \quad (2.12)$$

Integrando a equação (2.12) tem-se a *secção de choque total de dispersão Compton*  ${}_e\sigma_s$  :

$${}_e\sigma_s = \int_0^\pi \frac{d({}_e\sigma_s)}{d\Omega} d\Omega = \int_0^\pi \frac{d({}_e\sigma_s)}{d\Omega} 2\pi \sin \phi \cdot d\phi \quad (2.13)$$

$${}_{e}\sigma_s = \pi r_0^2 \left[ \frac{1}{\alpha^3} \ln(1+2\alpha) + \frac{2(1+\alpha)(2\alpha^2 - 2\alpha - 1)}{\alpha^2(1+2\alpha)^2} + \frac{8\alpha^2}{3(1+2\alpha)^3} \right] \text{ (cm}^2/\text{elétron)} \quad (2.14)$$

${}_{e}\sigma_s$  interpreta-se como a probabilidade de dispersar um fóton a uma energia  $h\nu'$  depois de sofrer uma colisão Compton num material que contém 1 elétron/cm<sup>2</sup>.

### Processo de Absorção:

A secção de choque diferencial de absorção Compton por elétron e por ângulo sólido é dada por:

$$\frac{d({}_{e}\sigma_{tr})}{d\Omega} = \frac{T}{h\nu} \frac{d({}_{e}\sigma)}{d\Omega} \quad (2.15)$$

a qual representa a fração de energia incidente  $h\nu$  que é absorvida pelo elétron como energia cinética  $T$  por ângulo sólido  $d\Omega$ . Para ser mais preciso, representa a fração de energia incidente que é transferida ( $tr$ ) aos elétrons do material na forma de energia cinética. Esta energia transferida é a que contribuirá ao *kerma* e por conseguinte, a *dose absorvida*. Introduzindo as equações (2.6) e (2.8) na (2.15) temos:

$$\frac{d({}_{e}\sigma_{tr})}{d\Omega} = \left[ 1 - \frac{1}{1+\alpha(1-\cos\phi)} \right] \frac{r_0^2}{2} \left( \frac{\nu'}{\nu} \right)^2 \left( \frac{\nu}{\nu'} + \frac{\nu'}{\nu} - \sin^2\phi \right) \quad (2.16)$$

Integrando a equação (2.16) tem-se a *secção de choque total de absorção Compton*  ${}_{e}\sigma_{tr}$ :

$${}_{e}\sigma_{tr} = \int_0^\pi \frac{d({}_{e}\sigma_{tr})}{d\Omega} d\Omega = \int_0^\pi \frac{d({}_{e}\sigma_{tr})}{d\Omega} 2\pi \sin\phi \cdot d\phi \quad (2.17)$$

$${}_{e}\sigma_{tr} = 2\pi r_0^2 \left[ \frac{2(1+\alpha)^2}{\alpha^2(1+2\alpha)} - \frac{1+3\alpha}{(1+2\alpha)^2} - \frac{(1+\alpha)(2\alpha^2 - 2\alpha - 1)}{\alpha^2(1+2\alpha)^2} - \frac{4\alpha^2}{3(1+2\alpha)^3} - \left( \frac{1+\alpha}{\alpha^3} - \frac{1}{2\alpha} + \frac{1}{2\alpha^3} \right) \ln(1+2\alpha) \right] \text{ (cm}^2/\text{elétron)} \quad (2.18)$$

$e\sigma_{tr}$  representa a energia média transferida a todos os elétrons dispersados no material. Também,  $e\sigma_{tr}$  é conhecida como a *secção de choque de Klein-Nishina de energia transferida* para a absorção Compton.

### Secção de Choque por átomo:

A energia total removida do feixe de fótons monoenergético incidente por colisões Compton é medida por  $e\sigma$ . A energia média dispersada pelos fótons dispersados é dada por  $e\sigma_s$ , e a energia média transferida aos elétrons dispersados (ou absorvida pelos elétrons) é dada por  $e\sigma_{tr}$ . Por conservação da energia tem-se que:

$$e\sigma = e\sigma_{tr} + e\sigma_s \quad (\text{cm}^2/\text{elétron}) \quad (2.19).$$

A equação (2.10) para  $e\sigma$  é mostrada na figura 2.3. Desta figura nota-se que  $e\sigma$  diminui gradualmente com a energia do fóton incidente ( $h\nu$ ) aproximandose a dependência  $e\sigma \propto (h\nu)^{-1}$ . Por outro lado,  $e\sigma$  é praticamente independente do número atômico  $Z$  do meio, já que foi assumido uma interação com um elétron “livre”; e também é proporcional à densidade volumétrica ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ). Desta forma, a *secção de choque Klein-Nishina por átomo* é:

$$a\sigma = Z e\sigma \quad (\text{cm}^2/\text{átomo}) \quad (2.20)$$

onde  $Z$  expressa-se em elétrons/átomo.

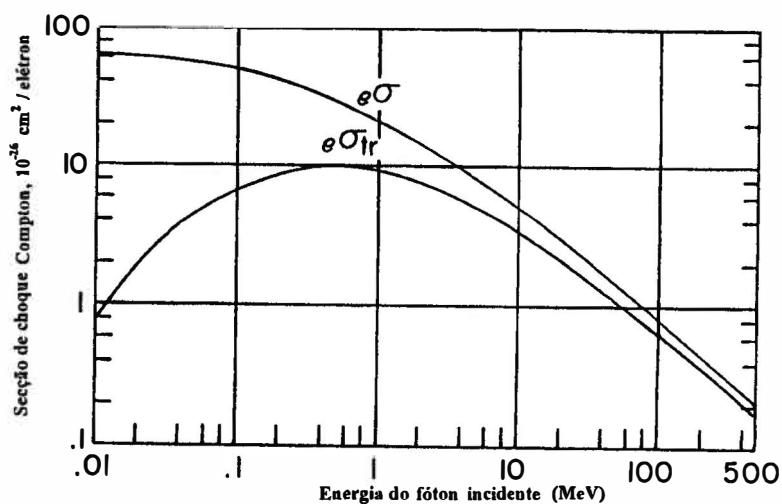


Figura 2.3 Secção de choque Compton por elétron e Secção de choque de energia transferida por elétron em função da energia. (Attix, 1986).

$e\sigma_{tr}$  também mostra-se na figura 2.3, onde nota-se que atinge um máximo para  $h\nu = 0.5$  MeV. A diferença vertical entre as duas curvas representa a secção de choque  $e\sigma_s$  (segundo a equação 2.19). A secção de choque por átomo neste caso seria:

$${}_a\sigma_{tr} = Z e\sigma_{tr} \quad (\text{cm}^2/\text{átomo}) \quad (2.21).$$

A fração média da energia dos fótons incidentes dada aos elétrons é expressada como:

$$\frac{\bar{T}}{h\nu} = \frac{e\sigma_{tr}}{e\sigma} \quad (2.22)$$

Da equação (2.22) pode-se obter a energia média dos elétrons em recuo gerados por fótons incidentes de energia  $h\nu$  no processo Compton:

$$\bar{T} = h\nu \frac{e\sigma_{tr}}{e\sigma} \quad (2.23)$$

A razão da equação (2.22) mostra-se graficamente na figura 2.4 (na parte direita). Para baixas energias, a razão tende a zero e por conseguinte,  $\bar{T} \rightarrow 0$ . Para  $h\nu = 1.6$  MeV, a razão é igual a 0.5 e  $\bar{T} = 0.8$  MeV.

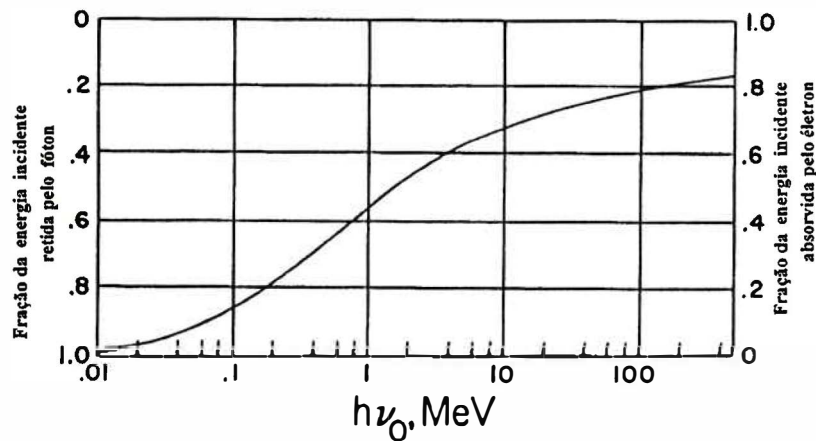


Figura 2.4 Fração média da energia do fóton incidente dada ao elétron em recuo (lado direito). Fração média da energia do fóton incidente retida pelo fóton espalhado (lado esquerdo). (Attix, 1986).

### 2.3 Efeito Fotoelétrico.

Neste processo, um fóton incidente de energia  $h\nu$  pode interagir com o átomo como um todo e ceder sua energia total a um dos elétrons mais fortemente ligados ao núcleo. O elétron é liberado (e chamado de fotoelétron) do átomo com uma energia cinética  $T$  dada pela expressão:

$$T = h\nu - E_b - T_a \quad (2.24)$$

onde  $E_b$  é a energia de enlace do elétron e  $T_a$  a energia cinética do átomo em recuo (ver figura 2.5). A energia cinética  $T$  do fotoelétron é independente de seu ângulo de dispersão  $\theta$ .

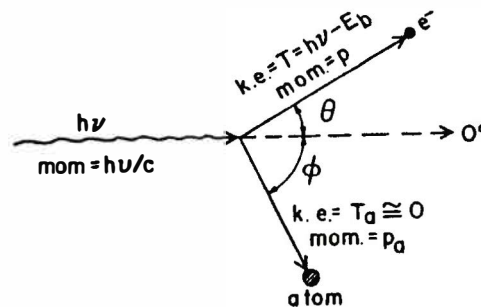


Figura 2.5 Cinemática do efeito fotoelétrico. (Attix, 1986).

A presença do núcleo é necessária para conservar o momentum, embora, a transferência de energia ao núcleo seja desprezível ( $T_a \cong 0$ ). A probabilidade de ocorrência desta interação é maior para fótons incidentes de baixa energia, e para aqueles elétrons mais fortemente ligados. Aproximadamente, 80% das interações envolvem elétrons da camada K. Para que ocorra a interação, a energia do fóton incidente deve exceder a energia de ligação do elétron, ou seja:  $h\nu > E_b$ . Como o efeito fotoelétrico deixa uma lacuna na camada interna do átomo, este processo sempre está acompanhado por a emissão de raios-X fluorescentes ou por elétrons Auger. Estes raios-X tem uma ampla faixa de energia: nos materiais de  $Z$  grande, as energias podem exceder 100 keV, enquanto que para materiais de  $Z$  pequeno, as energias são da ordem de 10-100 keV (Morgan & Turner 1973).

### Secção de Choque por átomo:

A probabilidade de ocorrência da interação fotoelétrica é descrita pela *secção de choque por átomo*  ${}_a\tau$  expressada em  $\text{cm}^2/\text{átomo}$ . Derivações teóricas da secção de choque para o efeito fotoelétrico são muito mais difíceis e tediosas que para o efeito Compton devido a que deve ser usada a equação relativista de Dirac para um elétron ligado (Attix 1986, Evans 1972). Não existe uma equação simples para a secção diferencial de choque fotoelétrica que corresponda à fórmula de Klein-Nishina (Attix 1986). Contudo, no artigo de Davisson e Evans (1952) apresenta-se um resumo de todos os trabalhos teóricos feitos até essa data, para o cálculo aproximado da secção de choque fotoelétrica por átomo que envolvem um elétron da camada K ( ${}_a\tau_K$ ). Os resultados desses cálculos dividem-se em três regiões de energia: energias maiores de 2 MeV; energias entre 0.35 – 2 MeV; e energias de 0.1 – 0.35 MeV.

#### Energias maiores de 2 MeV:

Para esta faixa de energia obtém-se o resultado:

$${}_a\tau_K = Z^5 n \frac{(3/2)\varphi_0(1/137)^4}{\eta^{2\eta^2} e^{\eta(\pi-2\eta)}} \left\{ (k'_0)^3 \varepsilon n^4 \left[ \frac{4}{3\varepsilon} + \frac{\varepsilon-2}{\varepsilon+1} \left( 1 + \frac{1}{2\varepsilon k'_0} \ln \frac{\varepsilon-k'_0}{\varepsilon+k'_0} \right) \right] \right\} \quad (2.25)$$

onde  ${}_a\tau_K$  é a secção de choque fotoelétrica ( $\text{cm}^2/\text{átomo}$ ) devido a absorção por dois elétrons da camada K;  $Z$  é o número atômico;  $n$  é  $mc^2/h\nu$ ;  $1/137$  é  $2\pi e^2/hc$  (constante de estrutura fina);  $\varphi_0$  é  $8r_0^2/3$  (secção de choque Thomson);  $\varepsilon = 1/n + 1/(1-\eta^2)$  é a energia total do fotoelétron em unidades de  $mc^2$ ;  $\eta$  é  $Z/137$ ;  $k'_0$  é o momentum do fotoelétron (em unidades de  $mc^2$ ) vezes  $c$ . Para obter a secção de choque por átomo  ${}_a\tau$  a partir de  ${}_a\tau_K$  multiplica-se esta última por  $5/4$  para incluir os efeitos das camadas mais externas já que 80% das interações envolvem elétrons da camada K.

#### Energias entre 0.35 – 2 MeV:

Neste caso os autores fazem um cálculo rigoroso assumindo que só as interações de intercâmbio entre elétrons atômicos podem ser desprezadas. Cada elétron K é tratado em separado e o sistema consiste de um núcleo fixo e um elétron K. Então, para achar  ${}_a\tau_K$ , multiplica-se o resultado por 2. Segundo os autores, não se pode dar uma fórmula simples para a secção de choque em função da energia  $h\nu$  e o número atômico  $Z$  porque o cálculo envolve funções hipergeométricas (Davisson & Evans, 1952).

### Energias de 0.1 – 0.35 MeV:

#### Cálculo Relativístico:

$${}_a\tau_K = \frac{3}{2}\varphi_0 \frac{Z^5}{(137)^4} n^5 (\gamma^2 - 1)^{\frac{3}{2}} \left[ \frac{4}{3} + \frac{\gamma(\gamma - 2)}{\gamma + 1} \left( 1 - \frac{1}{2\gamma(\gamma^2 - 1)^{1/2}} \ln \frac{\gamma + (\gamma^2 - 1)^{1/2}}{\gamma - (\gamma^2 - 1)^{1/2}} \right) \right] \quad (2.26)$$

onde  $\gamma = \frac{1}{(1 - \beta^2)^{1/2}} = \frac{h\nu - E_b + m_0c^2}{m_0c^2} = \text{energia total do elétron/ energia em repouso.}$

#### Cálculo Não Relativístico:

$${}_a\tau_K = \varphi_0 Z^5 \left( \frac{1}{137} \right)^4 4\sqrt{2}(n)^{7/2} \quad (2.27).$$

Na região de energia  $h\nu \cong 0.1 \text{ MeV}$  e  $h\nu \leq 0.1 \text{ MeV}$ , onde o efeito fotoelétrico chega a ser mais importante, a secção de choque atômica total ( ${}_a\tau$ ) aproxima-se a:

$${}_a\tau \sim \frac{Z^4}{(h\nu)^3} \quad (\text{cm}^2/\text{átomo}) \quad (2.28).$$

O comportamento da equação (2.28) observa-se na figura 2.6.

#### Secção de Choque de Energia Transferida:

Para conhecer a secção de choque de energia transferida por átomo no efeito fotoelétrico  ${}_a\tau_{tr}$ , deve-se determinar a fração de energia do fóton incidente ( $h\nu$ ) que é transferida ao fotoelétron. Esta fração pode ser calculada com ajuda da equação (2.24) e é dada por:

$$\frac{T}{h\nu} = \frac{h\nu - E_b}{h\nu} \quad (2.29)$$

já que  $T_a \cong 0$ . Não obstante, a expressão (2.29) é uma primeira aproximação da fração total de  $h\nu$  que é transferida a todos os elétrons. A energia de enlace ( $E_b$ ) deve ser levada em conta já que representa a energia de excitação no átomo residual depois de ser liberado o fotoelétron. Esta energia pode aparecer como raios-X fluorescentes ou elétrons Auger.

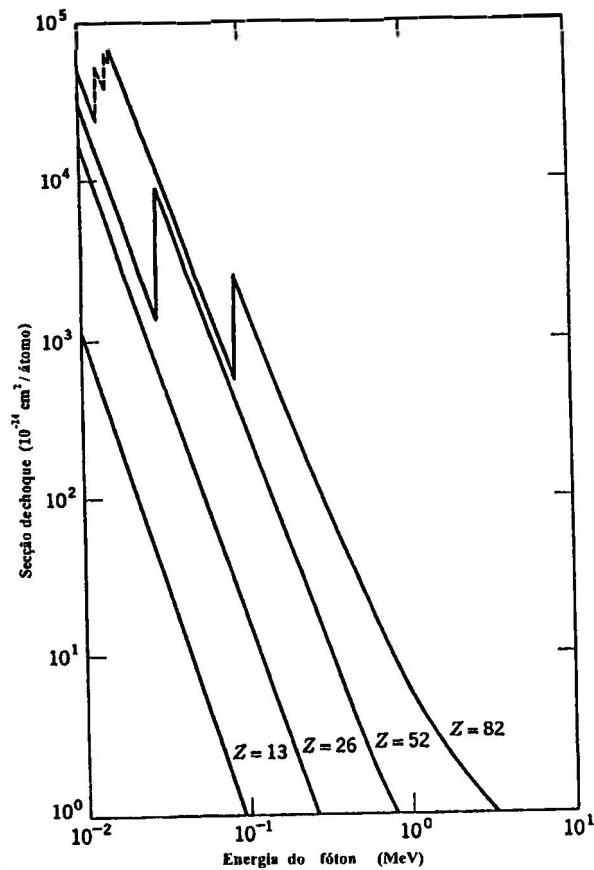


Figura 2.6 Variação da secção de choque atômica total com a energia do fóton incidente e o Z do material. (Morgan e Turner, 1973).

Segundo o artigo de Berger (1961), ao levar em conta os fotoelétrons liberados nas outras camadas (L, M, N,...), a secção de choque total por átomo ( $a\tau$ ) para o efeito fotoelétrico fica como:

$$a\tau = a\tau_K + a\tau_L + a\tau_M + a\tau_N + \dots \quad (2.30).$$

Suponha-se agora que um fóton incidente de energia  $h\nu$  é absorvido, e um fotoelétron é liberado da  $n$ -ésima camada do átomo. O átomo ganha, portanto, uma energia de excitação característica  $\eta_n$  da camada, e o fotoelétron sai com energia cinética  $h\nu - \eta_n$ . Quase toda a



energia de excitação do átomo é liberada em forma de radiação característica ou de elétrons Auger. Então, a fração média da energia do fóton ( $h\nu$ ) convertida em energia cinética dos elétrons depois de ocorrer a interação fotoelétrica é:

$$f_{\tau}^n = \frac{1}{h\nu} (h\nu - \eta_n) [1 - G_{br}(h\nu - \eta_n)] + \frac{\eta_n}{h\nu} \left( 1 - \frac{F_n \overline{E}_n}{\eta_n} \right) \quad (2.31)$$

onde  $F_n$  representa a emissão média fluorescente;  $\overline{E}_n$  é a energia média de fótons fluorescentes;  $F_n \overline{E}_n$  é a quantidade média de energia que transforma-se em fluorescência;  $\left( 1 - \frac{F_n \overline{E}_n}{\eta_n} \right)$  representa os elétrons Auger;  $G_{br}(h\nu - \eta_n)$  é a fração média da energia cinética do elétron que perde-se como *bremsstrahlung*;  $1 - G_{br}(h\nu - \eta_n)$  é a fração que perde-se por colisão (energia cinética disponível). A correção por *bremsstrahlung* é importante para elementos pesados. Se despreza-se o *bremsstrahlung*, na equação (2.31),  $G_{br}(h\nu - \eta_n) = 0$  e esta equação se reduz a:

$$f_{\tau}^n = 1 - \frac{F_n \overline{E}_n}{h\nu} \quad (2.32).$$

A equação (2.31) representa a equação (2.29) mas, com as correções mencionadas anteriormente. No trabalho de Hubbell (1977) aparece uma expressão similar à equação (2.31), só que ele leva em conta o número médio de lacunas criadas na camada ( $n + 1$ ) por as lacunas primárias da camada  $n$ . Segundo Berger (1961) e Hubbell (1977), como cada uma das camadas tem um fator de conversão  $f_{\tau}^n$  expressado pela equação (2.31) e por conseguinte eles expressam a equação (2.30) da forma:

$${}_a\tau f_{\tau} = {}_a\tau_K f_{\tau}^K + {}_a\tau_L f_{\tau}^L + {}_a\tau_M f_{\tau}^M + \dots \quad (2.33).$$

Nesta última equação,  ${}_a\tau f_{\tau}$  representa a fração total da energia incidente ( $h\nu$ ) transferida aos fotoelétrons, ou seja:  ${}_a\tau_{tr}$ .

## 2.4 Produção de Pares.

Quando um fóton cuja energia é maior que duas vezes a energia em repouso de um elétron ( $h\nu > 2m_0c^2 = 1.022 \text{ MeV}$ ), interage com o campo elétrico do núcleo atômico, é absorvido totalmente e formam-se duas partículas: o elétron e o pósitron, cumprindo-se a relação:

$$h\nu = T_+ + T_- + 2m_0c^2 \quad (2.34)$$

onde  $T_+$  é a energia cinética do pósitron, e  $T_-$  é a energia cinética do elétron. O átomo participa na conservação do momentum mas recebe uma quantidade desprezível de energia cinética  $T_a \cong 0$  (ver figura 2.7).

Tanto o elétron como o pósitron produzidos viajarão através da matéria perdendo suas respectivas energias cinéticas em processos de colisão (ionização e excitação) e na forma de bremsstrahlung até alcançar o repouso. No caso do pósitron, ao interagir com um outro elétron do meio pode sofrer uma aniquilação em repouso ou uma aniquilação em vôo. Na aniquilação em repouso o pósitron primeiro atinge o estado de repouso e logo interage

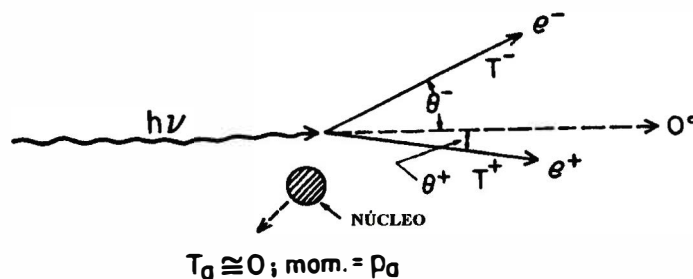


Figura 2.7 Produção de pares no campo de força de Coulomb de um núcleo atômico. (Attix, 1986).

com o elétron, entanto que na aniquilação em vôo, o pósitron pode interagir com o elétron ainda sem atingir o estado de repouso. Em ambos processos de aniquilação produzem-se dois fótons chamados de radiação de aniquilação, ejetados em direções opostas, cada um com 0.511 MeV.

### Secção de Choque por átomo:

A análise teórica do processo de produção de pares foi feito por Bethe e Heitler usando a *aproximação de Born* (Morgan & Turner, 1973), a qual consiste em considerar a interação entre o elétron e o núcleo como uma perturbação pequena. Quando desprezam-se os efeitos por blindagem dos elétrons atômicos, a secção de choque por átomo ( ${}_a\kappa$ ) para a região de energias entre  $m_0c^2 \ll h\nu \ll 137m_0c^2Z^{1/3}$  é dada por :

$${}_a\kappa = \frac{1}{137} \left( \frac{e^2}{m_0c^2} \right)^2 Z^2 \left( \frac{28}{9} \ln \frac{2h\nu}{m_0c^2} - \frac{218}{27} \right) \quad (2.35)$$

No caso de blindagem completa obtém-se:

$${}_a\kappa = \frac{1}{137} \left( \frac{e^2}{m_0c^2} \right)^2 Z^2 \left[ \frac{28}{9} \ln(183 Z^{1/3}) - \frac{2}{27} \right] \quad (2.36)$$

para  $h\nu \gg 137 m_0c^2 Z^{1/3}$ .

### Secção de Choque de Energia Transferida:

A fração da energia do fóton incidente ( $h\nu$ ) que é transferida como energia cinética das partículas carregadas é, segundo a equação (2.34):

$$\frac{T}{h\nu} = \frac{T_+ + T_-}{h\nu} = \frac{h\nu - 2m_0c^2}{h\nu} \quad (2.37).$$

Por conseguinte, a secção de choque de energia transferida por átomo é dada por:

$${}_a\kappa_{tr} = {}_a\kappa \left( \frac{h\nu - 2m_0c^2}{h\nu} \right) \quad (2.38).$$

Berger (1961) introduziu uma correção  ${}_a\kappa f_\kappa$  onde:

$$f_{\kappa} = 1 - \frac{2m_0c^2}{h\nu} - \frac{1}{h\nu} \int_0^{h\nu-2m_0c^2} P_p(h\nu, T_+, T_-) [T_- G_{br}(T_-) + T_+ G_{br}(T_+) + \tau(T_+)] dT_+ \quad (2.39).$$

Na equação anterior o termo  $(1 - 2m_0c^2/h\nu)$  representa a fração de energia do fóton incidente que transforma-se em energia cinética;  $P_p(h\nu, T_+, T_-)dT_+$  é a probabilidade de que o pósitron tenha uma energia cinética inicial entre  $T_+$  e  $T_+ + dT_+$ ;  $T_-G_{br}(T_-)$  é a energia cinética do elétron que perde-se como bremsstrahlung;  $T_+G_{br}(T_+)$  é a energia cinética do pósitron que perde-se como bremsstrahlung;  $\tau(T_+)$  representa a energia do fóton no momento da aniquilação.

## 2.5 Combinação dos três processos.

A interação dos fótons com a matéria pode resultar em dispersão ou absorção. O processo Compton diminui a energia e muda a direção de um fóton e produz um elétron de recuo. O processo fotoelétrico leva à excitação de um átomo o qual emite então, um fotoelétron e subsequentemente pode emitir raios-X fluorescentes ou elétrons Auger. A absorção de um fóton por produção de pares resulta na aparição de uma dupla elétron-pósitron e a subsequente emissão de radiação de aniquilação. Todos os elétrons liberados nestes processos emitem bremsstrahlung e dissipam energia ao longo de sua trajetória em colisões elétron-elétron. A transferência de energia dos fótons para a matéria é um processo de duas etapas: primeiro, a conversão da energia do fóton para energia cinética de elétrons; segundo, a dissipação da energia cinética dos elétrons secundários ao longo de suas trajetórias em colisões com outros elétrons produzindo excitação e ionização dos átomos do meio (Berger, 1961). Não obstante, tem-se que distinguir a diferença entre a energia transferida ao meio e a energia absorvida pelo meio que finalmente, será a responsável pela dose absorvida. Esta diferença consegue-se expressar pelos diferentes coeficientes:  $\mu/\rho$ ,  $\mu_a/\rho$ ,  $\mu_{tr}/\rho$ , e  $\mu_{en}/\rho$ , que serão discutidos posteriormente.

### Atenuação Exponencial:

Se um feixe de fótons monoenergéticos de intensidade  $I_0$  incide paralelamente sobre uma superfície plana de um material (ver figura 2.8), a uma profundidade  $x$  dentro do material, a intensidade do feixe reduz-se a  $I$  devido às diferentes interações sofridas com os

átomos do material. Num incremento de distância  $dx$  tem-se uma redução adicional da intensidade numa quantidade  $dI$ . A probabilidade de interação numa espessura  $dx$  é:

$$\text{Probabilidade de Interação numa espessura } dx = dI/I$$

e  $\mu \equiv \frac{dI}{I} \frac{1}{dx}$  é a probabilidade de interação por unidade de comprimento numa espessura  $dx$ . A diminuição em intensidade dentro de  $dx$  é:  $-dI = \mu I dx$ . Se  $I = I_0$  para  $x = 0$ , integrando a expressão acima tem-se que  $I = I_0 \exp(-\mu x)$ , a qual é a Lei de Lambert-Beer de atenuação exponencial. Se  $x$  está dado em (cm),  $\mu$  será dado em ( $\text{cm}^{-1}$ ).  $\mu$  é o *coeficiente de atenuação linear total* e é uma medida da probabilidade de interação de um fóton por unidade de comprimento.

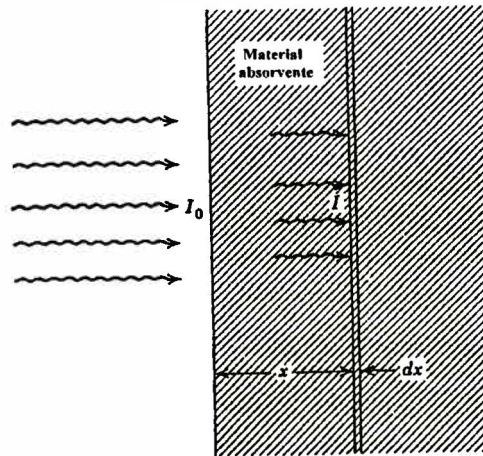


Figura 2.8 Atenuação de um feixe de fótons atravessando uma espessura de material. (Morgan e Turner, 1973).

Como cada um dos processos discutidos anteriormente tem certa probabilidade de ocorrência, o coeficiente de atenuação linear  $\mu$  pode ser expresso como:

$$\mu = \sigma + \tau + \kappa \quad (2.40)$$

onde  $\sigma$ ,  $\tau$  e  $\kappa$  são os coeficientes de atenuação linear para os processos Compton, fotoelétrico e produção de pares respectivamente.  $\sigma$  obtém-se da secção de choque por átomo para o processo Compton  $\sigma_a$  (equação 2.20) por a relação:  $\sigma = N_a \sigma_a$ , onde  $N$

expressa-se em (átomos/cm<sup>3</sup>). Para o efeito fotoelétrico e produção de pares tem-se respectivamente:  $\tau = N_a \tau$  e  $\kappa = N_a \kappa$ .

### **Coefficiente Mássico de Atenuação:**

Este coeficiente é definido como o coeficiente de atenuação linear total dividido pela densidade ( $\rho$ ) do material, ou seja:  $\mu / \rho$  e expressa-se em (cm<sup>2</sup>/gr). Desta forma, a Lei de Lambert-Beer expressa-se da forma:

$$\frac{I}{I_0} = \exp\left(-\frac{\mu}{\rho} x\right) \quad (2.41)$$

onde agora  $x$  representa a *espessura de massa* expressada em (gr/cm<sup>2</sup>). Para os três processos de interação mencionados, o *coeficiente mássico de atenuação total* expressa-se, conforme a equação (2.40) como:

$$\frac{\mu}{\rho} = \frac{\sigma}{\rho} + \frac{\tau}{\rho} + \frac{\kappa}{\rho} \quad (2.42)$$

onde  $\sigma/\rho$ ,  $\tau/\rho$ ,  $\kappa/\rho$  são os coeficientes mássicos de atenuação para os processos Compton, fotoelétrico e produção de pares respectivamente. Uma definição alternativa do coeficiente mássico de atenuação total em termos da secção de choque total por átomo é apresentada em Seltzer (1993) e em Hubbell & Seltzer (1995):

$$\frac{\mu}{\rho} = \frac{N_A}{uA} \sum_j \sigma_j = \frac{N_A}{uA} \sigma_{tot} = \sum_j \frac{\mu_j}{\rho} \quad (2.43)$$

onde  $N_A$  é o número de Avogadro;  $u$  é a unidade de massa atômica (1/12 da massa de um átomo do nuclídeo <sup>12</sup>C);  $A$  é a massa atômica relativa do material; e  $\sigma_{tot}$  é a secção de choque total por átomo. O subíndice  $j$  indica os diferentes tipos de interações de forma tal que  $\sigma_{tot}$  é a soma parcial das secções de choque por átomo para os diferentes tipos de interações. Segundo a definição da equação (2.43), este coeficiente leva em conta todos os processos (ver figura 2.9).

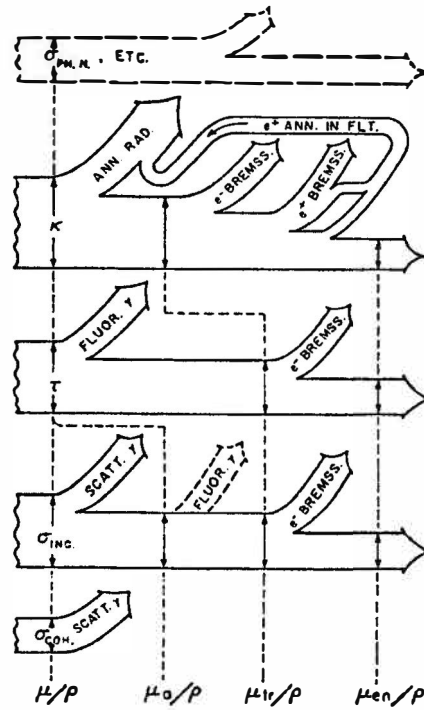


Figura 2.9 Representação gráfica do significado de cada um dos coeficientes de atenuação. (Hubbell, 1977).

#### Coefficiente Mássico de Absorção ( $\mu_a / \rho$ ):

Segundo Hubbell (1977), este coeficiente assume que somente os fótons dispersados deixam o volume de interesse, ou seja, não leva em conta a energia daqueles fótons (ver figura 2.9).

#### Coefficiente Mássico de Transferencia de Energia ( $\mu_{tr} / \rho$ ):

Segundo Seltzer (1993), este coeficiente define-se como:

$$\frac{\mu_{tr}}{\rho} = \frac{N_A}{uA} \sum_j f_j \sigma_j = \sum_j f_j \frac{\mu_j}{\rho} = f \frac{\mu}{\rho} \quad (2.44)$$

onde  $f_j$  é a fração média da energia  $h\nu$  do fóton que é transferida como energia cinética das partículas carregadas do meio em interações de tipo  $j$ , e  $f$  é a média ponderada de  $f_j$ . Hubbell & Seltzer (1995) escrevem a equação (2.44) na forma:

$$\frac{\mu_{tr}}{\rho} = \frac{N_A}{uA} (f_{pe} \sigma_{pe} + f_{incoh} \sigma_{incoh} + f_{pair} \sigma_{pair}) \quad (2.45)$$

onde  $f_{pe}$ ,  $f_{incoh}$ ,  $f_{pair}$  são as correspondentes frações de transferência de energia para os processos fotoelétrico, Compton, e produção de pares respectivamente.  $\sigma_{pe}$ ,  $\sigma_{incoh}$ ,  $\sigma_{pair}$  são as secções de choque por átomo para os processos mencionados. As expressões para as diferentes frações são:

$$f_{pe} = 1 - (X/h\nu) \quad (2.46),$$

onde  $X$  é a energia média da radiação de fluorescência emitida por fóton absorvido;

$$f_{incoh} = 1 - (\langle h\nu' \rangle + X) / h\nu \quad (2.47),$$

onde  $h\nu'$  é a energia média do fóton dispersado Compton;

$$f_{pair} = 1 - 2m_0c^2 / h\nu \quad (2.48),$$

onde  $2m_0c^2$  é a energia em repouso do elétron.

Segundo a figura 2.9 e as relações (2.45), (2.46), (2.47), e (2.48), o coeficiente  $(\mu_{tr} / \rho)$  assume que todos os fótons dos eventos de interação primários: fótons fluorescentes, fótons dispersados e radiação de aniquilação em repouso, são perdidos no volume de interesse.

### **Coeficiente Mássico de Absorção de Energia $(\mu_{en} / \rho)$ :**

Este coeficiente define-se como:

$$\frac{\mu_{en}}{\rho} = \frac{N_A}{uA} \sum_j f_j (1 - g_j) \sigma_j = \sum_j f_j (1 - g_j) \frac{\mu_j}{\rho} = f(1 - g) \frac{\mu}{\rho} = (1 - g) \frac{\mu_{tr}}{\rho} \quad (2.49),$$

onde  $g_j$  é a fração média da energia cinética das partículas carregadas secundárias produzidas numa interação de tipo  $j$  a qual é subseqüentemente perdida em processos radiativos, e  $g$  é a média ponderada de  $g_j$ . O fator  $g$  leva em conta a emissão de bremsstrahlung; a emissão produzida na aniquilação do pósitron em vôo; a emissão fluorescente depois de um impacto de ionização elétron-pósitron (Seltzer, 1993). Segundo a figura 2.9, todas as emissões mencionadas anteriormente deixam o volume de interesse.



## 2.6 Interação da Radiação Ionizante com a molécula de Alanina.

### O aminoácido Alanina.

A alanina é um dos vinte aminoácidos existentes na natureza. Os aminoácidos são considerados como os componentes das proteínas e quimicamente, são substâncias que possuem um átomo de carbono assimétrico o carbono  $\alpha$  (com exceção da glicina), ao qual estão ligados quatro grupos substituintes (ver figura 2.10): um grupo carboxila (COOH), um grupo amino ( $\text{NH}_2$ ), um grupo R, e um átomo de hidrogênio. Desta forma, o carbono  $\alpha$  constitui um centro quiral o qual ocorre em duas diferentes formas isoméricas, as quais são idênticas em todas as propriedades químicas e físicas com exceção de uma, a direção que podem desviar a luz polarizada em um polarímetro.

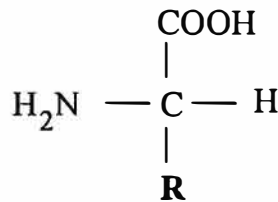


Figura 2.10 Estrutura geral dos aminoácidos encontrados em proteínas.  
(Lehninger, 1984).

Com a única exceção da glicina, a qual não tem átomo de carbono assimétrico (figura 2.11), todos os demais 19 aminoácidos em proteínas são óticamente ativos, ou seja, eles podem desviar a luz polarizada em uma ou outra direção. Devido ao arranjo tetraédrico das valências ao redor do carbono  $\alpha$  dos aminoácidos, os quatro diferentes grupos substituintes podem dispor-se em dois diferentes arranjos no espaço, que são imagens especulares não superponíveis (ver figura 2.12).

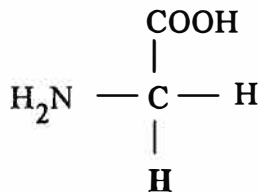


Figura 2.11 A glicina, o único aminoácido sem um átomo de carbono assimétrico. O grupo R é um átomo de hidrogênio.  
(Lehninger, 1984).

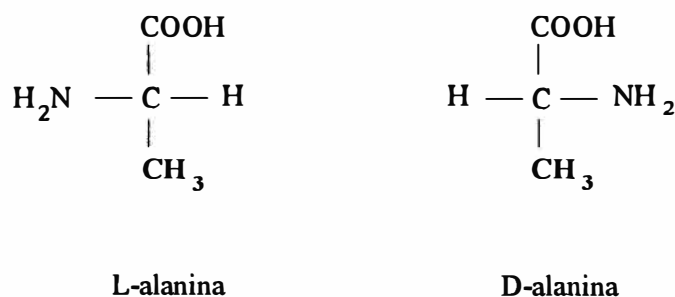


Figura 2.12 Os dois isômeros óticos da alanina. O grupo  $\text{CH}_3$  é o grupo metil. (Lehninger, 1984).

Estas duas formas são chamadas isômeros óticos, enantiômeros ou estereoisômeros. Uma solução de um estereoisômero de um dado aminoácido desviará a luz polarizada para a esquerda (sentido anti-horário) e é assinalado por L. O outro estereoisômero desviará a luz em igual número de graus, porém para a direita (sentido horário) e é designado por D. Uma mistura equimolecular das formas L e D não desviará a luz polarizada.

#### Efeito da Radiação Ionizante sobre a alanina.

O efeito da radiação ionizante sobre substâncias orgânicas como no caso da alanina é a produção de radicais livres. Um radical livre é uma molécula que contém um número ímpar de elétrons e por conseguinte, existe um elétron que está desemparelhado. Os radicais livres tendem a sofrer reações nas quais o elétron desemparelhado é ganho ou perdido pela molécula tal que o produto final terá todos seus elétrons emparelhados. Desta forma, os radicais livres podem ser altamente reativos, quimicamente agressivos e por conseguinte, de vida muito curta. No entanto, a estabilidade dos radicais livres depende de seu ambiente molecular e especialmente, da rigidez do material. Em solução ou em materiais orgânicos aquosos, o tempo de vida é normalmente muito curto. Em alguns materiais orgânicos cristalinos, ainda à temperatura ambiente, eles podem existir até por alguns anos (Regulla e Deffner, 1982). O tipo e quantidade de radicais livres produzidos pela radiação ionizante depende geralmente da estrutura cristalina e da temperatura (Miyagawa e Gordy, 1960). Na figura 2.12 mostram-se os dois isômeros óticos da alanina: L-alanina e D-alanina. A forma DL-alanina obtém-se de uma mistura equimolecular das formas L e D. Entre as espécies radicais gerados por irradiação, o radical  $\text{CH}_3\text{—}\dot{\text{C}}\text{H—COOH}$  é o predominante a temperatura ambiente (Miyagawa e Gordy, 1960).

Como a alanina é uma molécula orgânica, é lógico pensar que sua resposta à radiação ionizante seja próxima daquela do tecido mole. Este fato é mostrado na figura 2.13 onde pode-se notar que a alanina comporta-se mais próxima a tecido que o LiF.

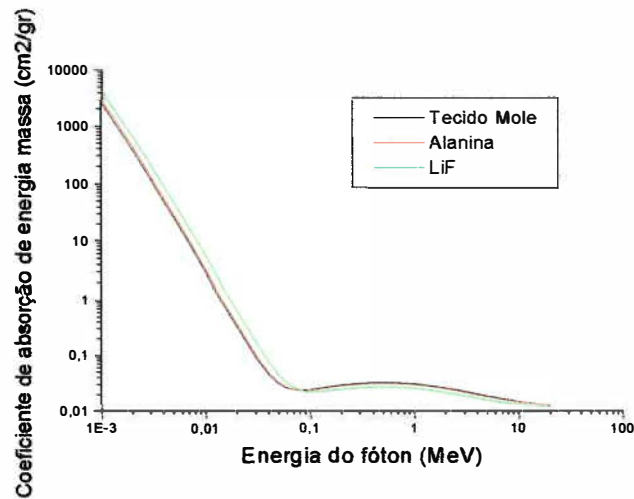


Figura 2.13 Variação do coeficiente de absorção de energia massa com a energia do fóton. (Hubbell e Seltzer, 1995).

Este capítulo foi baseado nos seguintes autores: Attix (1986), Evans (1955, 1982), Davisson & Evans (1952), Morgan & Turner (1973), Berger (1961), Hubbell (1977), Seltzer (1993), e Hubbell & Seltzer (1995), Regulla e Deffner (1982), Miyagawa e Gordy (1960), Lehninger (1984).

## Capítulo 3. Dosimetria das Radiações.

### 3.1 Aspectos Gerais.

A dosimetria das radiações relaciona-se com a medição da dose absorvida ou taxa de dose resultante da interação da radiação com a matéria, e também com a determinação de quantidades radiologicamente relevantes tais como: exposição, kerma, fluência, energia cedida, dose equivalente, etc., que estão em conexão com os efeitos biológicos das radiações.

Um dosímetro define-se como um dispositivo capaz de proporcionar uma leitura  $r$  a qual é uma medida da dose absorvida  $D$  depositada em seu volume sensível  $V$  pela radiação ionizante (ver figura 3.1). Se a dose não é homogênea através de todo o volume  $V$ , então  $r$  é uma medida de algum tipo de valor médio  $\bar{D}$ . Idealmente,  $r$  é proporcional a  $D$ , e

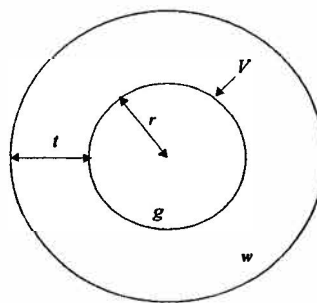


Figura 3.1 Representação esquemática de um dosímetro com um volume sensível  $V$  contendo um meio  $g$  rodeado por uma parede de meio  $w$  e espessura  $t$ . (Attix, 1986).

cada elemento de volume de  $V$  tem igual influência sobre o valor de  $r$ , e então,  $D$  é simplesmente a dose média através de todo  $V$ . Muitos dosímetros exibem algum grau de não-linearidade de  $r$  -vs-  $D$  em alguma parte de sua faixa de dose.

Na verdade, o interesse não é medir a dose no volume sensível do dosímetro propriamente dito, se não, usar esta medida como um meio de determinar a dose em outro meio no qual medições diretas de dose não são possíveis. A interpretação da leitura de um dosímetro em termos da quantidade desejada é o problema central em dosimetria. Em alguns

casos, o dosímetro pode ser calibrado diretamente em termos da quantidade desejada (por exemplo: exposição, dose em tecido), mas essa calibração é geralmente dependente da energia a menos que o dosímetro simule aproximadamente o material de referencia.

### 3.2 Características Gerais de um Dosímetro.

#### **Caráter Absoluto.**

Um dosímetro absoluto é aquele que pode ser montado e usado para medir a dose absorvida em seu próprio volume sensível sem requerer calibração num campo de radiação conhecido. Três tipos de dosímetros são considerados como dosímetros absolutos: dosímetros calorimétricos, câmara de ionização, e dosímetros de sulfato ferroso (Fricke). O dosímetro calorimétrico tem a vantagem fundamental de medir diretamente o calor produzido pela dose absorvida, sem depender de um coeficiente de conversão, tais como ionização ( $\bar{W}$ ) ou rendimento químico ( $G$ ), que seria o caso dos outros dois dosímetros absolutos mencionados. Por este motivo, o dosímetro calorimétrico seria considerado o primeiro numa hierarquia baseada no caráter de absoluto.

#### **Precisão e Exatidão.**

A precisão ou reproducibilidade das medidas de um dosímetro relaciona-se com erros aleatórios devido a flutuações nas características do instrumental, condições ambientais, etc., e na natureza estocástica dos campos de radiação. A precisão pode ser estimada dos dados obtidos em medições repetidas, e usualmente se estabelece em termos do desvio padrão. Uma alta precisão está associada a um desvio padrão pequeno.

Por outro lado, a exatidão nas medidas de um dosímetro expressa a proximidade de seu valor esperado em relação ao valor verdadeiro da quantidade que está sendo medida. A exatidão é uma medida do efeito coletivo dos erros em todos os parâmetros que influenciam as medições.

Precisão e exatidão são características separadas. As medições podem ser altamente precisas mas inexatas, ou vice-versa. Também podem estar bem em ambas características ou mal nas duas.

## **Faixa de Dose.**

### **Sensibilidade.**

A variação da leitura  $r$  do dosímetro com respeito a dose recebida  $D$  conhece-se como sua sensibilidade e expressa-se como  $dr/dD$ . Uma sensibilidade constante através de uma ampla faixa de dose proporciona uma resposta linear, a qual é desejável para uma fácil calibração e interpretação.

### **Fundo e Limite Inferior de Detecção da Faixa de Dose.**

O limite inferior de detecção de uma faixa útil de doses é a leitura do dosímetro obtida à dose zero, ou seja,  $r = r_0$  quando  $D = 0$ . Este limite inferior é imposto pelo fundo do instrumental e as vezes é chamado de “resposta espúria” já que não é causada pela radiação. A leitura de radiação de fundo  $r_b$  é devida à radiação de fundo ambiental: raios cósmicos, e fontes de radiação natural e artificial. Desta forma, a leitura de fundo obtida num dosímetro seria  $r_0 + r_b$ . O limite inferior da faixa de doses prático de um dosímetro é usualmente estimado como sendo a dose necessária para dobrar a leitura de fundo instrumental (Attix, 1986).

### **Estabilidade.**

#### **Pre-irradiação.**

As características de um dosímetro devem permanecer estáveis com o tempo até seu uso. Efeitos de temperatura, oxigênio atmosférico, umidade, luz, etc., podem causar uma variação gradual na sensibilidade do dosímetro ou no fundo instrumental.

#### **Pós-irradiação.**

A leitura latente em alguns tipos de dosímetros pode ser instável em alguma extensão, sofrendo perdas por “fading” ou decaimento durante o intervalo de tempo entre a irradiação e a leitura. Este “fading” é provocado por condições ambientais adversas de temperatura elevada ou umidade, luz solar direta, etc.

### **Dependência com a Energia.**

A dependência com a energia de um dosímetro é a dependência de sua leitura  $r$ , por unidade da quantidade que supostamente vai medir, contra a energia da radiação. Um dosímetro “bom” supor-se à ser independente da energia numa ampla faixa de energias.

### 3.3 Quantidades Físicas associadas a Dosimetria das Radiações.

#### Energia Cedida.

É a quantidade fundamental em dosimetria das radiações. A energia cedida  $\varepsilon$  a matéria de massa  $m$ , num volume finito  $V$  é definida como:

$$\varepsilon = R_{in} - R_{out} + \Sigma Q \quad (3.1)$$

onde  $R_{in}$  = energia radiante incidente sobre o volume, ou seja, a soma das energias (excluindo energias em repouso) de todas aquelas partículas ionizantes carregadas e não carregadas que tem entrado ao volume  $V$ ;

$R_{out}$  = energia radiante emergente do volume  $V$ , ou seja, a soma das energias (excluindo energias em repouso) de todas aquelas partículas ionizantes carregadas e não carregadas que tem deixado o volume  $V$ ;

$\Sigma Q$  = a soma de todas as variações da energia devido a massa em repouso do núcleo e partículas elementares em todas as transformações nucleares e de partículas elementares que tem acontecido no volume  $V$  ( $m \rightarrow E$  variação positiva;  $E \rightarrow m$  variação negativa).

O sinal de um detetor de radiação (incluindo objetos biológicos) está correlacionado basicamente, com a energia cedida a ele, e pode ser por exemplo: uma indicação de elevação de temperatura, registro do número de íons produzidos, a quantidade de luz emitida por aquecimento subsequente, etc.

Devido a natureza estatística tanto das interações como da emissão de partículas ionizantes de fontes de radiação, a energia cedida é uma quantidade estocástica. Na determinação da energia cedida, a classificação das partículas como ionizantes é essencial. As partículas ionizantes são partículas carregadas e não carregadas capazes de causar ionização por processos primários e secundários (Carlsson & Carlsson, 1982). O valor de expectação  $\bar{\varepsilon}$  da energia cedida é chamada a energia média cedida e é uma quantidade não estocástica.

### Dose Absorvida.

A dose absorvida  $D$  é derivada da energia cedida e é definida como o cociente entre o valor esperado da energia cedida a um volume infinitesimalmente pequeno e a massa de aquele volume:

$$D = \lim_{m \rightarrow 0} \left( \frac{\bar{\varepsilon}}{m} \right) = \frac{d\varepsilon}{dm} \quad (3.2)$$

Já que a dose absorvida é definida com respeito a um volume infinitesimal, é uma quantidade que toma um valor em cada ponto de um meio irradiado. A unidade da dose absorvida é o *Gray* (Gy) que corresponde a 1 J/kg. A unidade anterior para dose era o *rad* (1 *erg/g*) e 1 Gy = 100 *rads*.

### Fluência de Partículas.

A fluência de partículas  $\Phi$  é o cociente de  $dN$  por  $da$ , onde  $dN$  é o número de partículas incidentes sobre uma esfera de secção transversal  $da$ :

$$\Phi = \frac{dN}{da} \quad (3.3).$$

A esfera está centrada num ponto  $P$  e a área  $da$  deve ser perpendicular a cada direcção da radiação. Já que a fluência é definida para uma esfera infinitesimal, toma um valor em cada ponto do espaço, ou seja,  $\Phi = \Phi(\vec{r})$ .

### Fluência de Energia.

A fluência de energia é o quociente entre  $dR$  e  $da$ :

$$\Psi = \frac{dR}{da} \quad (3.4)$$

onde  $dR$  corresponde a energia radiante das  $dN$  partículas que incidem sobre a esfera de secção transversal  $da$ . A energia radiante  $R$  defina-se como “a energia de partículas (excluindo a energia em repouso) emitida, transferida ou recebida” (Attix, 1986). Para o caso



especial em que as  $N$  partículas tenham uma mesma energia  $E$ , as equações (3.3) e (3.4) relacionam-se por:

$$R = EN \quad (3.5);$$

$$\Psi = E\Phi \quad (3.6).$$

### Energia Transferida.

A energia transferida para a matéria de massa  $m$  e volume finito  $V$  define-se como:

$$\varepsilon_{tr} = (R_{in})_u - (R_{out})_u^{nonr} + \Sigma Q \quad (3.7)$$

onde  $(R_{in})_u$  = energia radiante de partículas não carregadas que entram ao volume  $V$ .  $(R_{out})_u^{nonr}$  = energia radiante de partículas não carregadas que deixam o volume  $V$ , exceto aquela que é originada de perdas radiativas de energia cinética por partículas carregadas encontrando-se ainda em  $V$ .

$\Sigma Q$  = o mesmo significado que para a equação (3.1).

Perda radiativa refere-se a conversão de energia cinética de partículas carregadas em energia de fótons, através de produção de *bremstrahlung* ou aniquilação de pósitrons em vôo (ver Capítulo 2). A energia transferida  $\varepsilon_{tr}$  é a energia cinética recebida pelas partículas carregadas no volume finito  $V$ . Não obstante, qualquer energia cinética transferida de uma partícula a outra não é levada em conta em  $\varepsilon_{tr}$ .

### Kerma.

Define-se como o valor esperado da energia transferida a partículas carregadas por unidade de massa no ponto de interesse, incluindo a energia de perdas radiativas mas excluindo a energia transferida de uma partícula carregada a outra. Matematicamente é:

$$K = \frac{d\varepsilon_{tr}}{dm} \quad (3.8)$$

onde  $dm$  é a massa de um volume  $dV$ . A unidade para o kerma também é o Gy.

Para fótons monoenergéticos de energia  $E$ , o kerma no ponto  $P$  relaciona-se a fluência de energia pelo coeficiente de transferência de energia mássico por:

$$K = \Psi \left( \frac{\mu_{tr}}{\rho} \right)_{E,Z} \quad (3.9).$$

Segundo como as partículas carregadas gastem sua energia cinética, o kerma pode ser expressado como:

$$K = K_c + K_r \quad (3.10)$$

onde  $K_r$  é o kerma de perda radiativa e inclui a energia transportada pelos fótons produzidos nos processos de bremsstrahlung e aniquilação em vôo de pósitrons.

$K_c$  é o kerma de colisão e inclui a energia cinética de partículas carregadas gastas em interações de colisão: excitação e ionização. O kerma de colisão também pode ser expressado como:

$$K_c = \frac{d\varepsilon_{tr}^n}{dm} \quad (3.11)$$

onde  $\varepsilon_{tr}^n$  representa a energia líquida transferida e expressa-se como:

$$\varepsilon_{tr}^n = \varepsilon_{tr} - R_u^r \quad (3.12)$$

$R_u^r$  é a energia radiante emitida como perda radiativa por partículas carregadas. Para fótons monoenergéticos de energia  $E$ ,  $K_c$  está relacionado com a fluência de energia  $\Psi$  pela equação:

$$K_c = \Psi \left( \frac{\mu_{en}}{\rho} \right)_{E,Z} \quad (3.13)$$

onde  $\frac{\mu_{en}}{\rho}$  é o coeficiente mássico de absorção de energia (ver Capítulo 2).

### Exposição.

A exposição  $X$  é definida como o quociente de  $dQ$  por  $dm$ , onde o valor de  $dQ$  é o valor absoluto da carga total de íons de um mesmo sinal no ar quando todos os elétrons (negativos e positivos) liberados por fótons em ar de massa  $dm$  são completamente detidos no ar. Matematicamente temos:

$$X = \frac{dQ}{dm} \quad (3.14)$$

a exposição expressa-se em C/kg. A unidade anterior para exposição era o *Roentgen* (R) e  $1 \text{ R} = 2,58 \times 10^{-4} \text{ C/kg}$ .

### 3.4 Equilíbrio de Partículas Carregadas (EPC).

#### Definição de EPC.

Com respeito a figura 3.2, o volume  $V$  contém um meio homogêneo, uniformemente irradiado por todas partes por radiação indiretamente ionizante (fótons). As partículas carregadas secundárias ( $e_1, e_2, e_3$ ) são produzidas uniformemente por todo  $V$ , não necessariamente isotropicamente, mas com a mesma distribuição direcional e de energia por todas partes. Se a distancia mínima que separa os limites de  $V$  e de um pequeno volume  $\nu$  é maior que a faixa máxima das partículas carregadas presentes, existirá EPC em  $\nu$  se cada partícula carregada de um tipo e energia dados deixando  $\nu$  é substituída por uma partícula idêntica da mesma energia entrando, em termos de valores esperados (Attix, 1983).

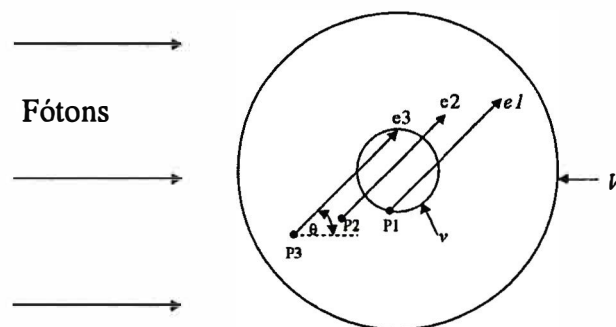


Figura 3.2 Condições de EPC para uma fonte externa. (Attix, 1986).

Existirá EPC se as seguintes condições forem satisfeitas:

- a-) a composição atômica do meio é homogênea;
- b-) a densidade do meio é homogênea;
- c-) existe um campo uniforme de radiação indiretamente ionizante, ou seja, a atenuação da radiação considera-se desprezível quando passa através do meio;
- d-) não existem campos elétricos e magnéticos não homogêneos.

A energia cedida, equação (3.1), pode ser expandida como na expressão:

$$\varepsilon = (R_{in})_u - (R_{out})_u + (R_{in})_c - (R_{out})_c + \Sigma Q \quad (3.15)$$

onde “*u*” significa partículas ionizantes não carregadas e “*c*” significa partículas ionizantes carregadas. Em condições de EPC tem-se que:

$$(R_{in})_c = (R_{out})_c \quad (3.16)$$

portanto, a equação (3.15), em termos de valores esperados, reduz-se à:

$$\bar{\varepsilon} = \overline{(R_{in})_u} - \overline{(R_{out})_u} + \Sigma \bar{Q} \quad (3.17).$$

Substituindo a equação (3.17) na equação (3.12) temos:

$$\bar{\varepsilon}_{tr}^{-n} = \bar{\varepsilon} + \overline{(R_{out})_u} - \overline{(R_{out})_u}^{nonr} - \bar{R}_u^r \quad (3.18).$$

Não obstante, sob condições de EPC, qualquer interação radiativa por uma partícula carregada depois de deixar  $\nu$  será substituída por uma interação idêntica dentro de  $\nu$ . Como resultado, e assumindo que o volume  $\nu$  é suficientemente pequeno para permitir escapar os fótons de perdas radiativas, temos:

$$\overline{(R_{out})_u} = \overline{(R_{out})_u}^{nonr} + \bar{R}_u^r \quad (3.19),$$

e por tanto, a equação (3.18) reduz-se a:  $\bar{\varepsilon} = \bar{\varepsilon}_{tr}^{-n}$  (3.20).

### 3.5 Teoria da Cavidade.

#### Teoria de Bragg-Gray.

Se uma fluência  $\Phi$  de partículas carregadas idênticas de energia cinética  $T$  passa através de uma interface entre dois meios diferentes  $w$  e  $g$ , como mostra-se na figura 3.3 então, pode-se escrever para a dose absorvida no lado  $g$  da fronteira:

$$D_g = \Phi \left[ \left( \frac{dT}{\rho dx} \right)_{c,g} \right]_T \quad (3.21)$$

e para o lado  $w$ :

$$D_w = \Phi \left[ \left( \frac{dT}{\rho dx} \right)_{c,w} \right]_T \quad (3.22)$$

onde  $\left( \frac{dT}{\rho dx} \right)_c$  conhece-se como o *poder de frenagem mássico de colisão*, e é o valor esperado da taxa de energia perdida por unidade de longitude de trajetória por uma partícula carregada com energia cinética  $T$ , num meio com número atômico  $Z$  e densidade  $\rho$ . Representa a taxa de energia perdida por elétrons em interações por colisão (excitação e ionização).

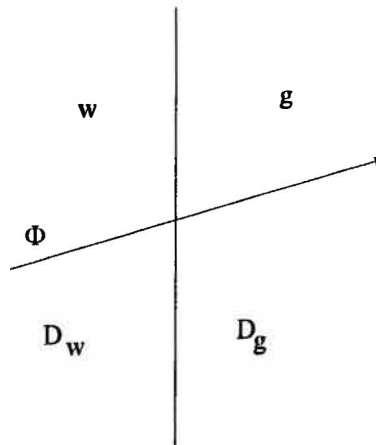


Figura 3.3 A fluência  $\Phi$  de partículas carregadas atravessando uma interface entre os meios  $w$  e  $g$ . (Attix, 1986).

Assumindo que o valor de  $\Phi$  é contínuo através da interface, pode-se escrever a razão de doses absorvida nos dois meios como:

$$\frac{D_w}{D_g} = \frac{\left( \frac{dT}{\rho dx} \right)_{c,w}}{\left( \frac{dT}{\rho dx} \right)_{c,g}} \quad (3.23).$$

Bragg e Gray aplicaram a equação (3.23) ao problema de relacionar a dose absorvida num detector inserido num meio com a dose absorvida nesse meio, identificando o detector como uma “cavidade preenchida de gás”, daí o nome de Teoria da Cavidade.

Esta teoria consiste no seguinte: supondo que uma região diferente a um meio homogêneo  $w$ , sofrendo irradiação, contem uma capa fina ou “cavidade” preenchida com outro material  $g$  (ver figura 3.4). A primeira condição de B-G assume que a espessura da camada  $g$  é tão pequena em comparação com a faixa das partículas carregadas que batem com ela ( $g$ ), tal que sua presença não perturba o campo de partículas carregadas. Esta condição depende das propriedades de dispersão de  $w$  e  $g$ , (sendo suficientemente similares) tal que o comprimento médio da trajetória ( $g/cm^2$ ) seguida pelas partículas em sua travessia pela camada fina  $g$  é praticamente idêntica a seu valor se  $g$  fosse substituído por uma camada de  $w$  tendo a mesma espessura massa ( $g/cm^2$ ).

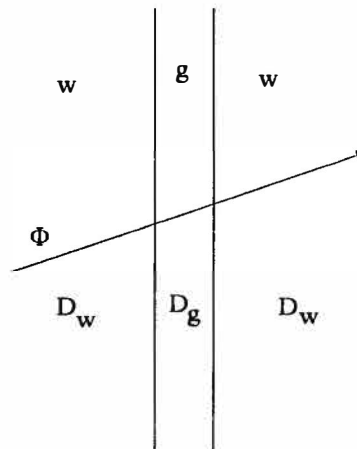


Figura 3.4 A fluência  $\Phi$  de partículas carregadas passando através de uma camada fina de meio  $g$  introduzido entre regiões de meio  $w$ . (Attix, 1986).

A segunda condição de B-G é a seguinte: a dose absorvida na cavidade é assumida como sendo depositada integralmente pelas partículas carregadas que a atravessam.

A equação (3.23) aplica-se para partículas carregadas monoenergéticas que atravessam  $g$ . Para uma fluência de partículas de diferentes energias cinéticas temos:

$$\frac{D_w}{D_g} = \frac{m \bar{S}_w}{m \bar{S}_g} = m \bar{S}_g^w \quad (3.24)$$

onde

$$m \bar{S}_w = \frac{\int_0^{T_{\max}} \Phi_T \left( \frac{dT}{\rho dx} \right)_{c,w} dT}{\int_0^{T_{\max}} \Phi_T dT} \quad (3.25)$$

é o poder de frenagem mássico de colisão médio para o meio  $w$ ; e

$$m \bar{S}_g = \frac{\int_0^{T_{\max}} \Phi_T \left( \frac{dT}{\rho dx} \right)_{c,g} dT}{\int_0^{T_{\max}} \Phi_T dT} \quad (3.26)$$

é o poder de frenagem mássico de colisão médio para o meio  $g$ .

Se o meio  $g$  que ocupa a cavidade é um gás no qual uma carga  $Q$  (de qualquer sinal) é produzida pela radiação,  $D_g$  pode ser expressado em termos daquela carga como:

$$D_g = \frac{Q}{m} \left( \frac{\bar{W}}{e} \right)_g \quad (3.27)$$

onde  $\left( \frac{\bar{W}}{e} \right)_g$  é a energia média gasta por unidade de carga produzida, e  $m$  é a massa do gás.

A dose no meio  $w$ ,  $D_w$  obtém-se substituindo a equação (3.27) na (3.24) e tem-se:

$$D_w = \frac{Q}{m} \left( \frac{\overline{W}}{e} \right)_g \cdot m \overline{S}_g^w \quad (3.28).$$

A equação (3.28) permite calcular a dose absorvida no meio que rodeia imediatamente a cavidade B-G (meio  $w$ ), sobre a base da carga produzida na cavidade de gás.

A teoria de B-G também pode ser aplicada a cavidades preenchidas com material sólido ou líquido usando a equação (3.24) para calcular  $D_w$  do valor medido  $D_g$ . Para que uma cavidade de meio condensado possa satisfazer as condições de B-G, sua espessura deve ser somente  $\sim 0,001$  vezes daquela para a cavidade preenchida de gás a 1 atm, para obter uma espessura mássica comparável de  $g$ ; por exemplo, uma cavidade preenchida de gás de 1 mm é comparável a uma cavidade de meio condensado de 1  $\mu\text{m}$ .

### **O Dosímetro e a Teoría da Cavidade.**

Um dosímetro pode ser considerado como consistindo de um volume sensível  $V$  preenchido com um meio  $g$ , rodeado por uma parede de um outro meio  $w$  e tendo uma espessura  $t \geq 0$  (ver figura 3.1). Um dosímetro simples pode ser tratado em termos da Teoria da Cavidade onde o volume sensível do dosímetro identifica-se como a “cavidade” a qual pode conter um meio  $g$  gasoso, líquido, ou sólido, dependendo do tipo de dosímetro. A parede do dosímetro pode servir a um número de funções simultaneamente, incluindo:

- a-) ser uma fonte de partículas carregadas secundárias que contribui para a dose em  $V$  e proporcionando o EPC;
- b-) blindar  $V$  de partículas carregadas que se originam fora da parede;
- c-) proteger  $V$  de influências “hostis” tais como dano mecânico, pó, umidade, luz, etc., que podem alterar sua leitura;
- d-) servir de receptáculo para um meio  $g$  que é um gás, líquido ou pó; e
- e-) conter filtros para modificar a dependência de energia do dosímetro



### 3.6 Determinação da Dose Absorvida para Feixes Externos de Fótons.

Em termos gerais, a dose absorvida é dada pela equação (3.2), e em condições de EPC, a energia cedida, em termos de valores esperados, é expressada pela equação (3.20):

$$D = \frac{d\bar{\varepsilon}}{dm} = \frac{d\bar{\varepsilon}_{tr}^n}{dm} = K_c = \Psi \left( \frac{\mu_{en}}{\rho} \right) \quad (3.29)$$

segundo a equação (3.11).

Se um dosímetro tem uma parede de meio  $w$  suficientemente grossa para excluir todas as partículas carregadas geradas na outra parte, e ao menos, tão grossa como a faixa máxima de partículas carregadas secundárias geradas nela por um campo de fótons, a leitura  $r$  do dosímetro proporciona uma leitura da dose  $D_g$  no volume sensível do dosímetro. Se o volume sensível é suficientemente pequeno, satisfazendo a condição de B-G de não perturbar o campo de partículas carregadas, e assumindo que a parede é irradiada uniformemente, o EPC existe na parede próxima à cavidade, e a teoria de B-G pode ser usada para determinar a dose  $D_w$  a partir daquela ( $D_g$ ) do volume sensível.

A dose  $D_x$  em qualquer outro meio  $x$  que substitua o dosímetro dando uma irradiação idêntica sob condições de EPC, pode ser obtida de:

$$D_x = D_w \frac{\overline{\left( \frac{\mu_{en}}{\rho} \right)}_x}{\overline{\left( \frac{\mu_{en}}{\rho} \right)}_w} \quad (3.30)$$

para fótons.

### 3.7 Características Dosimétricas do Sistema Alanina/EPR.

O efeito da radiação ionizante sobre a alanina e seu uso como dosímetro é avaliado pela técnica de Ressonância Paramagnética Eletrônica (RPE ou EPR), de onde nasce então, a técnica dosimétrica de alanina/EPR. A técnica de EPR será detalhada no Capítulo 4. A radiação ionizante produz na alanina radicais livres estáveis, os quais podem ser quantificados por meio de seu espectro de EPR, medindo a amplitude da linha central ( $h$ ) de este espectro (ver figura 3.5). Para propósitos de dosimetria, a amplitude  $h$  correlaciona-se diretamente com a dose de radiação e interpreta-se como a “leitura” do dosímetro.

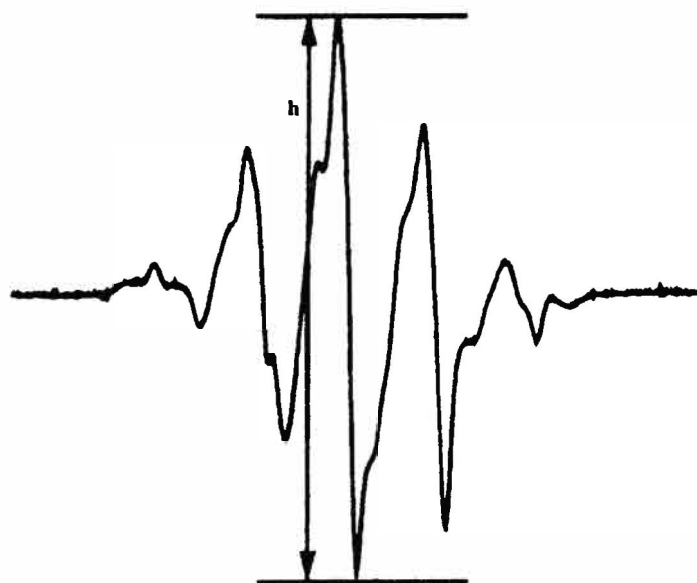


Figura 3.5 Espectro EPR da alanina irradiada. (Bergstrand et al, 1998).

O sistema Alanina/EPR possui características desejáveis para dosimetria: uma faixa de dose relativamente ampla cobrindo mais de quatro décadas, resposta independente da energia para fótons acima de 100 keV, estabilidade a longo prazo do sinal dosimétrico, pouco “fading”, resposta equivalente ao tecido, leitura direta e rápida do sinal, dentre outras. A seguir descrevem-se algumas destas características.

### Curva Dose-Efeito.

A relação entre a amplitude  $h$  do espectro de EPR da alanina com a dose absorvida é mostrada na figura 3.6 para irradiação com radiação gama de  $^{60}\text{Co}$ , mostrando uma faixa útil de doses de  $\sim 1$  Gy até  $10^5$  Gy.

#### Limite Inferior de Detecção:

A magnitude da leitura para dose zero e suas flutuações causadas pela reprodutibilidade na geometria da leitura da amostra, e a estabilidade do espectrômetro de EPR (fundo instrumental), determinam o limite inferior de detecção desta técnica dosimétrica. A magnitude da leitura a dose zero corresponde a uma dose de raios gama de aproximadamente 0,5 Gy até alguns Gy, e o limite inferior de detecção atingível é de  $\sim 1$  Gy (Regulla e Deffner, 1982).

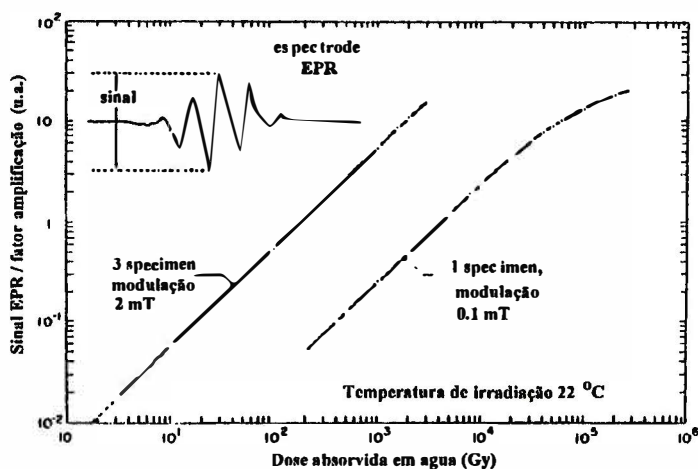


Figura 3.6 Curva dose-efeito para amostras de alanina/parafina.  
(Regulla e Deffner, 1982).

#### Região de Linearidade:

Segundo a figura 3.6, a sinal de EPR aumenta linearmente com a dose até  $10^4$  Gy. Acima desta faixa, o sistema alanina/EPR pode ser calibrado em termos de dose absorvida com uma amostra padrão única.

### Região de Saturação:

Acima de  $10^4$  Gy a função sinal EPR –vs- dose chega a ser sublinear e atinge a saturação, passando por um máximo em  $\sim 10^6$  Gy. A razão pode ser uma recombinação de radicais ou transformação em produtos não paramagnéticos (Regulla e Deffner, 1982).

### Dependência com a Energia.

Devido ao número atômico efetivo pequeno, o fator de calibração  $N(E)$  de amostras de alanina muda só ligeiramente com a energia do fóton em relação a resposta em tecidos biológicos. A figura 3.7 mostra a dependência da resposta do sinal de EPR com a energia do fóton normalizada para radiação gama de  $^{60}\text{Co}$ . Acima de 100 keV a função de resposta é essencialmente plana. Abaixo desta energia, a resposta diminui a aproximadamente 0,6 entre 10 keV e 50 keV devido ao alto conteúdo de carbono na alanina.

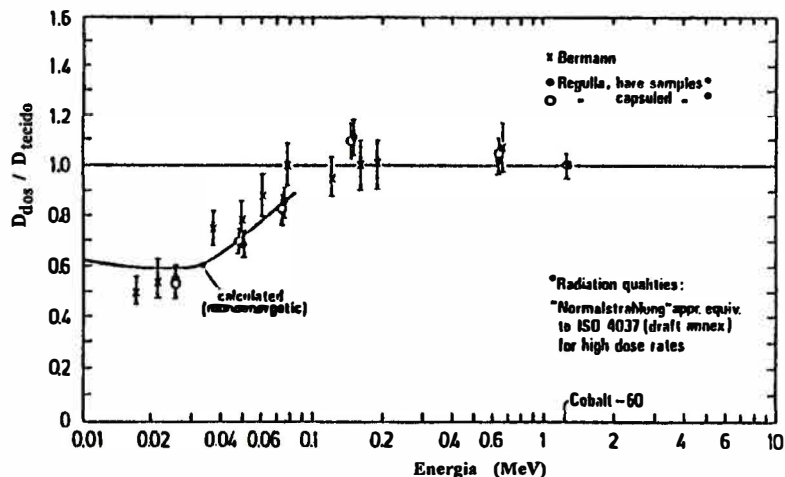


Figura 3.7 Resposta dependente da energia dos fótons em termos da razão de dose no dosímetro a dose em tecido mole, normalizado com  $^{60}\text{Co}$  em condições de EPC. (Regulla e Deffner, 1982).

### Fontes de Incertezas.

A incerteza global da dosimetria alanina/EPR é uma combinação da incerteza do padrão secundário ou dosímetro de referência usado para a calibração, e a incerteza intrínseca do sistema EPR (espectrômetro e sistema de detecção). Entre as diferentes fontes de incerteza tem-se: temperatura de irradiação, condições de armazenamento, efeitos da luz, e estabilidade do espectrômetro de EPR (Bergstrand e outros, 1998).

### Avaliação da Dose.

A avaliação da dose através do sistema alanina/EPR segue a equação:

$$D = N(E) (M - M_0) K_n K_r \quad (3.31)$$

onde  $D$  = dose absorvida em tecido ou no meio de referência;

$M$  = leitura de uma amostra exposta a radiação, ou seja, amplitude  $h$  do espectro;

$M_0$  = sinal a dose zero para uma amostra não exposta;

$N(E)$  = fator de calibração por energia;

$K_n$  = fator de correção para a não linearidade da relação dose-efeito para valores acima de  $10^4$  Gy;

$K_r$  = fatores de correção que levam em conta condições de irradiação diferentes das condições de calibração, por exemplo: temperatura de irradiação, armazenamento, etc.

Este capítulo foi baseado nos seguintes autores: Attix (1986), Regulla & Deffner (1982), Attix (1983), Carlsson & Carlsson (1982), Bergstrand e outros (1998).

## Capítulo 4. Fundamentos da Ressonância Paramagnética Eletrônica.

### 4.1 Aspectos gerais.

A espectroscopia por Ressonância Paramagnética Eletrônica (Electron Paramagnetic Resonance-EPR), ou por Ressonância Spin Eletrônico (Electron Spin Resonance-ESR), como também é chamada, é uma técnica que permite detectar, e algumas vezes, caracterizar moléculas com elétrons desemparelhados (espécies paramagnéticas), sem alterar ou destruir as moléculas. Alguns exemplos destas espécies são: radicais livres, biradicaís, defeitos pontuais em sólidos ou imperfeições cristalinas. Os radicais livres encontram-se frequentemente em sistemas biológicos, e são moléculas com um só elétron desemparelhado. Para poder detectar estas moléculas, o elétron desemparelhado deve absorver energia electromagnética em presença de um campo magnético. Regulla e Defner (1982) definem o fenómeno EPR como a absorção ressonante de energia eletromagnética em substâncias paramagnéticas pela transição do spin de um elétron desemparelhado entre diferentes níveis de energia, em presença de um campo magnético. As primeiras observações experimentais da ressonância paramagnética eletrônica foram reportadas em 1945 por Zavoisky medindo a potência absorvida na faixa de radiofrequência. Cumberow e Halliday, em 1946, também realizaram medições de EPR mas na região das microondas.

### 4.2 O fenómeno da ressonância paramagnética.

O paramagnetismo das substâncias paramagnéticas surge devido à circulação de cargas elétricas em escala atômica (movimento do elétron desemparelhado). O elétron desemparelhado, ligado à uma molécula, possui momento angular orbital ( $L$ ) e momento angular de spin ( $S$ ). O momento dipolar magnético ( $\mu$ ) devido a estes dois momentos angulares expressa-se por:

$$\mu = -(\beta L + \gamma S) \quad (4.1)$$

onde  $\beta = e\hbar/2m_e c$  é o magneton de Bohr,  $\gamma = ge/2m_e c$  é a razão giromagnética, e  $g$  é denominado fator de desdobramento espectroscópico, que vale 2,0023 para um elétron livre. O sinal negativo da equação (4.1) surge devido a carga negativa do elétron. Na grande maioria dos casos, 99% ou mais do momento dipolar magnético é devido ao momento

angular de spin, com uma pequena contribuição do momento angular orbital. Por esta razão, a equação (4.1) pode ser escrita como:

$$\mu \approx -\gamma S \quad (4.2).$$

Quando a molécula é colocada dentro de um campo magnético  $H$ , surge uma interação entre o momento dipolar magnético com o campo magnético, que é expressada pelo Hamiltoniano:

$$\mathcal{H} = -\mu \cdot H = -\gamma S \cdot H \quad (4.3)$$

e a energia de interação é dada por:  $E = -\mu \cdot H \quad (4.4)$

Se o modulo do campo magnético é  $H$  e está na direção  $z$ , a equação (4.4) pode ser escrita como:

$$E = -\mu_z H \quad (4.5)$$

onde:  $\mu_z = -\gamma S_z \quad (4.6)$

e  $S_z = m_s \hbar \quad (4.7)$

$S_z$  representa a componente do operador  $S$  na direção  $z$ , cujos autovalores são  $m_s$  (número quântico de spin). Para moléculas com um elétron desemparelhado  $S_z = \frac{1}{2}$ , os possíveis valores para  $m_s$  são:  $+1/2$  e  $-1/2$ . Então, a expressão (4.5) para a energia fica como:

$$E = \gamma S_z H = (ge/2m_e c)m_s \hbar H = g(e\hbar/2m_e c)m_s H = g\beta m_s H = \pm 1/2 g\beta H \quad (4.8)$$

A expressão (4.8) fornece as energias Zeeman do elétron e representam os dois possíveis níveis de energia (figura 4.1) em que pode estar o elétron quando é colocado num campo magnético de intensidade  $H$ . A equação 4.8 indica que para  $H = 0$ , as energias Zeeman são zero, e que estas energias variam linearmente com o campo.

Agora, quando uma onda eletromagnética de energia  $h\nu$  incide sobre a molécula (que está dentro do campo  $H$ ), esta onda pode induzir transições do elétron desemparelhado entre os dois níveis Zeeman. Toda vez que acontece uma transição, ocorre uma absorção de energia

### 4.3 Absorção de Energia e Relaxação Spin-Rede.

De acordo com a equação (4.10), cada vez que uma onda eletromagnética de energia  $h\nu$  interage com um elétron desemparelhado (localizado num campo magnético  $H_r$ ), faz com que este experimente uma transição do nível inferior, com energia  $-\frac{1}{2}g\beta H_r$ , ao nível superior, com energia  $+\frac{1}{2}g\beta H_r$ , ou vice-versa (ver figura 4.2), se diz que o sistema absorve energia da onda eletromagnética. Paralelamente a isto acontece também o contrário, ou seja, um elétron pode experimentar uma transição desde o nível superior para o inferior (ou vice-versa) e ceder energia ao ambiente que o rodeia (rede).

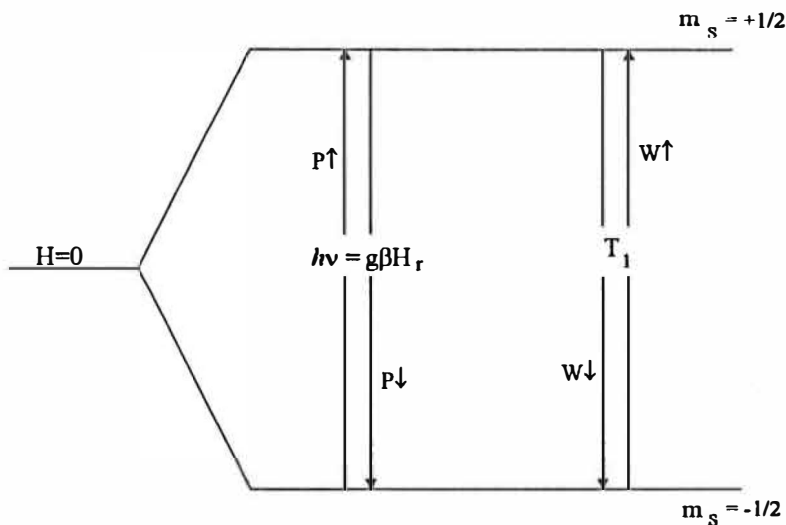


Figura 4.2 Transições do elétron entre os dois níveis de energia provocado por a ressonância e por a relaxação spin-rede. (McMillan, 1975).

Na ausência de onda eletromagnética (mas, na presença do campo  $H$ ), se o sistema de spins encontra-se à temperatura absoluta  $T$ , existirá uma diferença de população ( $n_0$ ) entre os dois níveis de energia. Se  $N_+$  representa o número de spins no nível superior e,  $N_-$  representa o número de spins no nível inferior, então, os spins se distribuirão entre os dois níveis de acordo a distribuição de Boltzmann:

$$\frac{N_+}{N_-} = \exp\left(-\frac{\Delta E}{kT}\right) = \exp\left(-\frac{g\beta H}{kT}\right) \quad (4.11)$$

$n_0$  representa a diferença de população no equilíbrio termodinâmico, e esta diferença é necessária para que exista absorção de energia na presença da onda eletromagnética. Contudo, o sistema de spins não pode ganhar energia indefinidamente, e então, deve liberar o



excesso de energia. O que é conseguido pelo mecanismo de relaxação spin-rede. Toda vez que o valor de  $N_+$  supera o valor no equilíbrio termodinâmico, por causa da absorção de energia da onda, este mecanismo de relaxação, caracterizado por um tempo  $T_1$  (chamado de tempo de relaxação spin-rede), restabelece o equilíbrio, permitindo desta forma, que a absorção tenha lugar em forma estacionária e que a ressonância possa ser observada em forma contínua.

Tudo o que foi anteriormente falado pode ser explicado melhor com as probabilidades de transição de cada processo. Se  $P\uparrow$  representa a probabilidade por unidade de tempo de que o elétron experimente uma transição do nível inferior ao superior produzida por uma onda eletromagnética, e  $P\downarrow$  a probabilidade de transição contrária (ver figura 4.2), então, a taxa de mudança do nível superior (por causa da ressonância) é dada por:

$$\frac{dN_+}{dt} = N_-P\uparrow - N_+P\downarrow \quad (4.12).$$

Se  $N = N_+ + N_-$  representa o número total de spins e,  $n = N_+ - N_-$  representa a diferença de spins entre os dois níveis, então:

$$N_+ = \frac{1}{2}(N + n) \quad \text{e} \quad N_- = \frac{1}{2}(N - n) \quad (4.13),$$

e a equação (4.12) pode ser escrita como:

$$\frac{dn}{dt} = N(P\uparrow - P\downarrow) - n(P\uparrow + P\downarrow) \quad (4.14).$$

Se assume-se que  $P\uparrow = P\downarrow = P$ , a equação (4.14) fica como:

$$\frac{dn}{dt} = -2nP \quad (4.15)$$

A probabilidade  $P$  está relacionada com a intensidade da onda eletromagnética.

Agora, se  $W\uparrow$  representa a probabilidade por unidade de tempo de que a relaxação spin-rede produza a transição do nível inferior ao superior e,  $W\downarrow$  a probabilidade para a transição

contrária (ver figura 4.2), então, a taxa de mudança do nível superior (causada pela relaxação) é dada por:

$$\frac{dN_+}{dt} = N_- W \uparrow - N_+ W \downarrow \quad (4.16).$$

Usando as expressões (4.13), a equação (4.16) fica como:

$$\frac{dn}{dt} = N(W \uparrow - W \downarrow) - n(W \uparrow + W \downarrow) \quad (4.17).$$

Se  $T_1 = 1/(W \uparrow + W \downarrow)$ , representa o tempo característico que o sistema demora para atingir o equilíbrio térmico;

e,  $n_0 = N(W \uparrow - W \downarrow)/(W \uparrow + W \downarrow)$ , representa a diferença de população no equilíbrio térmico.

então, a equação (4.17) fica como:

$$\frac{dn}{dt} = \frac{n_0 - n}{T_1} \quad (4.18).$$

Neste caso,  $W \uparrow \neq W \downarrow$  porque se não,  $n_0$  seria zero.

Combinando as equações (4.15) e (4.18) tem-se a taxa de transição total devida a onda eletromagnética e a relaxação spin-rede:

$$\frac{dn}{dt} = \frac{n_0 - n}{T_1} - 2nP \quad (4.19).$$

No estado estacionário,  $dn/dt = 0$ , e (4.19) fica como:

$$n = \frac{n_0}{1 + 2PT_1} \quad (4.20).$$

Se  $2PT_1 \ll 1$ , então  $n \approx n_0$  e a absorção de energia da onda eletromagnética não perturba muito a diferença de população de seu valor ( $n_0$ ) no equilíbrio termodinâmico. No entanto, se  $P \gg 1/T_1$ , o sistema de spines não pode liberar o excesso de energia absorvida para a rede o suficientemente rápido e então, a diferença de população tende a zero ( $n \rightarrow 0$ ). Esta condição é conhecida como saturação de microondas. Como a probabilidade  $P$  depende da potência das microondas, a forma de evitar a saturação é utilizando valores de potência os mais pequenos possíveis. Além disso, o aumento da potência para aumentar a sensibilidade está limitado pela condição de saturação.

#### 4.4 Interação nuclear hiperfina.

Além do campo magnético externo, o elétron desemparelhado sente outro campo, chamado de campo local e que adiciona-se vetorialmente ao campo externo, produzido pelos núcleos vizinhos. A interação entre o elétron desemparelhado e o momento magnético de um núcleo vizinho chama-se de interação nuclear hiperfina. Este tipo de interação faz com que os níveis de energia do elétron (figuras 4.1 e 4.2) sofram um desdobramento criando uma estrutura espectral chamada de estrutura hiperfina (ver figura 4.3).

O spin nuclear está caracterizado pelo número quântico  $I$ , e como no caso do elétron, a componente em  $z$  do spin nuclear está quantizada e é representada pelo número quântico  $m_I$ . Para um núcleo com spin  $I$ ,  $m_I$  pode adquirir  $2I+1$  valores possíveis, o que significa que existem  $2I+1$  estados possíveis do spin nuclear.

O campo magnético local ( $\mathbf{H}_{\text{local}}$ ) gerado pelo momento magnético do núcleo adiciona-se vetorialmente ao campo magnético externo ( $\mathbf{H}_{\text{ext}}$ ) para dar um campo efetivo:

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = \mathbf{H}_{\text{ext}} + \mathbf{H}_{\text{local}} \quad (4.21)$$

$$\mathbf{H}_{\text{ext}} = \mathbf{H}_{\text{eff}} - \mathbf{H}_{\text{local}} \quad (4.22).$$

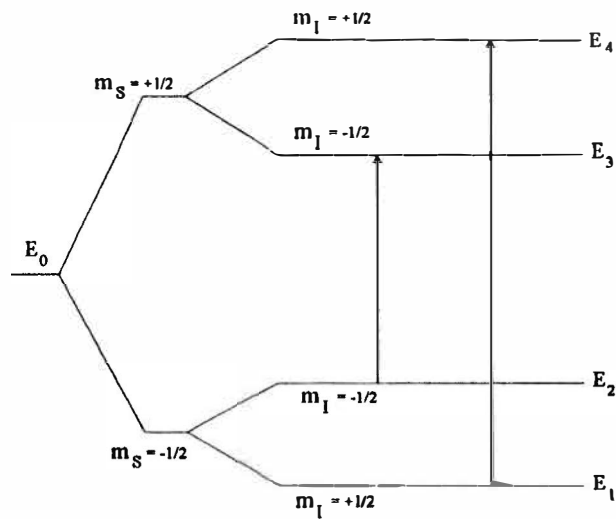


Figura 4.3 Esquema de níveis de energia para um sistema com  $S = I = \frac{1}{2}$  na presença de um campo magnético externo intenso. (McMillan, 1975).

Como  $H_{\text{local}}$  depende de  $m_I$ , a ressonância pode ser observada para  $2I+1$  valores do campo magnético externo  $H_{\text{ext}}$ . Assim, o espectro ESR consistirá de várias linhas de igual intensidade, conhecidas como linhas de desdobramento hiperfino, e a separação ( $a$ ) entre as linhas é chamada de constante de desdobramento hiperfino, a qual é uma medida da intensidade da interação entre o elétron e o núcleo.

Por exemplo, no caso do átomo de hidrogênio, com um elétron desemparelhado ( $S = \frac{1}{2}$ ) e um núcleo magnético de spin  $I = \frac{1}{2}$ , então, o núcleo tem dois possíveis estados de spin dados por  $m_I = \pm \frac{1}{2}$ , e cada nível de energia eletrônico divide-se em dois (ver figura 4.3). Neste caso a ressonância pode ser observada para dois valores do campo magnético externo e, o espectro de EPR consistirá de duas linhas de absorção produzidas pelas transições indicadas pelas setas da figura 4.3. O espectro é mostrado na figura 4.4, e consiste de duas linhas de igual intensidade separadas por  $a = 508\text{G}$ .

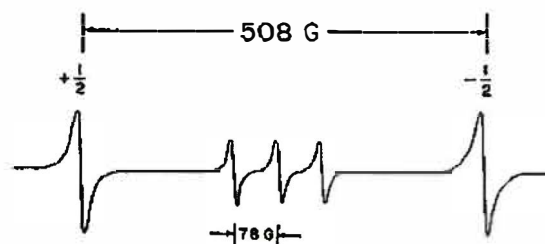


Figura 4.4 Espectro de EPR para o hidrogênio atômico. (McMillan, 1975).

### Interação Hiperfina com vários núcleos.

Devido à extensão espacial da função de onda de um elétron desemparelhado, é freqüente observar interação hiperfina com mais de um núcleo. Desta forma, a interpretação da estrutura hiperfina permite conhecer o estado do elétron. Existem dois casos limites: a) quando o elétron desemparelhado está localizado principalmente num íon central rodeado de átomos pertencentes a moléculas coordenadas (íons de metais de transição), predomina a interação com o núcleo central, no entanto a interação com os núcleos dos átomos coordenados é muito menor; b) no outro caso, o elétron desemparelhado interage igualmente com um número de núcleos equivalentes, e é comum em radicais orgânicos.

Um exemplo deste último caso é o radical metilo ( $\dot{\text{C}}\text{H}_3$ ), onde o elétron desemparelhado só apresenta interação com os três núcleos equivalentes de hidrogênio, produzindo um espectro de quatro linhas (ver figura 4.5) na relação de intensidade 1:3:3:1.



Figura 4.5 Espectro de EPR do radical metilo. (McMillan, 1975).

No caso geral de  $n$  núcleos equivalentes de spin  $I = \frac{1}{2}$  observam-se  $n + 1$  linhas. Já que o núcleo  $j$  duplica cada linha produzida pelo núcleo  $j - 1$ , com a superposição parcial devido a equivalência, as intensidades das linhas do espectro são proporcionais aos coeficientes do binômio de Newton (ver tabela 4.1 e figura 4.6).

Tabela 4.1 Coeficientes do Binômio.

$n$ ( $I = 1/2$ )	Intensidade relativa das linhas ESR	Número de linhas
0	1	1
1	1 1	2
2	1 2 1	3
3	1 3 3 1	4
4	1 4 6 4 1	5
5	1 5 10 10 5 1	6
...	...	...

(Modificada de Swartz, 1972).

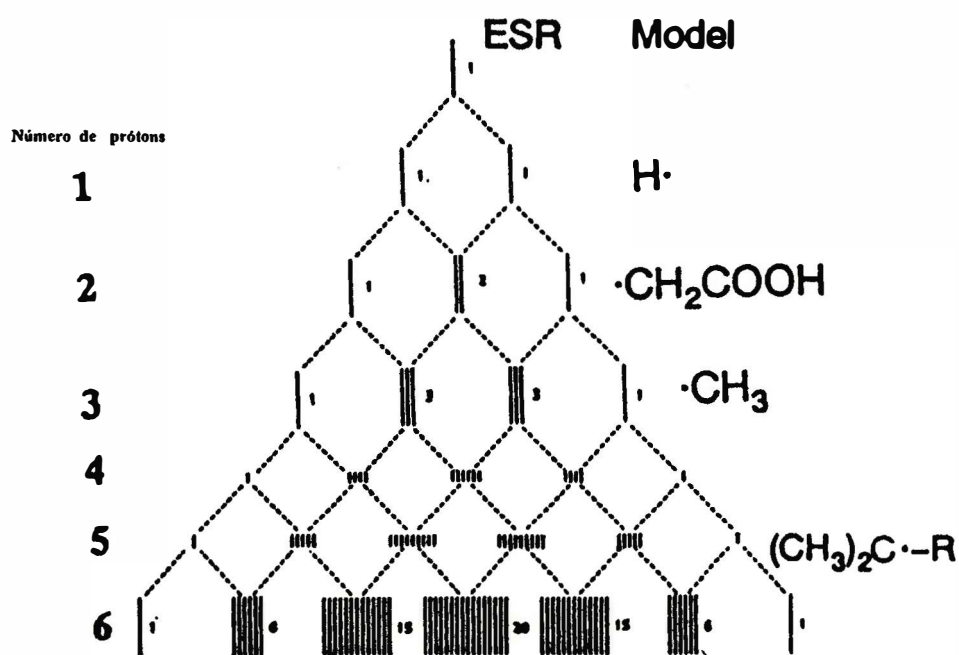


Figura 4.6 Desdobramento teórico devido a interação hiperfina do próton. (Ikeya, 1993).

## 4.5 Parte Experimental da Ressonância Paramagnética Eletrónica.

Um equipamento moderno de EPR mostra-se na figura 4.8

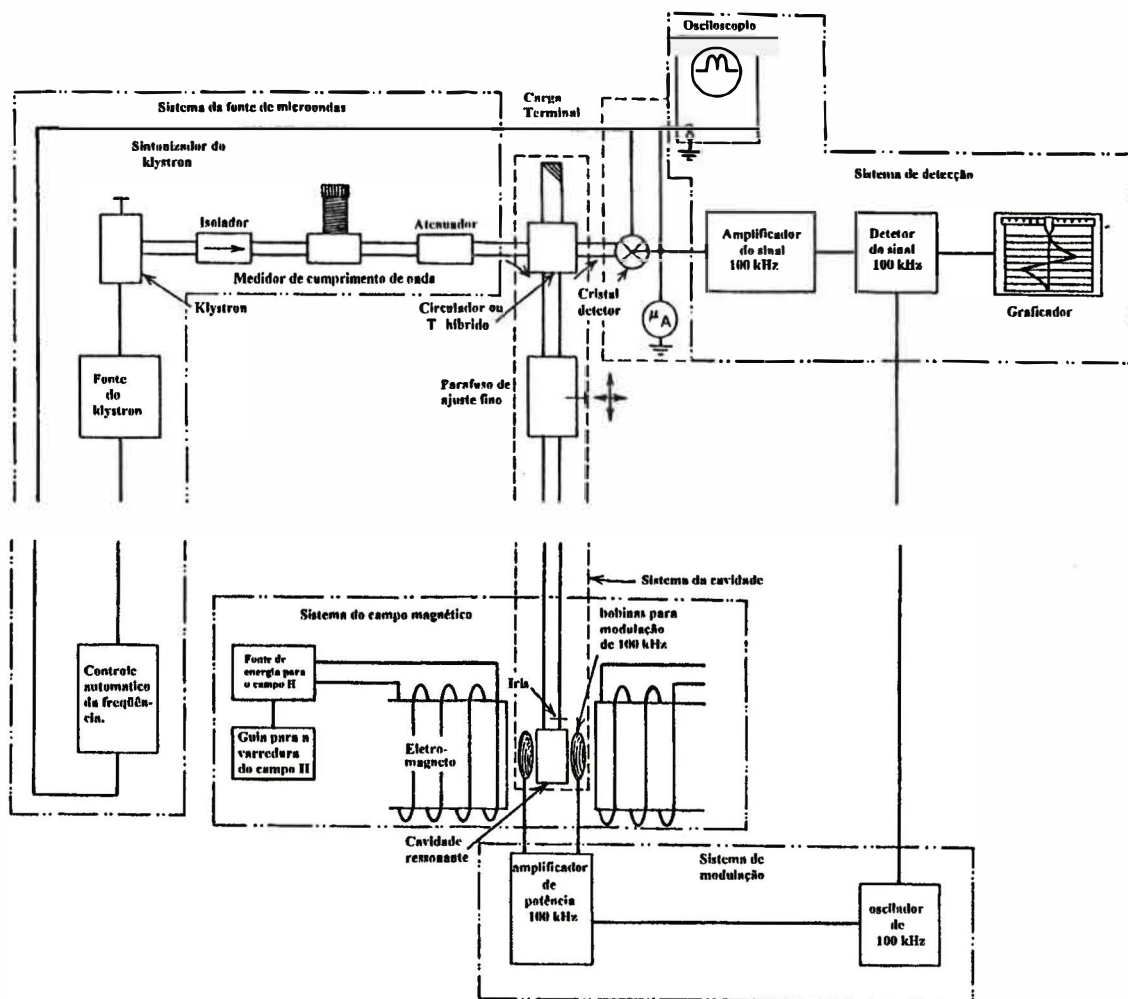


Figura 4.8 Diagrama de um espectrômetro de EPR operando na banda-X utilizando uma detecção sensível a fase de 100 kHz. (Swartz, 1972).

O equipamento consta de várias partes: a) a fonte do campo magnético externo; b) a fonte de microondas; c) a guia de ondas e a cavidade ressonante; d) o sistema de detecção e registro do espectro.

### **Fonte do Campo Magnético Externo.**

O campo magnético é produzido com eletroímãs que geram um campo suficientemente homogêneo sobre o volume da amostra. O valor do campo pode variar entre zero e vários milhares de gauss. O campo deve ser homogêneo no espaço e constante no tempo mas variações menores de 10mG podem acontecer no local da amostra para trabalhos de alta resolução, e variações até de 100mG são geralmente aceitáveis com amostras biológicas devido a presença de linhas inerentemente largas. A homogeneidade obtém-se com peças polares de desenho apropriado que podem ter um diâmetro de até 40cm e uma separação de 4 a 8cm. A estabilização do campo é conseguida usando um dispositivo sensível a campo magnético tal como um cristal de efeito Hall. A voltagem de saída do cristal Hall é uma função linear do campo magnético e é usado em uma retroalimentação para estabilizar o campo e permitir sua variação em forma linear.

### **Fonte de Microondas.**

Existem vários tipos de fontes de microondas: magnetrons, klytrons, e geradores de estado sólido tais como varactors, e osciladores de efeito Gunn. O gerador de microondas mais usado até o presente é o klystron. Recentemente geradores de diodo Gunn começaram a ser utilizados.

O klystron gera potência de microondas na faixa de frequências de 500 até 35000 MHz, e alguns produzem potência de onda contínua (CW) até 25 kW. Outros produzem potência pulsada de até  $10^4$  W, mas em espectrômetros de ressonância paramagnética eletrônica, o klystron proporciona saída de CW com potências menores de 1W. O klystron é uma válvula formada por um cátodo esquentado por corrente contínua, um ânodo e um eletrodo refletor. O ânodo é uma cavidade adjacente a uma caixa cujas paredes frente ao cátodo e ao refletor são grelhas metálicas. A cavidade está formada pelo corpo da válvula de tal forma que o ânodo está ao potencial de terra. Lateralmente, o ânodo termina numa janela de material isolador que acopla-se ao guia de ondas. Ao aplicar um potencial negativo ao cátodo, os elétrons emitidos (por emissão termoiônica) aceleram-se para o ânodo atravessando as grelhas em direção ao refletor. Como o potencial do refletor também é negativo, os elétrons são freados e repelidos pelo refletor voltando ao ânodo. Para determinados potenciais do refletor, os elétrons emitidos pelo cátodo e os repelidos pelo refletor começam a



oscilar em fase, e a densidade de elétrons muda periodicamente em forma sustentada. Estas oscilações são as que geram as microondas.

### **Guia de Ondas e Cavidade Ressonante.**

Para levar as microondas para a cavidade ressonante utiliza-se uma guia de onda, a qual é um tubo oco cumprido de seção transversal retangular com paredes internas metálicas e polidas. Suas dimensões estão determinadas pelo comprimento de onda das microondas (3 cm no caso de 9 GHz). As componentes da ponte de microondas são: o T mágico, o isolador, o medidor de comprimento de onda (ou frequência), e o atenuador.

O T mágico é um dispositivo que serve para acoplar a energia da microonda para dentro e fora da cavidade ressonante. Atua dirigindo a microonda que sai do klystron para a cavidade ressonante, e a microonda que é refletida pela cavidade é dirigida para o detector. Em muitos espectrômetros modernos, esta função é realizada por um circulador.

Num espectrômetro típico, o T mágico está conectado com o klystron através de um isolador e um atenuador. O isolador é um dispositivo de ferrita que faz circular a microonda num sentido só. Desta forma impede-se que as ondas refletidas na ponte retornem ao klystron. O atenuador é uma peça de material dielétrico de superfície condutora que é introduzido no guia de ondas e absorve uma fração variável da potência gerada pelo klystron.

A cavidade ressonante é um dispositivo usado para concentrar a energia das microondas de tal forma que ao colocar a amostra dentro de cavidade pode absorver a maior quantidade de potência possível. A cavidade ressonante pode ser retangular ou cilíndrica, de transmissão ou reflexão. Uma cavidade de transmissão tem um orifício de acoplamento em ambos de seus extremos para a guia de onda. Uma cavidade de reflexão tem um orifício de acoplamento só num de seus extremos, que recebe o nome de iris. A cavidade de reflexão é mais usada que a de transmissão devido à sua habilidade superior para discriminar contra o ruído produzido pelo klystron. Como dentro da cavidade produzem-se ondas estacionárias, ao colocar a amostra dentro dela, a posição da amostra deve coincidir com a de máximo campo magnético e de mínimo campo elétrico. O grau na qual uma cavidade é capaz de amplificar a intensidade da microonda é descrita pelo fator  $Q$  definido por

$$Q = 2\pi(\text{máxima energia da microonda armazenada na cavidade}) / (\text{energia perdida por ciclo}).$$

Valores de  $Q$  da ordem de 5000 a 10000 são típicos para cavidades retangulares de boa qualidade operando na banda-X.

### Sistema de Detecção e Registro do Espectro.

Os espectrômetros de EPR modernos usam um diodo semiconductor para detectar as microondas, atuando como um retificador, transformando as microondas em corrente contínua. Quando o campo magnético externo atinge o valor em ressonância, a amostra começará a absorver energia das microondas. Isto causará uma pequena diminuição no  $Q$  da cavidade e, por conseguinte, uma diminuição nas microondas refletidas. Desta forma, uma absorção ressonante aparecerá como uma mudança na corrente no detetor.

A detecção DC desta mudança na corrente é acompanhada por ruído considerável. Não obstante, consegue-se que o sinal que carrega a informação apareça numa frequência só, enquanto que as outras frequências são filtradas, com isso obtém-se um considerável melhoramento na relação sinal/ruído. Esta técnica de detecção é conhecida como *detecção sensível a fase*. Para realizar este tipo de detecção, colocam-se um par de bobinas de Helmholtz (controladas por um oscilador) em ambos lados da cavidade ressonante (ver figura 4.8). Desta forma, um campo magnético AC de amplitude pequena e de frequência  $\nu_m$  (100 kHz) é superposto ao campo DC. Quando o campo magnético na amostra está perto da ressonância, uma componente do sinal detectado estará modulado na frequência  $\nu_m$ . Este sinal é amplificado num amplificador de banda estreita, cuja saída serve como uma das entradas do detetor sensível a fase. A outra entrada deste detetor é um porção do sinal que controla as bobinas de modulação (bobinas de Helmholtz). A saída filtrada do detetor é proporcional tanto à diferença de amplitude como à diferença de fase das dois sinais de entrada.

A saída do detetor sensível a fase é retificada e enviada a um registrador que pode ser um osciloscópio, graficador, ou microcomputador. Se a amplitude do campo de modulação mantém-se pequena comparada com a largura do sinal de EPR, o sinal registrado será próximo da *primeira derivada* (ou primeiro harmônico) do sinal de absorção (ver figuras 4.10 e 4.11). Este último explica-se com ajuda da figura 4.9, onde mostra-se que quando o campo muda entre  $H_a$  e  $H_b$ , a corrente no detetor muda entre  $i_a$  e  $i_b$ . Se a passagem é pequena,  $i_a - i_b$  será proporcional a inclinação da curva de absorção. Alguns sistemas de

detecção podem registrar-se a *segunda derivada* (ou segundo harmônico) da absorção (ver figura 4.10 e 4.11). Isto logra-se detectando a  $2\nu_m$  enquanto modula-se a  $\nu_m$ .

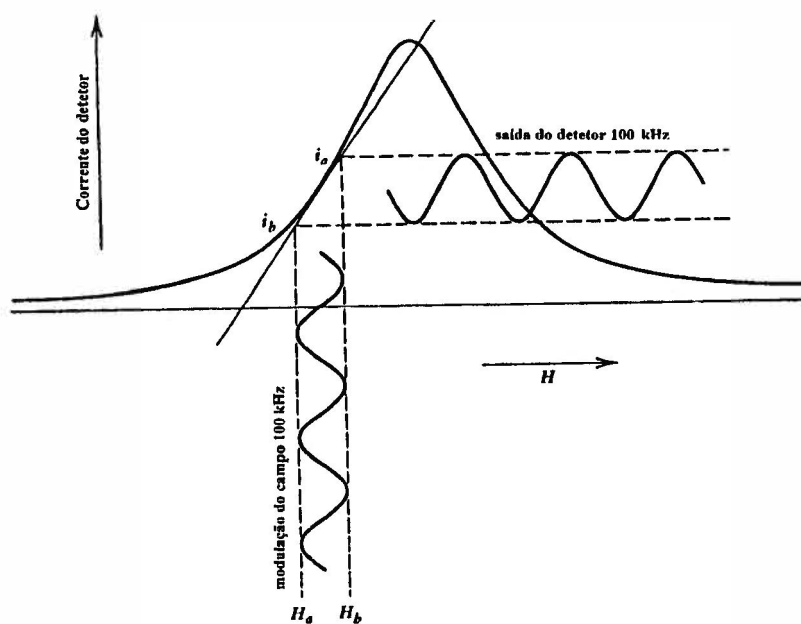


Figura 4.9 Efeito da modulação de 100 kHz do campo magnético sobre a corrente de saída do detetor. (Swartz et.al., 1972).

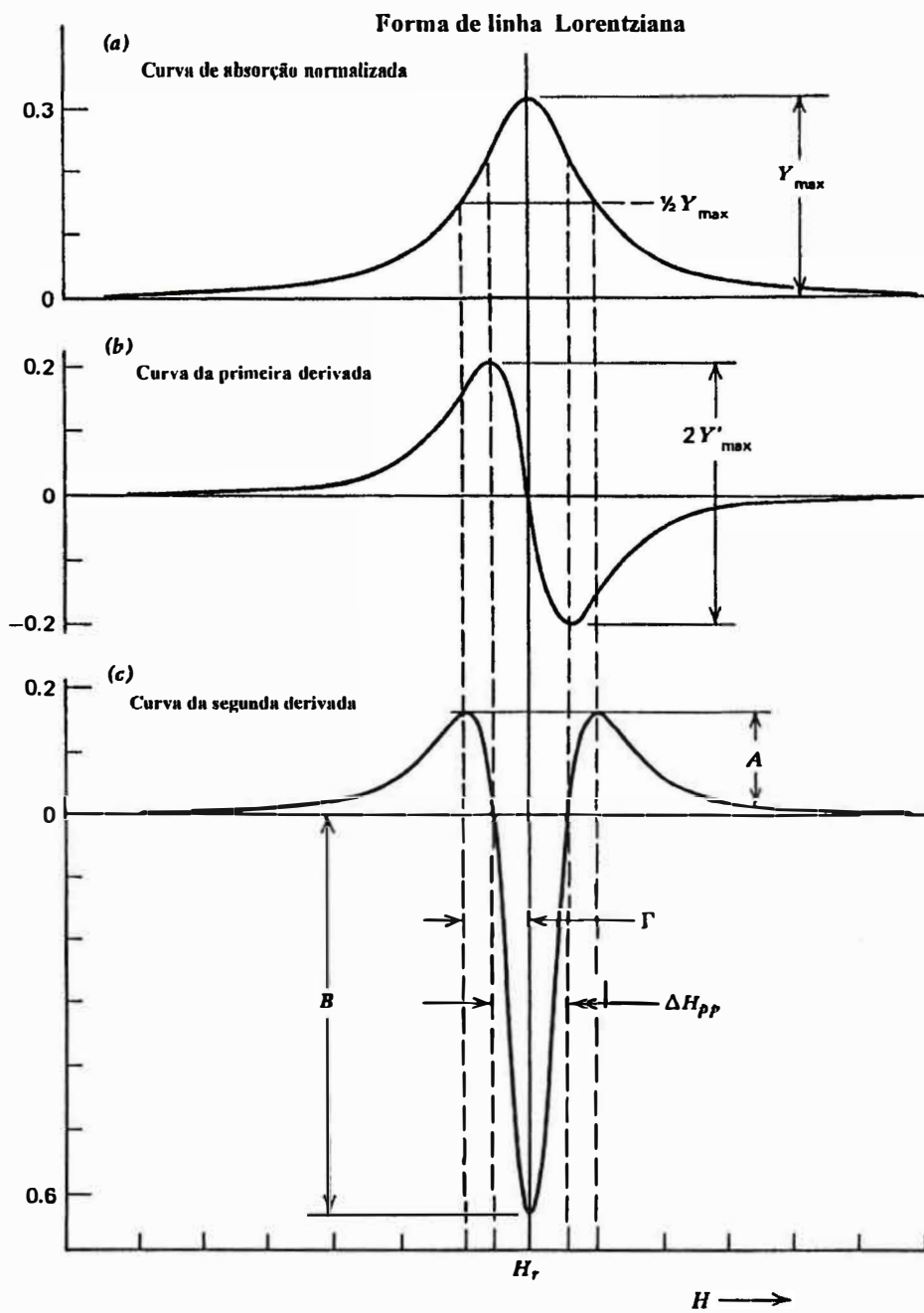


Figura 4.10 Forma de linha lorentziana mostrando (a) o sinal de absorção; (b) o sinal da primeira derivada; (c) o sinal da segunda derivada. (Swartz et al., 1972).

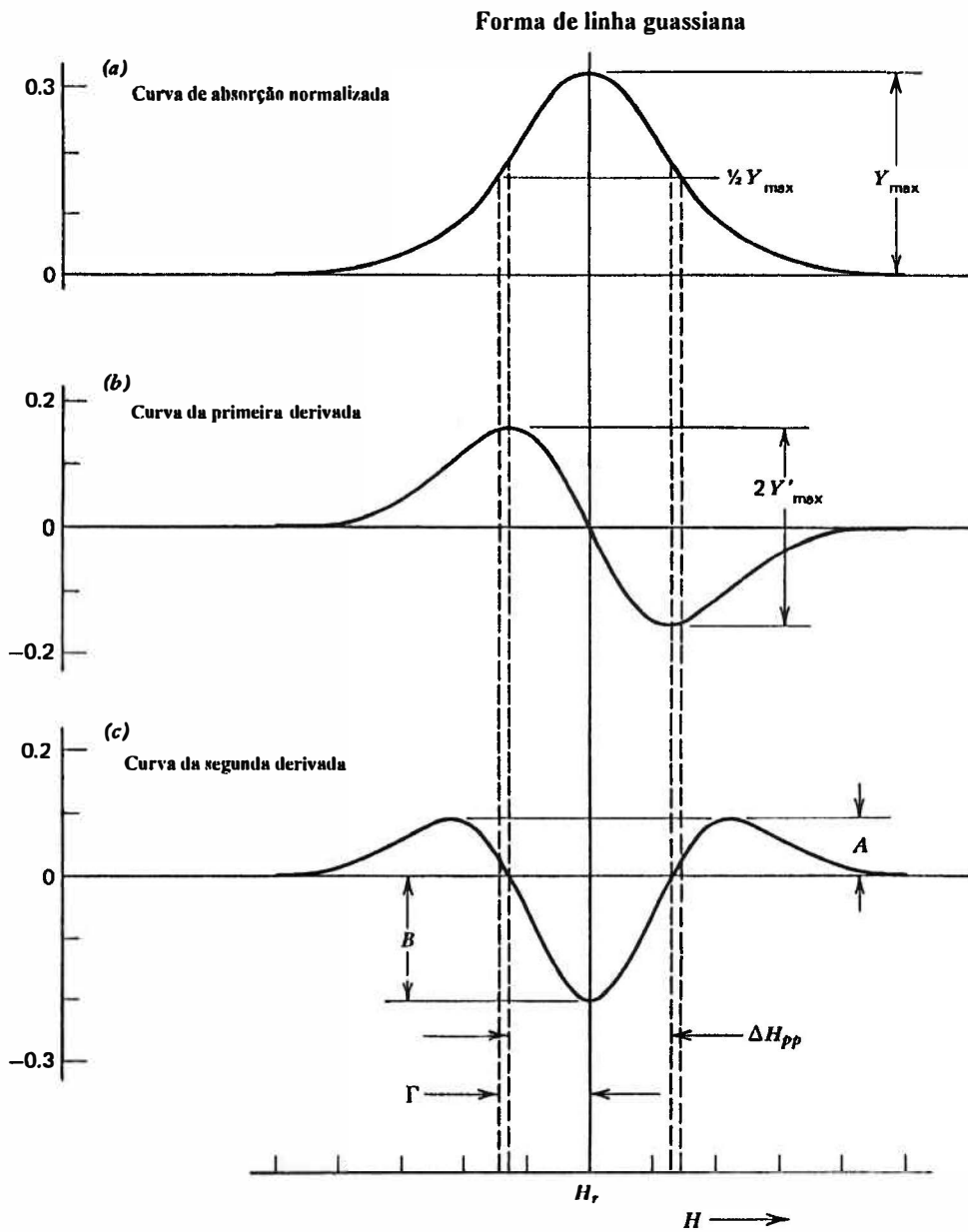


Figura 4.11 Forma de linha gaussiana mostrando (a) o sinal de absorção; (b) o sinal da primeira derivada; e (c) o sinal da segunda derivada. (Swartz et.al., 1972).

#### 4.6 Formas de linha e largura.

As formas de linha dos sinais de EPR de materiais biológicos são usualmente assimétricas. No entanto, quando são encontradas formas de linha simétricas, elas podem ser caracterizadas por dois tipos principais: a linha lorentziana (figura 4.10), ou a linha gaussiana (figura 4.11). A forma de linha lorentziana é geralmente encontrada para radicais livres de baixo peso molecular em solução. Esta forma de linha implica que todos os radicais estão ressonando no mesmo campo magnético. Por outro lado, a forma de linha gaussiana é mais comum em sistemas biológicos. Esta forma de linha pode resultar de um sistema no qual cada entidade paramagnética ressona a um campo magnético ligeiramente diferente, principalmente devido a que a linha aparente é realmente uma envolvente de componentes hiperfinos não resolvidos de larguras de linhas intrínsecamente finas.

Observando as figuras 4.10 e 4.11, nota-se que independentemente da forma de linha ser lorentziana ou gaussiana, a amplitude do sinal da primeira derivada define-se pela distância  $2Y'_{\max}$ , e a amplitude do sinal da segunda derivada define-se como a distância  $A + B$ . A largura da linha expressa-se em unidades de campo magnético (G ou mT) e define-se pela distância  $\Delta H_{pp}$ . Segundo Poole (1983), independente de se a forma de linha é lorentziana ou gaussiana, a distância  $H''_2$  define-se como  $H''_2 = 3^{1/2} \Delta H_{pp}$  (ver figura 4.12).

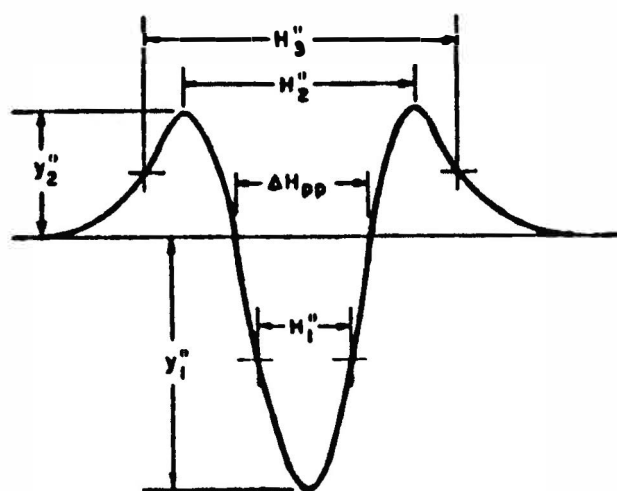


Figura 4.12 Definições dos parâmetros usados para caracterizar o sinal de EPR da segunda derivada. (Poole, 1983).

Geralmente as formas de linha dos sinais de EPR são afetadas por parâmetros tais como: a potência de microondas, a amplitude de modulação do campo magnético, e a frequência de modulação do campo magnético. Por exemplo, a potência de microondas afeta a amplitude do sinal de forma tal que ao aumentar a potência ocorre um incremento na amplitude do sinal. Na prática deve-se usar um valor de potência menor que o valor requerido para atingir a condição de saturação. Por outro lado, a amplitude de modulação afeta tanto a amplitude como a largura do sinal de EPR. Como o sinal registrado é uma aproximação da primeira derivada da curva de absorção, a amplitude finita da modulação limita a precisão desta aproximação. Para uma amplitude de modulação pequena, isto é, menor que a largura da linha, a forma da curva da primeira derivada é constante e sua amplitude é proporcional a modulação. Para uma modulação maior (maior que a largura da linha), esta proporcionalidade se perde, já que, em caso de uma sobremodulação, a modulação também afeta a largura da linha aumentando-a e por conseguinte, diminuindo a amplitude do sinal (ver figura 4.13). Na prática, é comum usar uma modulação pequena, no entanto, em certas condições pode-se utilizar uma sobremodulação para registrar o sinal de EPR.

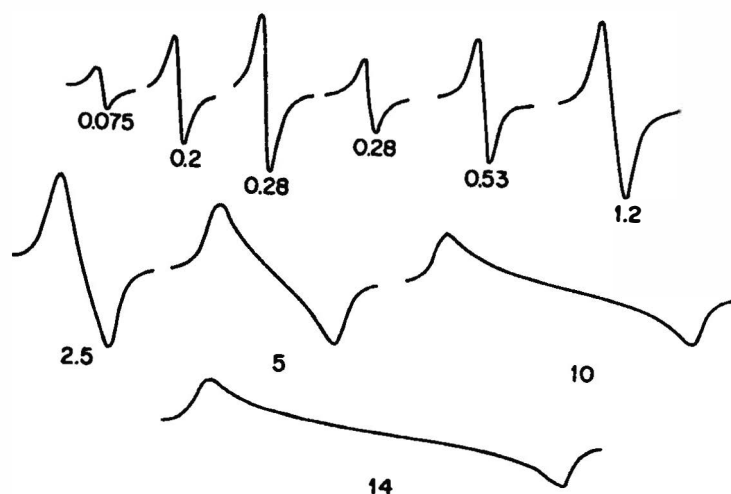


Figura 4.13 Distorção do sinal de EPR da primeira derivada causada por uma sobremodulação. (Poole, 1983).

#### 4.7 Espectro de EPR da alanina.

O espectro de EPR para a alanina irradiada é mostrado na figura 3.5 do Capítulo 3. Nela apreciam-se as cinco linhas características que representam a estrutura hiperfina devido à interação equivalente dos momentos magnéticos de quatro prótons com o momento magnético do elétron desemparelhado no radical livre predominante à temperatura ambiente. Como são quatro os prótons que interagem com o elétron desemparelhado, a relação de intensidade entre as cinco linhas é 1:4:6:4:1 (ver tabela 4.1).

A análise do espectro de EPR da alanina irradiada permite a determinação da concentração de spins na amostra para uma dada dose de radiação. Na ausência de saturação, o número de spins desemparelhados na amostra é proporcional a área sob a curva de absorção (ver figuras 4.10a, e 4.11a). Mas, como geralmente é registrado a primeira derivada do espectro de EPR, precisa-se de uma dupla integral deste espectro para se conhecer a área sob a curva de absorção. A concentração absoluta de spins pode ser determinada relacionando o espectro de EPR com a susceptibilidade paramagnética da amostra mas, para isto precisa-se conhecer alguns parâmetros experimentais difíceis de se obter. Por conseguinte, o método mais comum é comparar o espectro de EPR da amostra com o espectro de uma amostra padrão, para a qual a concentração absoluta de spins é conhecida. No entanto, como a estrutura hiperfina do espectro de EPR não muda com a dose de radiação, a amplitude pico a pico da primeira derivada do espectro (ver figura 3.5) pode ser tomada como uma medida relativa da concentração de spins ou radicais livres presentes na amostra (Regulla e Deffner, 1982).

Este capítulo foi baseado nos seguintes autores: McMillan (1975); Swartz, Bolton e Borg (1972); Poole (1983); Ikeya (1993); Slichter (1996);



## Capítulo 5. Materiais e Métodos.

### 5.1 Preparação dos dosímetros.

Prepararam-se aproximadamente 200 pastilhas de DL-alanina e 100 pastilhas de L-alanina ambas com parafina pura. Tanto a DL-alanina (N<sup>o</sup> A-7502, peso molecular: 89,1) como a L-alanina (N<sup>o</sup> A-7627, peso molecular: 89,09), foram adquiridas da Sigma Chemical Company, e estão disponíveis comercialmente em forma de pó. O procedimento para a confecção das pastilhas de alanina/parafina foi tomado do trabalho de Alexandre (1991 e 1992). Para poder fazer a mistura uniforme de alanina + parafina, a parafina foi raspada e passada por uma peneira de mesh 32 obtendo um pó fino. As pastilhas em forma cilíndrica compacta, foram produzidas introduzindo a mistura em pó dentro de uma matriz cilíndrica de aço inox. Esta matriz (ver figura 5.1) consiste de um tarugo de 3,5 cm de diâmetro por 5,5 cm de altura, com um orifício central de 0,47 cm de diâmetro. Na parte inferior da matriz coloca-se um pequeno cilindro, também de aço inox, de 1 cm de altura, cuja finalidade é reter o pó e suportar a pressão do punção, o qual é inserido na parte superior da matriz. O punção tem uma escala milimétrica gravada que permite controlar o comprimento das pastilhas quando a mistura em pó é comprimida manualmente com ajuda de uma prensa hidráulica Shulz PHS 15t (ver figura 5.2).

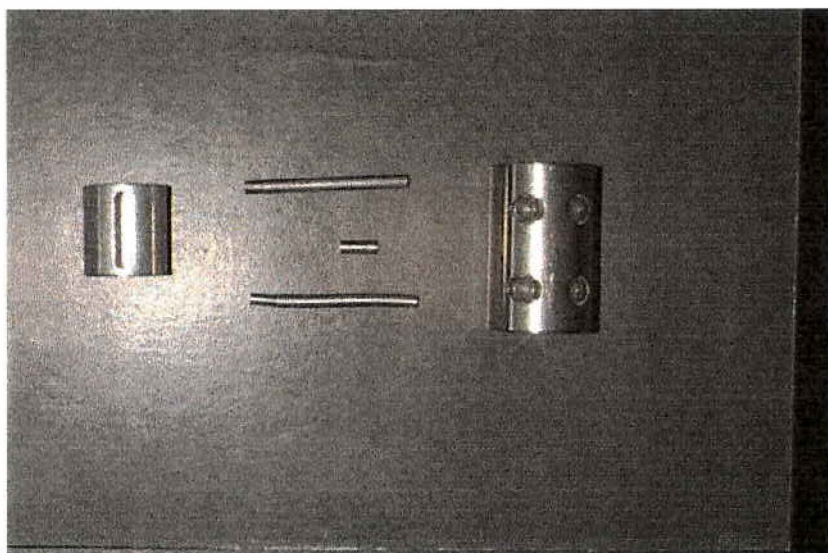


Figura 5.1 Matriz de aço inox.



Figura 5.2 Prensa hidráulica

A altura nominal das pastilhas de alanina/parafina (ver figura 5.3) foi de 1,2 cm com um diâmetro de 0,47 cm resultando em um volume nominal de  $0,21 \text{ cm}^3$  e uma densidade nominal de  $1,16 \text{ g/cm}^3$ , a qual é próxima a densidade do tecido mole. A massa nominal de cada pastilha foi de 241 mg, com um 80% em peso de alanina e 20% em peso de parafina. A pesagem foi feita com uma balança analítica Metter P 160 N ( $P_{\text{máx}} = 160 \text{ g}$ , menor divisão: 1 mg). Para facilitar o manuseio das pastilhas e evitar a perda gradativa de massa, foi aplicado uma fina camada de verniz. Antes de colocar o verniz, cada pastilha foi codificada com lápis. Logo, para evitar que as pastilhas ganhassem umidade, colocaram-se permanentemente dentro de um dessecador com sílica gel ativada.

## 5.2 Irradiação dos dosímetros.

Tanto os dosímetros de DL-alanina/parafina como L-alanina/parafina foram irradiados utilizando-se um dispositivo feito de acrílico de forma quadrada (ver figura 5.3), cujas dimensões (12.5 cm x 12.5 cm) permitiu a irradiação de um o mais dosímetros ao mesmo tempo, e com uma parede de espessura de 0.5 cm suficiente para alcançar o equilíbrio eletrônico.

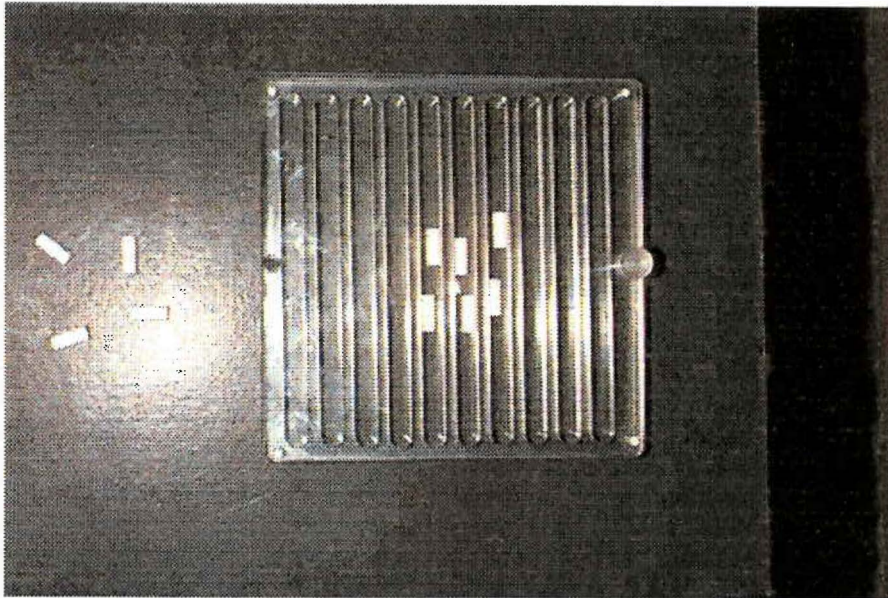


Figura 5.3 Algumas pastilhas de alanina/parafina e o dispositivo de acrílico utilizado na irradiação com <sup>60</sup>Co.

A fonte de radiação utilizada foi uma unidade de <sup>60</sup>Co para teleterapia Gammatron-S Siemens com uma taxa de dose a 80 cm da fonte de aproximadamente 46.57 cGy/min e calibrada segundo o protocolo de calibração da Agência Internacional de Energia Atômica (1987). O dispositivo de acrílico, contendo os dosímetros, foi colocado na cama do aparelho e apoiado sobre uma moldura de isopor (ver figura 5.4), e centrado num campo de 10x10 cm<sup>2</sup> na distância de 80 cm da fonte. Com esta configuração foram irradiados vários dosímetros de DL-alanina e L-alanina em duas faixas de doses:

- altas doses: 1, 5, 10, e 20 Gy;
- baixas doses: 0.05, 0.1, 0.5, e 1 Gy.

Isto permitiu analisar a linearidade da curva dose-resposta ou curva dose-efeito, sensibilidade e o limite inferior de detecção (LID) de ambos tipos de dosímetros. A temperatura média de irradiação foi de 23°C. A fonte de <sup>60</sup>Co está localizada na Seção de Radioterapia do Hospital das Clínicas da Faculdade de Medicina de Ribeirão Preto da Universidade de São Paulo.

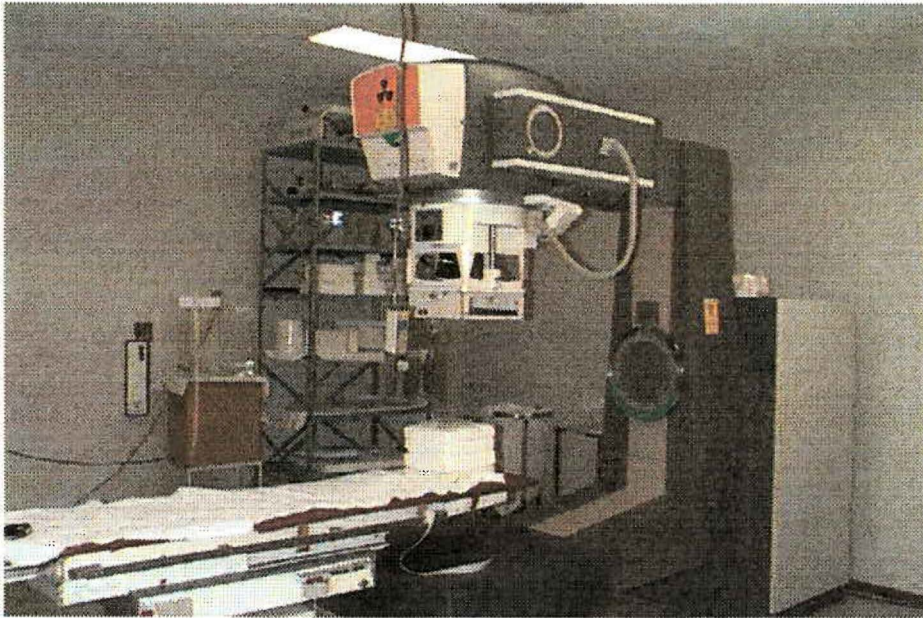


Figura 5.4 Irradiação dos dosímetros na fonte de  $^{60}\text{C}$

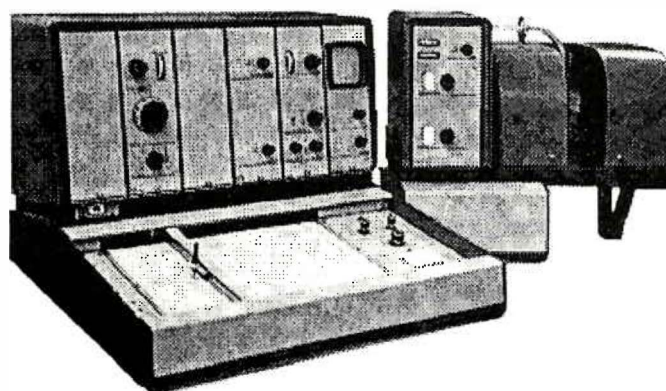
### 5.3 Parâmetros de operação do espectrometro para a aquisição do espectro de EPR.

Os parâmetros de operação do espectrômetro foram escolhidos levando-se em conta a otimização do registro dos detalhes do espectro de EPR. Assim, os espectros dos dosímetros irradiados e não irradiados foram medidos num espectrômetro de ressonância paramagnética eletrônica VARIAN E-4 (ver figura 5.5) funcionando na Banda-X ( $\sim 9.5$  GHz) e equipado com uma cavidade ressonante retangular, modelo E-231 operando no modo  $\text{TE}_{102}$ .

Os parâmetros de operação do espectrômetro foram os seguintes:

- campo magnético central: 325 mT,
- campo de varredura: 20 mT e 4 mT,
- tempo de varredura: 2 min,
- número de varreduras: 10,

- potência de microondas: 50 mW,
- amplitude de modulação: 1 mT (10 G),
- frequência de modulação: 100 kHz,
- frequência de microondas:  $\sim 9.09$  GHz,
- sensibilidade do Lock-In: 500  $\mu$ V,
- constante de tempo: 500 ms,
- detecção: I harmônico, 100 kHz, fase +8;  
II harmônico, 200 kHz, fase +70.



**ESPECTROMETRO DE EPR  
VARIAN E-4**

Figura 5.5 Vista de um espectrômetro de EPR mostrando na parte esquerda o painel de controle e na parte direita, o controle da fonte de microondas, as duas bobinas para o campo magnético e a cavidade ressonante no meio.

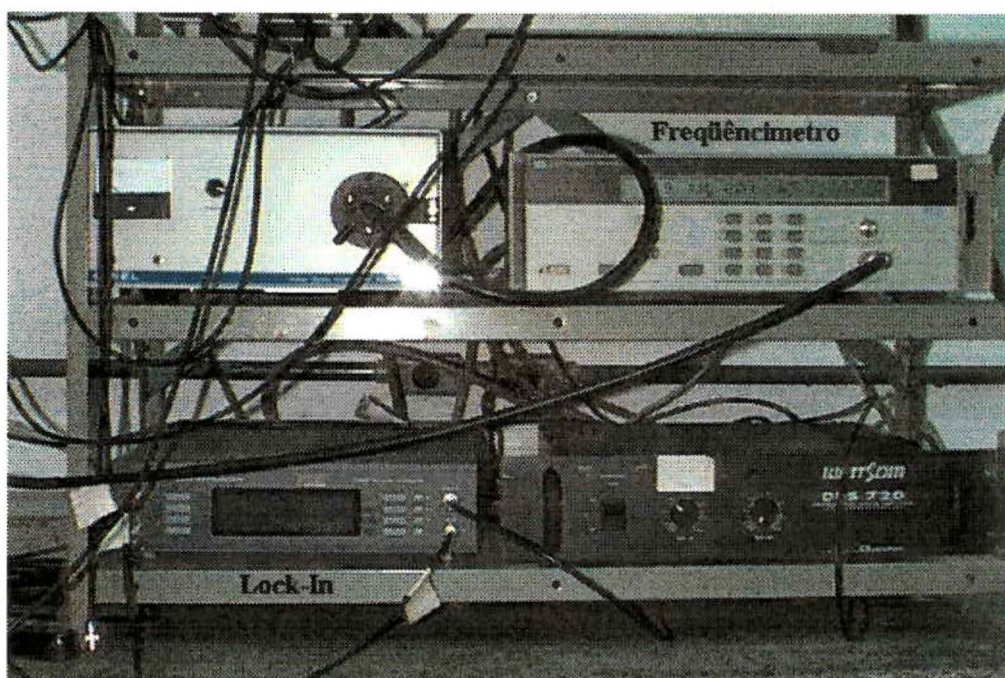


Figura 5.6 Mostram-se o amplificador Lock-In e o frequêncímetro.

A sensibilidade do espectrômetro foi melhorada com a adaptação de um amplificador Lock-In EG&G DSP modelo 7260 (figura 5.6). A frequência de microondas mediu-se com um contador digital HP modelo 5350B (figura 5.6). Estes instrumentos foram controlados por meio de uma placa GIPB e a aquisição dos dados foi feita com a ajuda de um microcomputador PC-Pentium 100. A análise dos espectros foi realizada com a ajuda do programa Microcal Origin 5.0.

#### **Potência de microondas.**

Para selecionar a potência de microondas utilizou-se um dosímetro irradiado com 10 Gy e um campo de varredura de 20 mT. Desta forma, obtiveram-se espectros completos (as cinco linhas) para diferentes valores da potência (5, 20, 50, 100, e 200 mW). A potência de trabalho escolhida foi aquela que proporciona a maior amplitude da sinal sem atingir a condição de saturação.

### **Amplitude de modulação do campo magnético.**

A amplitude de modulação variou de 0.05 – 1.6 mT (0.5 – 16 G) para estudar a variação da amplitude e da largura da linha central do espectro. Para a aquisição dos espectros de EPR tem que se escolher um valor de amplitude de modulação menor que a largura da linha central para evitar uma sobremodulação do espectro e garantir que a forma da curva do espectro seja constante.

### **Posicionamento da amostra e Reproducibilidade do sinal de EPR.**

O posicionamento da amostra dentro da cavidade ressonante é crítico no registro de espectros de EPR, levando a variações se não se tem cuidado ao colocar a amostra. Para reproduzir o posicionamento da amostra, o dosímetro foi colocado dentro da cavidade com a ajuda de um tubo de quartzo. O uso deste tubo de quartzo permitiu realizar um teste da reproducibilidade do sinal de EPR com uma pastilha irradiada a 10 Gy. Este teste consistiu em retirar o tubo com a pastilha da cavidade ressonante e colocá-la de volta cuidadosamente tentando reproduzir a mesma posição. Isto foi realizado pelo menos dez vezes e registraram-se os espectros.

## **5.4 Espectro de EPR da alanina . Detecção do Primeiro e Segundo Harmônico.**

Como foi mencionado na Secção 3.7 do Capítulo 3, para propósitos de dosimetria, usualmente é detectado o espectro da primeira derivada (primeiro harmônico) da alanina irradiada e a amplitude pico a pico (h) da linha central deste espectro correlaciona-se diretamente com a dose de radiação. O primeiro harmônico do espectro foi detectado com um campo de varredura de 20 mT, frequência de detecção de 100 kHz e fase de +8. A detecção do segundo harmônico do espectro foi com uma frequência de detecção de 200 kHz e fase de +70. Para registrar o espectro completo uso-se campo de varredura de 20 mT, e para registrar só a linha central do espectro, uso-se um campo de varredura de 4 mT. Todos os espectros foram registrados com uma amplitude de modulação de 1 mT.

### 5.5 Aplicação: Determinação de Curvas de Isodoses em Radioterapia.

A última etapa deste trabalho consistiu em determinar experimentalmente as curvas de isodoses em tratamentos simulados de radioterapia, especificamente, teleterapia. Para isso, se utilizou o fantoma antropomórfico Rando Man (ver figura 5.7). Deste fantoma foi retirado a fatia 25 (ver figura 5.8), a qual se localiza aproximadamente na região do abdômen. Esta fatia tem uma espessura de 2,5 cm aproximadamente, e 50 furos, cada furo com um diâmetro aproximado de 5 mm. Como as dimensões das pastilhas são de 4,7 mm de diâmetro e 1,2 cm de comprimento, isto permitiu a colocação de duas pastilhas por furo de tal forma que precisaram-se de 100 pastilhas para preencher totalmente a fatia. A seguir, a fatia foi colocada novamente no fantoma.

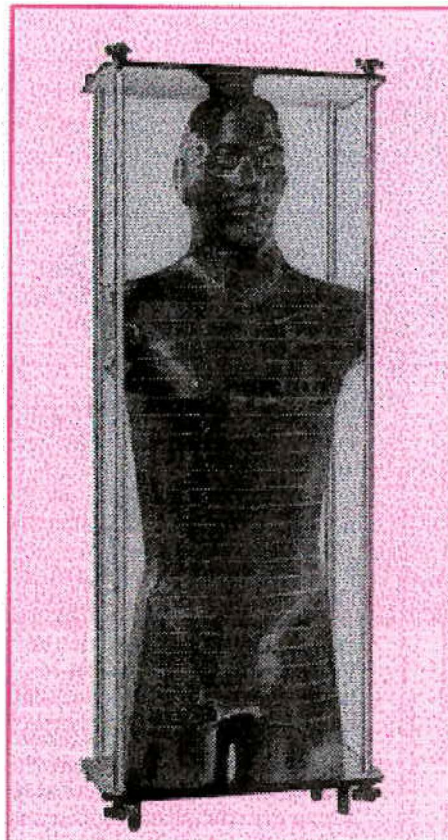


Figura 5.7 Fantoma antropomórfico Rando Man.



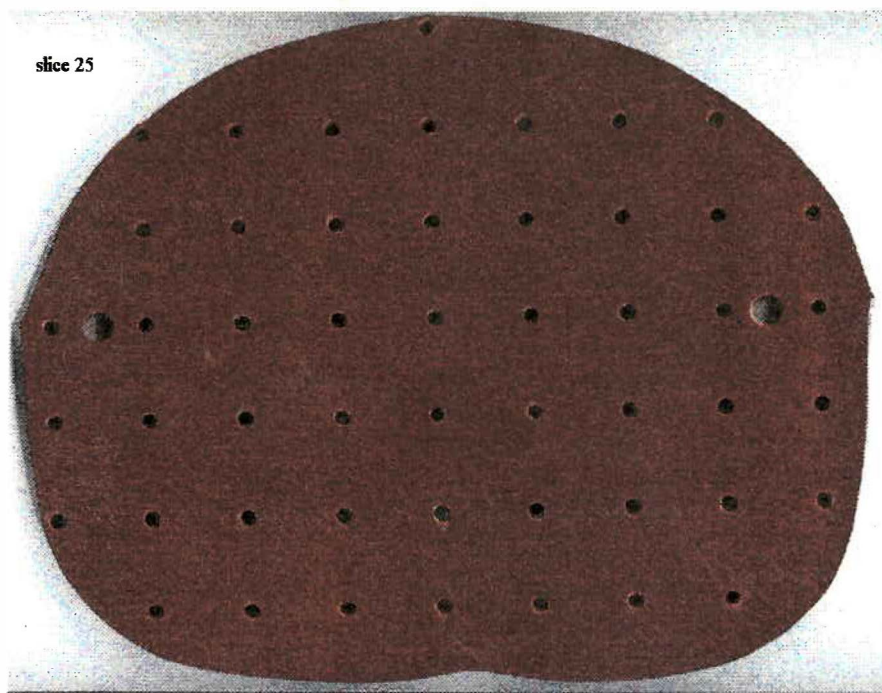


Figura 5.8 Fatia 25 do fantoma Rando Man localizada na região do abdômen.

O fantoma foi deitado na cama do aparelho de teleterapia simulando um paciente e irradiado com um campo de  $10 \times 10 \text{ cm}^2$ , distância fonte-pele de 80 cm, e em duas projeções opostas: AP e PA, com uma fonte de  $^{60}\text{Co}$  Gammatron-S Siemens. A taxa de dose foi de 0,502 Gy/min e o tempo de irradiação de 20 min para cada projeção, resultando numa dose total de aproximadamente 10 Gy no centro da fatia.

## Capítulo 6. Resultados e Discussão.

### 6.1 Preparação dos dosímetros.

No processo de fabricação das pastilhas existe, intrinsecamente, uma perda de massa com respeito a massa nominal (241 mg), e uma variação no comprimento das pastilhas com respeito ao comprimento nominal (1,20 cm). Assim, no caso das pastilhas de DL-alanina, a massa média foi de 240,4 mg com um desvio padrão de 0,9 mg ( $< 1\%$ ) e o comprimento médio foi de 1,21 cm com um desvio padrão de 0,01 cm ( $< 1\%$ ). No caso das pastilhas de L-alanina, a massa média foi de 240,1 mg com um desvio padrão de 1,1 mg ( $< 1\%$ ), e um comprimento médio de 1,22 cm com um desvio padrão de 0,01 cm ( $< 1\%$ ). Deve-se que assinalar o fato de que as pastilhas de L-alanina foram mais difíceis de fabricar porque a L-alanina vem numa forma mais cristalina do que a DL-alanina.

### 6.2 Aquisição dos espectros de EPR.

#### Potência de microondas.

A figura 6.1 mostra vários espectros de EPR de uma pastilha de alanina irradiada a 10 Gy com Co-60, quando a potência de microondas foi variada de 5 a 200 mW. A amplitude da linha central foi medida para cada espectro e sua variação com respeito a raiz quadrada da potência mostra-se na figura 6.2. Desta figura nota-se que a variação da amplitude da linha central do espectro de EPR da alanina irradiada aumenta com a potência e que a saturação da sinal começa um pouco mais acima dos 100 mW. Portanto, a potência de trabalho escolhida foi de 50 mW. Os espectros foram adquiridos com uma amplitude de modulação de 2,5 G e um tempo de varredura de 4 min, mantendo todos os outros parâmetros iguais.

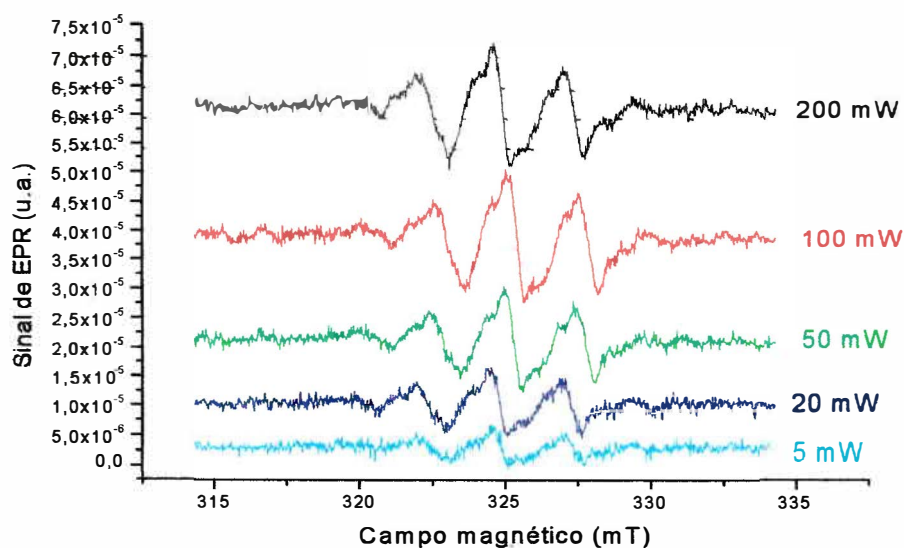


Figura 6.1 Sinais de EPR da alanina irradiada (10 Gy) para vários valores da potência de microondas. Espectros adquiridos com 0,25 mT de modulação.

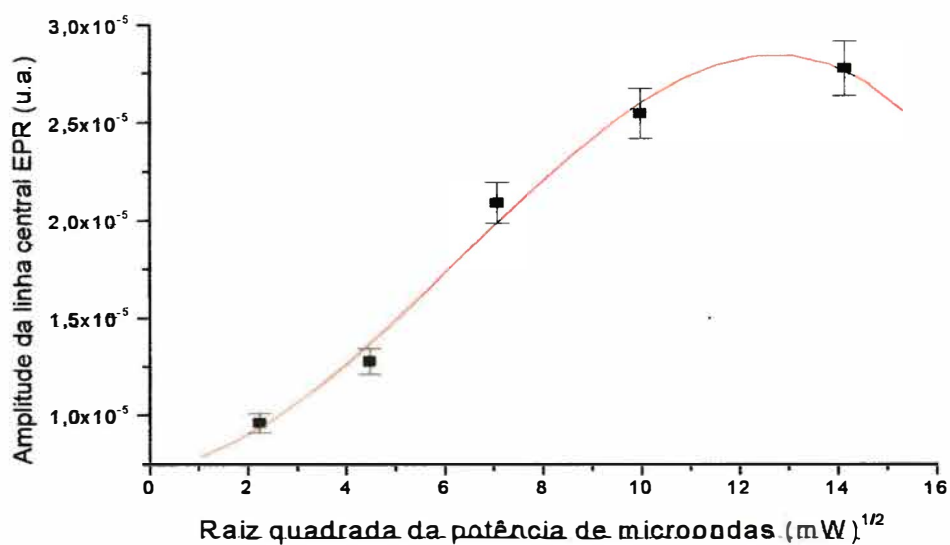


Figura 6.2 Variação da amplitude da linha central do espectro EPR de uma pastilha de alanina irradiada (10 Gy) com a raiz quadrada da potência de microondas.

### Reproducibilidade do sinal de EPR.

Na figura 6.3 mostram-se dez diferentes espectros da alanina irradiada (10 Gy) quando a amostra foi retirada e recolocada na cavidade ressonante dez vezes. Nota-se da figura que não existe muita variação entre os espectros. Medindo a amplitude da linha central para os diferentes espectros obteve-se um coeficiente de variabilidade (CV) de 4,7%. Todos os espectros foram adquiridos com uma potência de 50 mW, uma modulação de 0,25 mT, campo de varredura de 20 mT e tempo de varredura de 2 min.

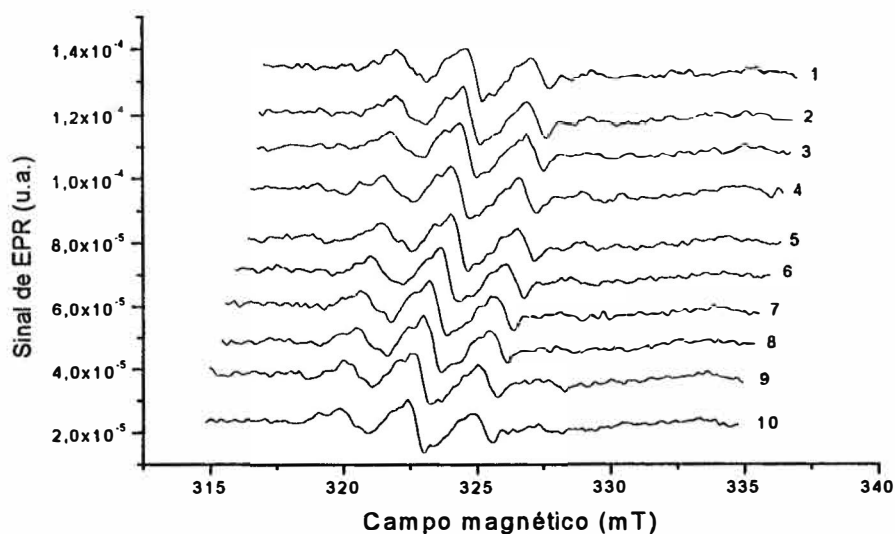


Figura 6.3 Os dez diferentes espectros para a prova de reproducibilidade da sinal de EPR.

### Amplitude de modulação do campo magnético.

Na figura 6.4 mostram-se os diferentes espectros para as diferentes amplitudes de modulação do campo magnético. Todos os espectros foram adquiridos com uma potência de 50mW, campo e tempo de varredura de 20 mT e 2 min respectivamente. Observa-se que a amplitude da linha central do espectro aumenta com a modulação, o que também é mostrado na figura 6.5. Nesta figura nota-se que a amplitude da linha central atinge um máximo aos 1,2 mT de modulação e depois diminui para valores maiores da modulação. Também observa-se que para valores pequenos da modulação, a amplitude da linha central do espectro é proporcional a modulação. Na figura 6.6 observa-se que para valores pequenos da modulação (entre 0,05 – 0,4 mT), a largura da linha central do espectro permanece quase constante e para uma modulação de 0,25 mT a largura da linha é de aproximadamente 0,6 mT. Para valores de

modulação maiores de 0,6 mT, a largura da linha começa a aumentar até aproximadamente 1,6 mT. No começo deste trabalho (para os dosímetros irradiados a altas doses), todos os espectros foram adquiridos com uma modulação de 0,25 mT porque este valor é menor que a largura da linha central e porque, segundo a figura 6.6, este valor de 0,25 mT fica numa região onde a largura da linha é quase constante. No entanto posteriormente, como para propósitos de dosimetria de baixas doses, a sensibilidade é o fator mais importante, optou-se por usar uma modulação de 1,0 mT para a aquisição dos espectros. Para este último valor de modulação, a largura da linha é de aproximadamente 1,0 mT. Segundo a figura 6.5, para uma modulação de 1,0 mT, a amplitude da linha central atinge um valor próximo ao valor máximo (o qual se alcança a 1,2 mT). Na figura 6.7 mostram-se dois espectros de uma pastilha irradiada a 10 Gy e registrados com valores de modulação de (a) 0,25 mT, e (b) 1,0 mT. Nota-se que o espectro registrado com modulação de 10 G apresenta uma menor resolução espectral comparado com o espectro registrado a uma modulação de 0,25 mT. No entanto, o espectro registrado com 1,0 mT de modulação apresenta uma maior relação sinal/ruído permitindo determinar melhor a amplitude pico a pico da linha central do espectro. Além do que foi mencionado anteriormente, o valor de 1,0 mT de modulação é recomendado por a American Society for Testing and Materials (ASTM) em seu protocolo de dosimetria por Alanina/EPR (Bergstrand et. al., 1998).

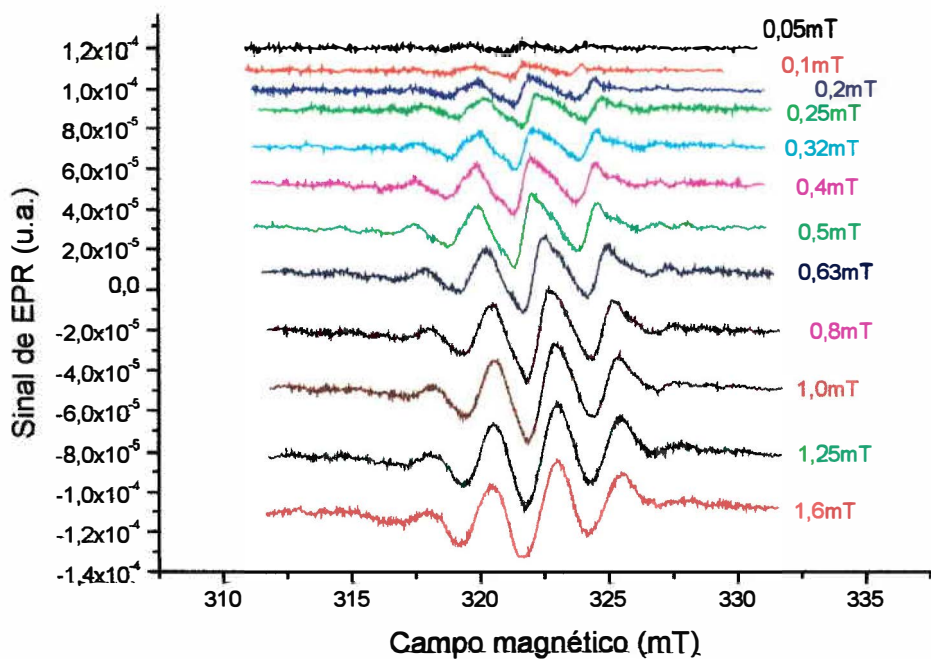


Figura 6.4 Espectros de EPR de uma pastilha irradiada (10 Gy) para diferentes amplitudes de modulação do campo magnético. Potência de 50 mW.

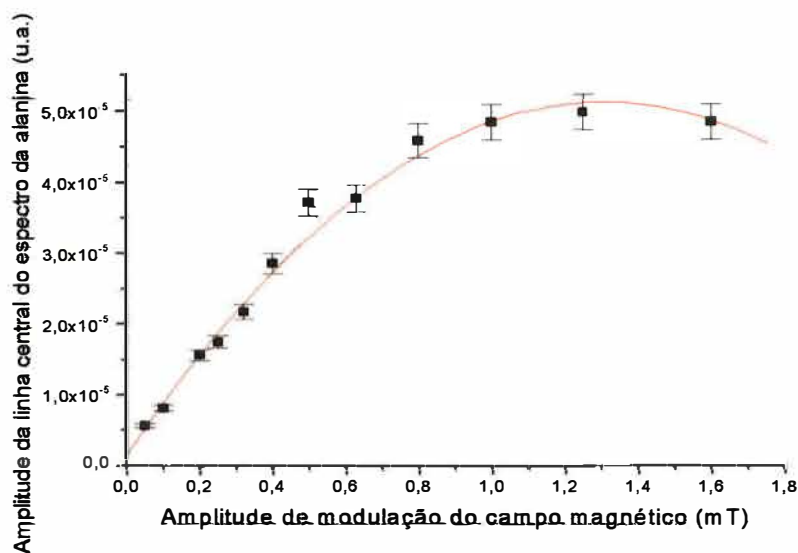


Figura 6.5 Varição da amplitude da linha central do espectro EPR da alanina com a amplitude de modulação do campo magnético (1 mT = 10 G).

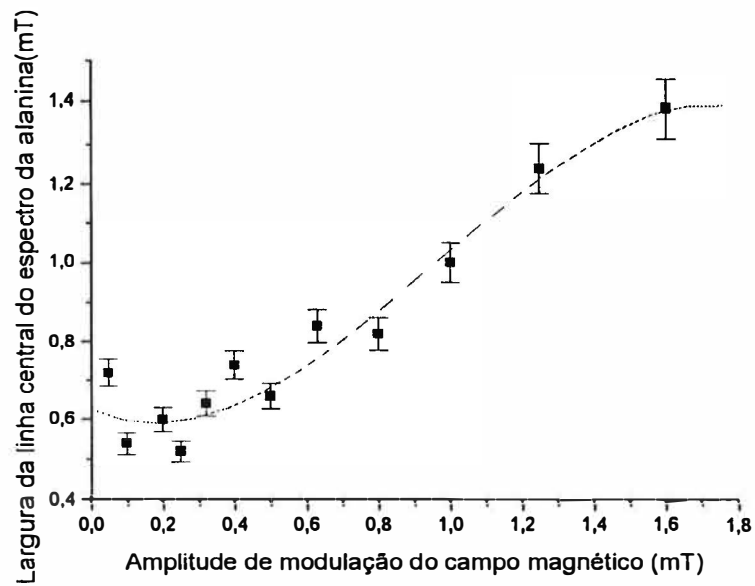
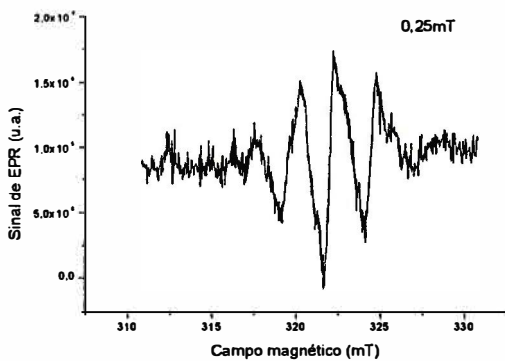
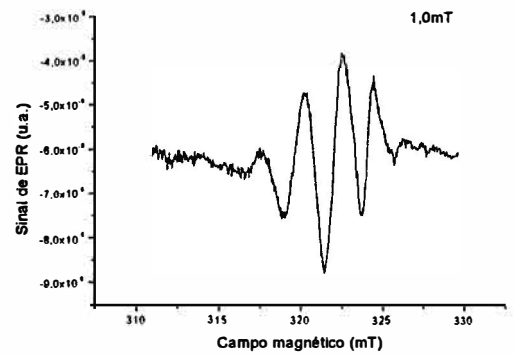


Figura 6.6 Variação da largura da linha central do espectro EPR da alanina com a amplitude de modulação do campo magnético (1 mT = 10 G).



(a)



(b)

Figura 6.7 Espectros de EPR para uma pastilha irradiada (10 Gy) para uma modulação de (a) 0,25 mT e para (b) 1,0 mT.

### 6.3 Espectro de EPR da alanina. Detecção do primeiro e segundo harmônico.

#### Espectros para altas dose.

Nas figura 6.8(a) e 6.9(a) mostram-se os espectros completos do primeiro harmônico para uma pastilha de DL-alanina e L-alanina irradiada a 20 Gy. Ambos os espectros são idênticos em sua forma mostrando suas cinco linhas características que representam a estrutura hiperfina devida a interação equivalente dos momentos magnéticos de quatro prótons com o momento magnético do elétron desemparelhado no radical livre predominante à temperatura ambiente. Para obter o espectro completo do primeiro harmônico uso-se um campo de varredura de 20 mT.

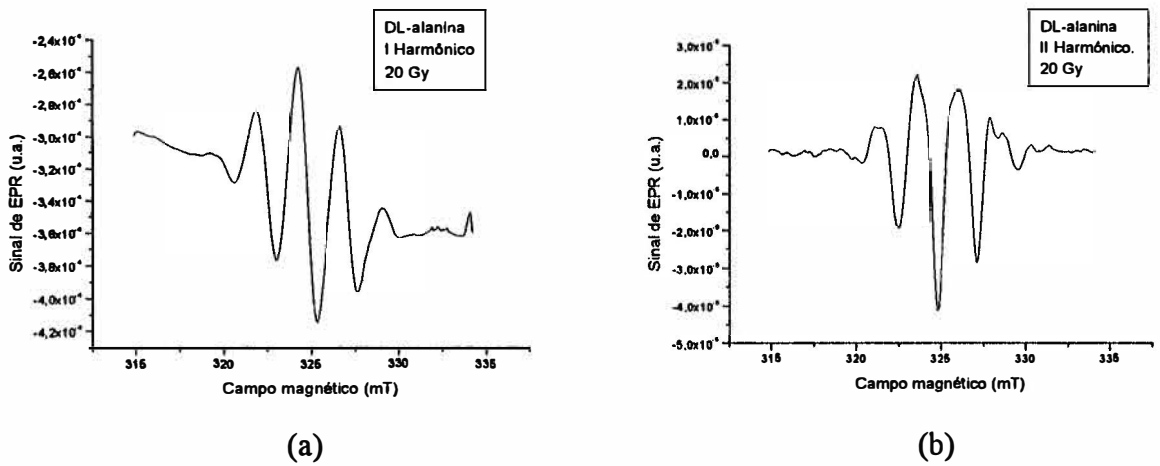


Figura 6.8 Espectro de EPR da DL-alanina irradiada com 20 Gy.

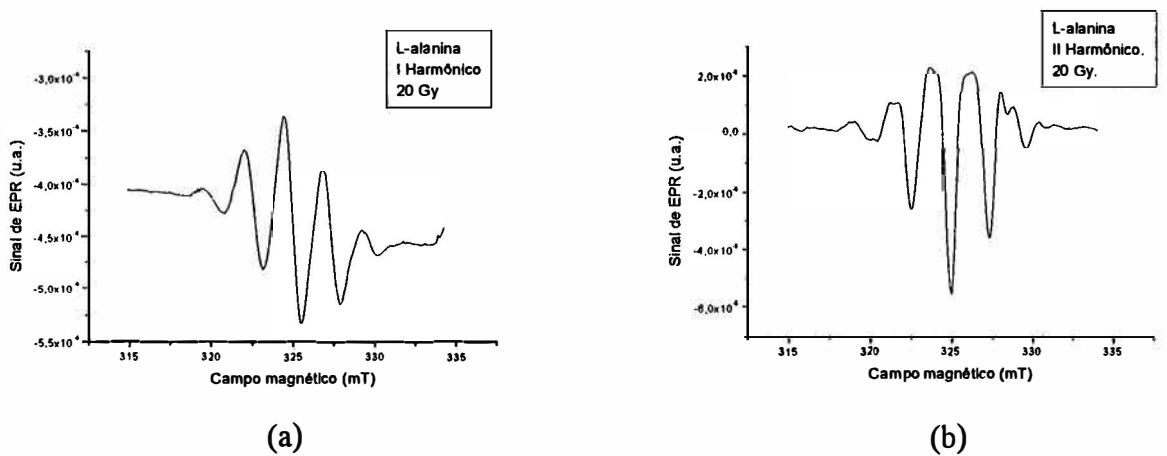


Figura 6.9 Espectro de EPR da L-alanina irradiada com 20 Gy.



Igualmente, nas figuras 6.8(b) e 6.9(b) mostram-se os espectros completos do segundo harmônico para DL e L alanina. Igual ao caso do primeiro harmônico ambos espectros são semelhantes.

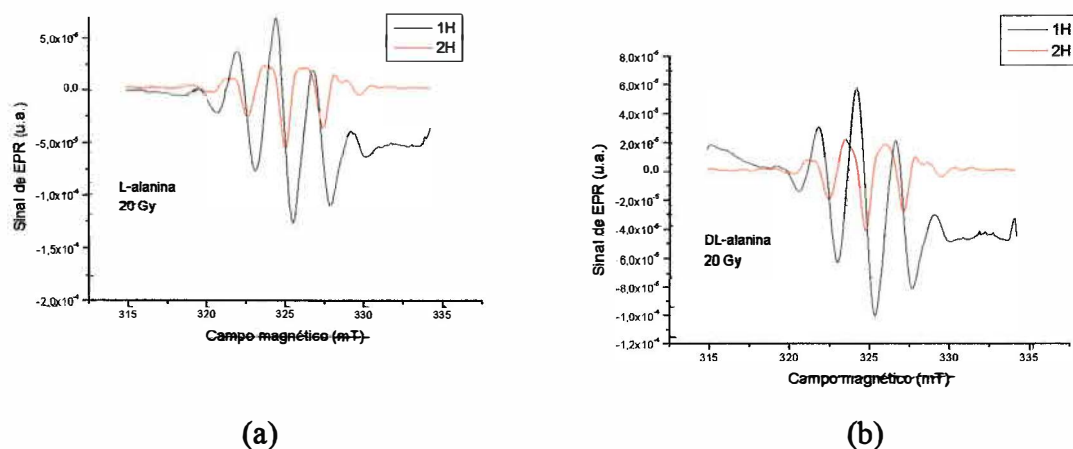


Figura 6.10 Amplitude relativa do primeiro e segundo harmônico para a L-alanina e a DL-alanina.

Na figura 6.10 mostram-se simultaneamente os espectros do primeiro e segundo harmônico para a L-alanina e a DL-alanina. Como ambos os espectros foram registrados com uma amplitude de modulação de 1,0 mT, a amplitude do segundo harmônico foi ao redor de 40% com respeito ao primeiro harmônico, tanto no caso da L-alanina como no caso da DL-alanina (para uma dose de 20 Gy).

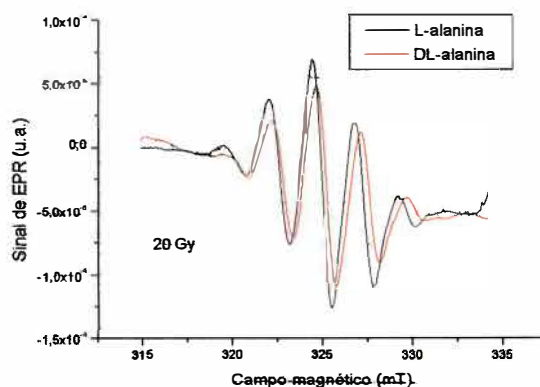


Figura 6.11 Espectro do primeiro harmônico para a L-alanina e a DL-alanina irradiada a 20 Gy.

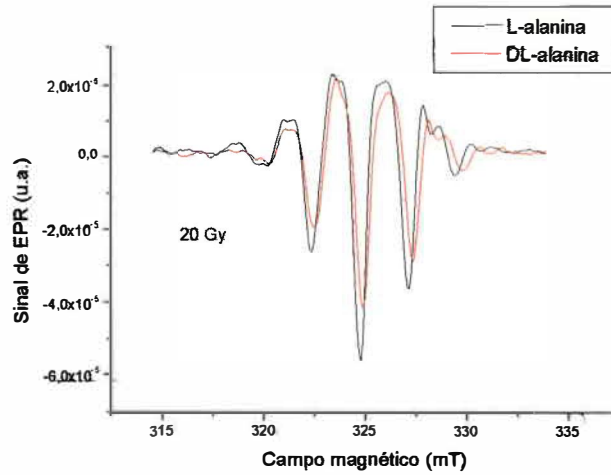


Figura 6.12 Espectro do segundo harmônio para a L-alanina e a DL-alanina irradiada com 20 Gy.

Na figura 6.11 podem-se apreciar os espectros do primeiro harmônio para L-alanina e DL-alanina onde a L-alanina apresenta uma amplitude maior que a DL-alanina em 20% aproximadamente (para uma dose de 20 Gy). Por outro lado, na figura 6.12 apreciam-se os espectros do segundo harmônio tendo o espectro da L-alanina uma amplitude maior que o da DL-alanina também em 20% aproximadamente. Então pode-se dizer que, para uma mesma dose, a L-alanina apresenta uma maior sensibilidade que a DL-alanina.

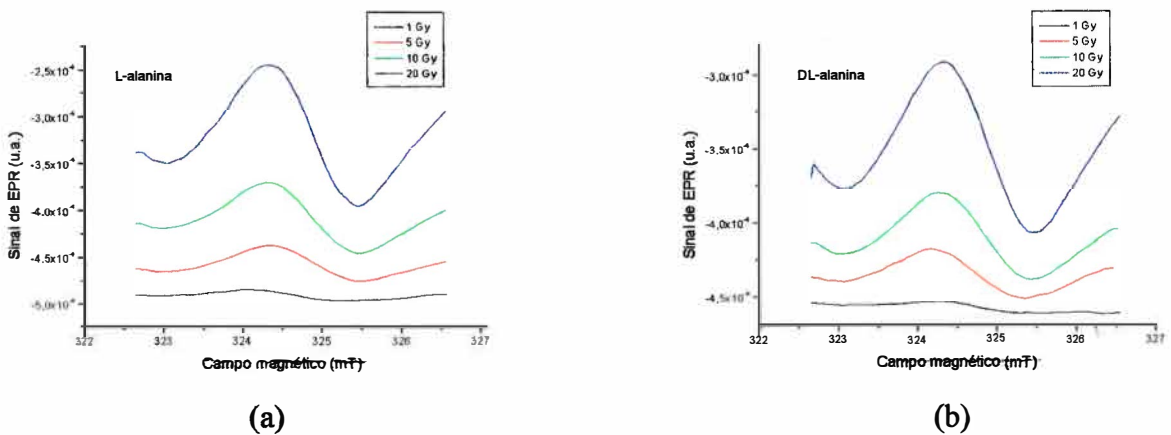


Figura 6.13 Espectros do primeiro harmônio para diferentes doses de radiação para (a) L-alanina, e (b) DL-alanina.

Na figura 6.13 mostram-se os espectros do primeiro harmônico registrados com uma amplitude de modulação de 1,0 mT e um campo de varredura de 4,0 mT tal que só adquire-se a linha central do espectro, para diferentes doses de radiação tanto no caso da L-alanina como para a DL-alanina. Nos dois casos observa-se que a amplitude pico a pico da linha central

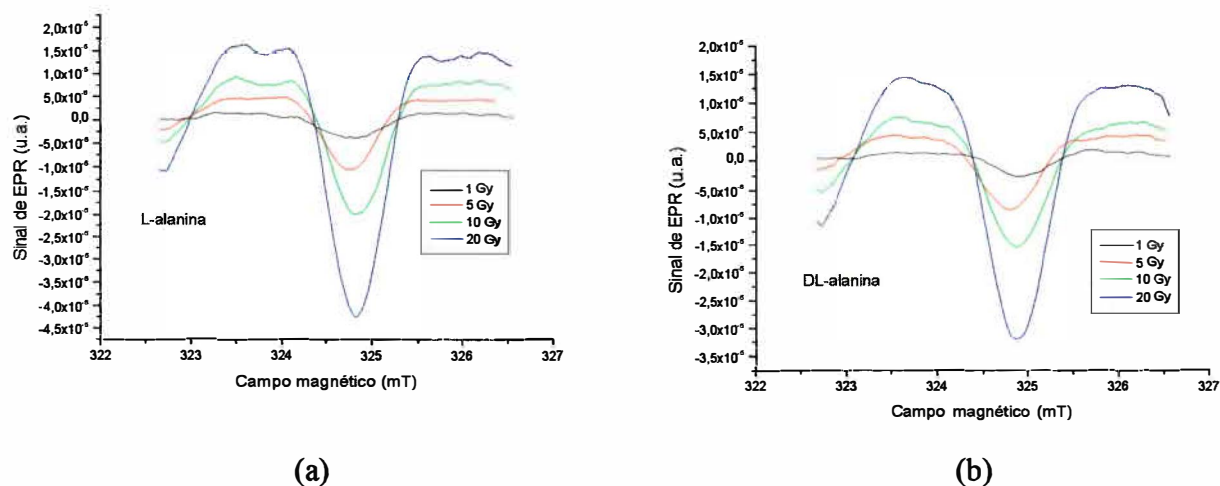


Figura 6.14 Espectros do segundo harmônico para diferentes dose de radiação para (a) L-alanina, e (b) DL-alanina.

aumenta com a dose de radiação. O mesmo acontece com a amplitude do segundo harmônico para diferentes doses: aumenta com a dose de radiação. Isto pode-se apreciar na figura 6.14 para o caso de (a) L-alanina, e (b) DL-alanina. Estes espectros também foram registrados com um campo de varredura de 4,0 mT.

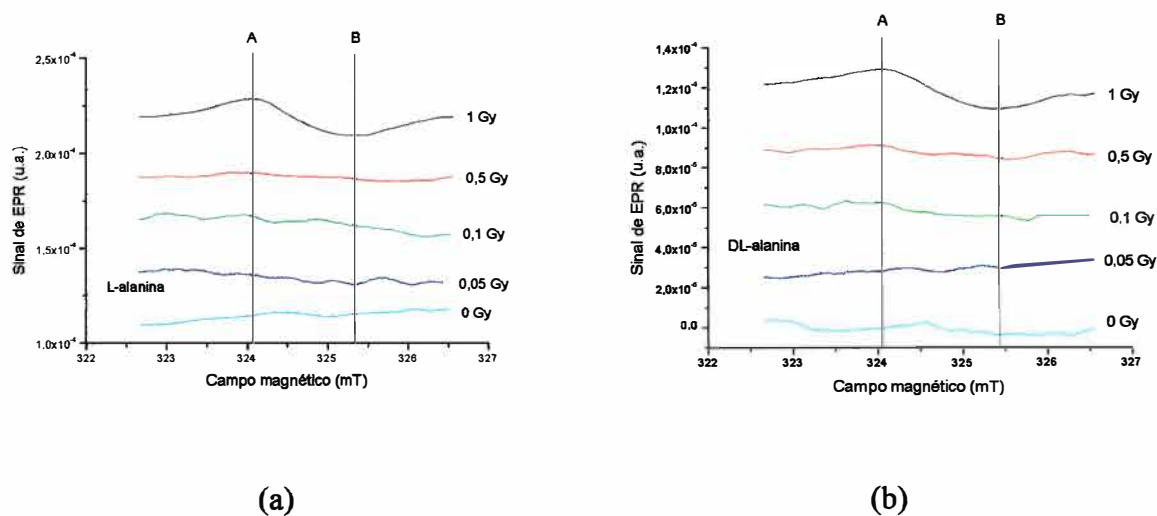
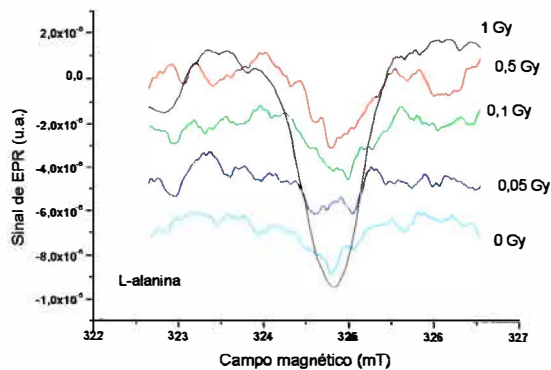
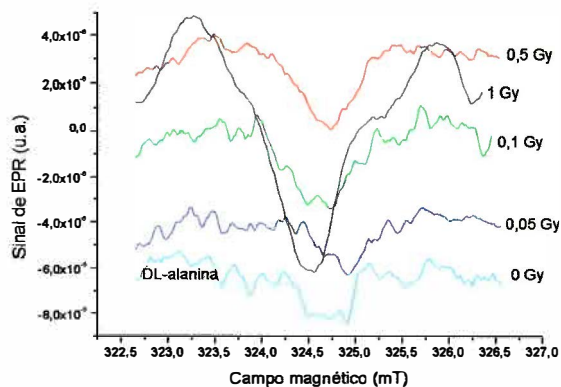


Figura 6.15 Espectros do primeiro harmônico para a faixa de baixas doses para o caso de (a) L-alanina, e (b) DL-alanina.



(a)



(b)

Figura 6.16 Espectros do segundo harmônico para a faixa de baixas doses para o caso de (a) L-alanina e, (b) DL-alanina.

### Espectros para baixas dose.

Na figura 6.15 se apresentam os espectros do primeiro harmônico para a L-alanina e para a DL-alanina. Nota-se das duas figuras que o espectro não é perceptível para doses menores que 1 Gy. Neste caso do primeiro harmônico, as amplitudes dos espectros para as doses de 0, 0,05, 0,1, e 0,5 Gy foram lidas com a ajuda do espectro de 1 Gy a partir das duas linhas verticais A e B, segundo indicado nas figuras.

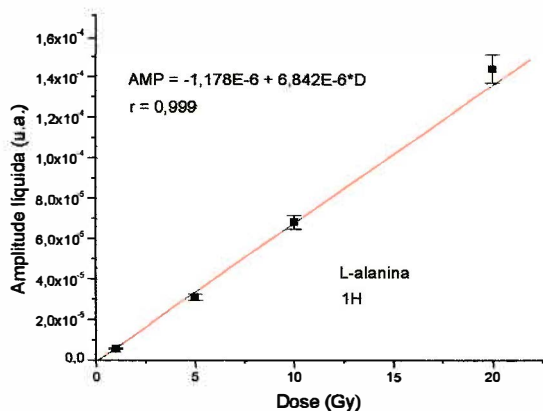
Na figura 6.16 se mostram os espectros do segundo harmônico para a L-alanina e para a DL-alanina. Das duas figuras nota-se que o espectro do segundo harmônico é claramente visível para qualquer dose. Chama a atenção que o espectro para uma dose de 1 Gy é muito pronunciado em comparação com os espectros das outras doses tanto para o caso da L-alanina como para a DL-alanina. Para os espectros das doses de 0, 0,05, 0,1, e 0,5 Gy nota-se que existe um ligeiro aumento em amplitude com a dose. O espectro para 0 Gy da L-alanina tem uma menor amplitude que o espectro para 0 Gy da DL-alanina.

## 6.4 Curva Dose-Efeito.

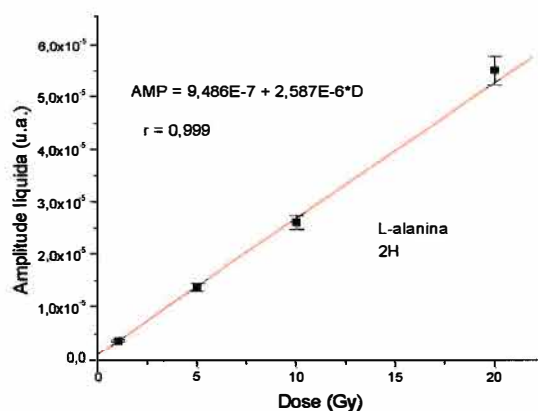
### No caso de altas doses.

Na figura 6.17(a) mostra-se a curva dose-efeito para a amplitude líquida do primeiro harmônico no caso da L-alanina. Esta curva mostra uma relação linear entre a amplitude líquida e a dose com um coeficiente de correlação  $r = 0,999$  na faixa de doses de 1-20 Gy, e uma sensibilidade de  $6,842E-6$  u.a./Gy. A figura 6.17(b) também mostra uma relação linear entre a amplitude líquida do segundo harmônico e a dose com um coeficiente de correlação  $r = 0,999$  para a mesma faixa de doses indicada, e uma sensibilidade de  $2,587E-6$

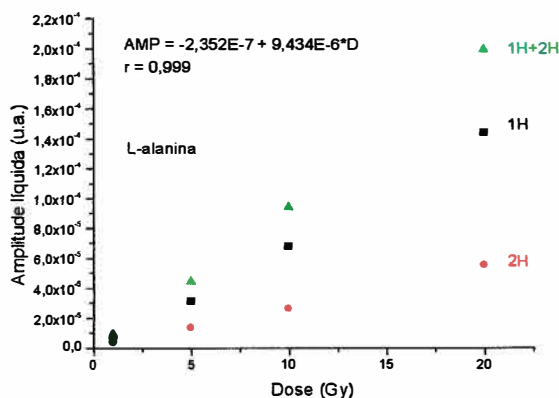
u.a./Gy. Nesta faixa de doses a sensibilidade do segundo harmônico representa cerca de 38% com respeito ao primeiro harmônico. Isto indica que ao utilizar uma modulação de 1,0 mT, a qual é comparável com a largura da linha central do espectro, o segundo harmônico não é desprezível e pode ser utilizado para aumentar a sensibilidade do sistema. Desta forma, ao somar aritmeticamente os dois harmônicos obtém-se a curva dose-efeito (1H + 2H) mostrada na figura 6.17(c).



(a)



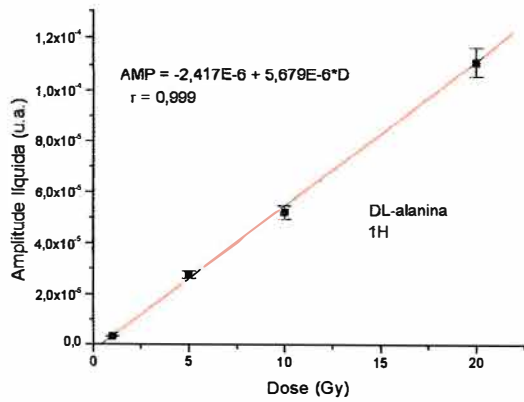
(b)



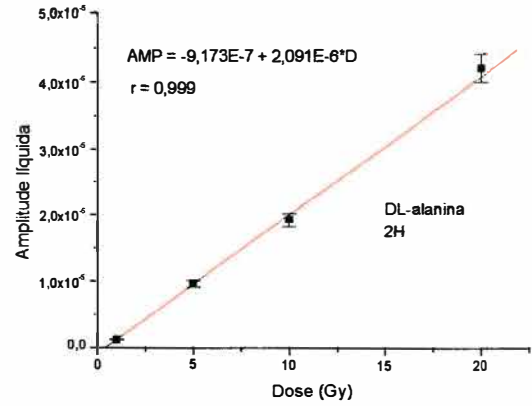
(c)

Figura 6.17 Curvas doses-efeito para o primeiro e segundo harmônicos no caso da L-alanina, na faixa de altas doses.

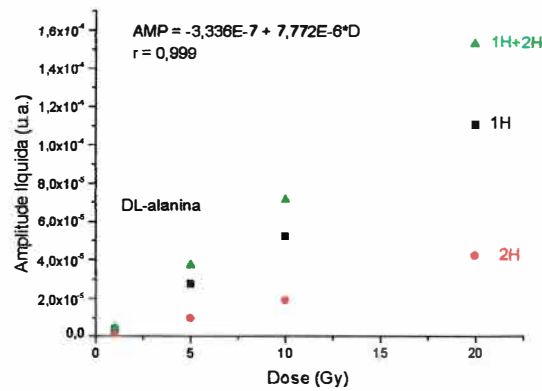
Esta mostra uma relação linear com um coeficiente de correlação  $r = 0,999$  e uma sensibilidade de  $9,434E-6$  u.a./Gy, a qual representa cerca de 38% a mais com respeito a sensibilidade do primeiro harmônico.



(a)



(b)



(c)

Figura 6.18 Curvas dose-efeito para o primeiro e segundo harmônicos no caso da DL-alanina, na faixa de altas doses.

A figura 6.18(a) mostra uma relação linear para a curva dose-efeito para o primeiro harmônico no caso da DL-alanina com um coeficiente de correlação  $r = 0,999$ , e uma sensibilidade de  $5,679E-6$  u.a./Gy. Para o caso do segundo harmônico, mostrado na figura 6.18(b), a relação linear também dá como resultado um coeficiente de correlação  $r = 0,999$  e, uma sensibilidade de  $2,091E-6$  u.a./Gy. A sensibilidade do segundo harmônico representa cerca de 37% com respeito ao primeiro harmônico. Para a soma dos dois harmônicos (1H + 2H) mostrada na figura 6.18(c), o coeficiente de correlação é  $r = 0,999$  e a sensibilidade é  $7,772E-6$  u.a./Gy, a qual representa cerca de 37% a mais em sensibilidade com respeito ao primeiro harmônico. Estas porcentagens são praticamente idênticas ao caso da L-alanina na faixa de doses estudada.

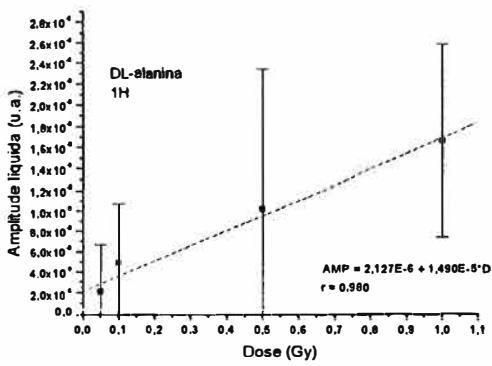
Por outro lado, se compararmos a sensibilidade do primeiro harmônico para o caso da L-alanina ( $6,842E-6$  u.a./Gy), com a sensibilidade do primeiro harmônico para o caso da DL-alanina ( $5,679E-6$  u.a./Gy), resulta que a sensibilidade da L-alanina é maior em 20% aproximadamente que a sensibilidade da DL-alanina na faixa de doses estudada. Para o caso do segundo harmônico, a sensibilidade da L-alanina representa cerca de 23% a mais com respeito a sensibilidade da DL-alanina.

#### **No caso de baixas doses.**

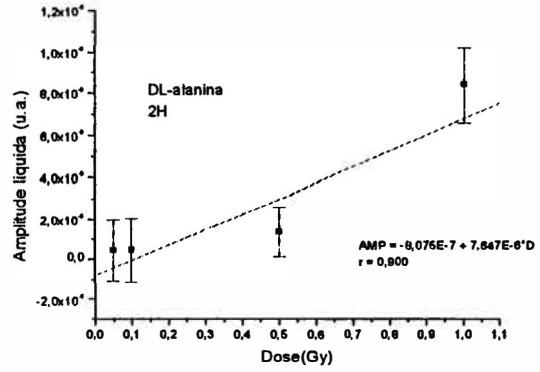
Na figura 6.19(a) mostra-se a curva dose-efeito para o primeiro harmônico no caso da DL-alanina. Esta resulta ser uma relação linear com um coeficiente de correlação  $r = 0,980$  e uma sensibilidade de  $1,490E-5$  u.a./Gy. Para os dados do segundo harmônico da figura 6.19(b), o coeficiente de correlação é  $r = 0,900$  e uma sensibilidade de  $7,647E-6$  u.a./Gy. Nota-se que para o caso do segundo harmônico existe uma correlação linear pobre, no entanto, a sensibilidade para o segundo harmônico representa ao redor de um 50% com respeito a sensibilidade do primeiro harmônico na faixa de doses estudada. Ao somar aritmeticamente os dois harmônicos, obtém-se a curva dose-efeito mostrada na figura 6.19(c), com um coeficiente de correlação  $r = 0,990$  e uma sensibilidade de  $2,293E-5$  u.a./Gy, a qual representa ao redor de um 50% a mais com respeito ao primeiro harmônico. O coeficiente de correlação melhora ao somar os dois harmônicos.

Na figura 6.20(a), a curva dose-efeito exibe um coeficiente de correlação  $r = 0,840$  e uma sensibilidade de  $1,537E-5$  u.a./Gy para o caso do primeiro harmônico da L-alanina. Para o segundo harmônico da L-alanina, a curva dose-efeito mostra-se na figura 6.20(b), com um coeficiente de correlação  $r = 0,950$  e uma sensibilidade de  $2,654E-6$  u.a./Gy. No caso da L-alanina, a sensibilidade do segundo harmônico representa apenas cerca de 17% com respeito a sensibilidade do primeiro harmônico. A soma aritmética dos dois harmônicos aprecia-se na figura 6.20(c), com um coeficiente de correlação  $r = 0,850$  e uma sensibilidade de  $1,756E-5$  u.a./Gy, a qual representa cerca de 14% a mais com respeito a sensibilidade do primeiro harmônico.

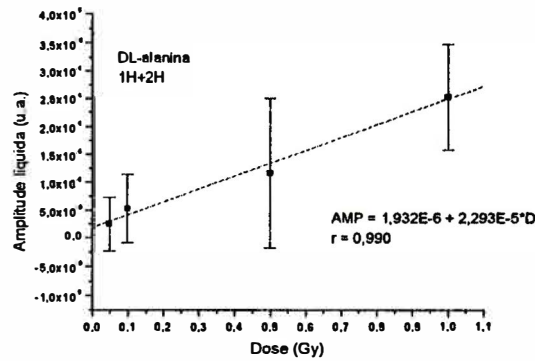
Na faixa de doses estudada, a sensibilidade para o primeiro harmônico da L-alanina é maior em apenas 3% quando comparada a sensibilidade do primeiro harmônico da DL-alanina. Em contraste, a sensibilidade para o segundo harmônico da L-alanina é menor que a sensibilidade do segundo harmônico da DL-alanina.



(a)



(b)



(c)

Figura 6.19 Curva dose-efeito para o primeiro e segundo harmônicos no caso da DL-alanina, na faixa de baixas doses.



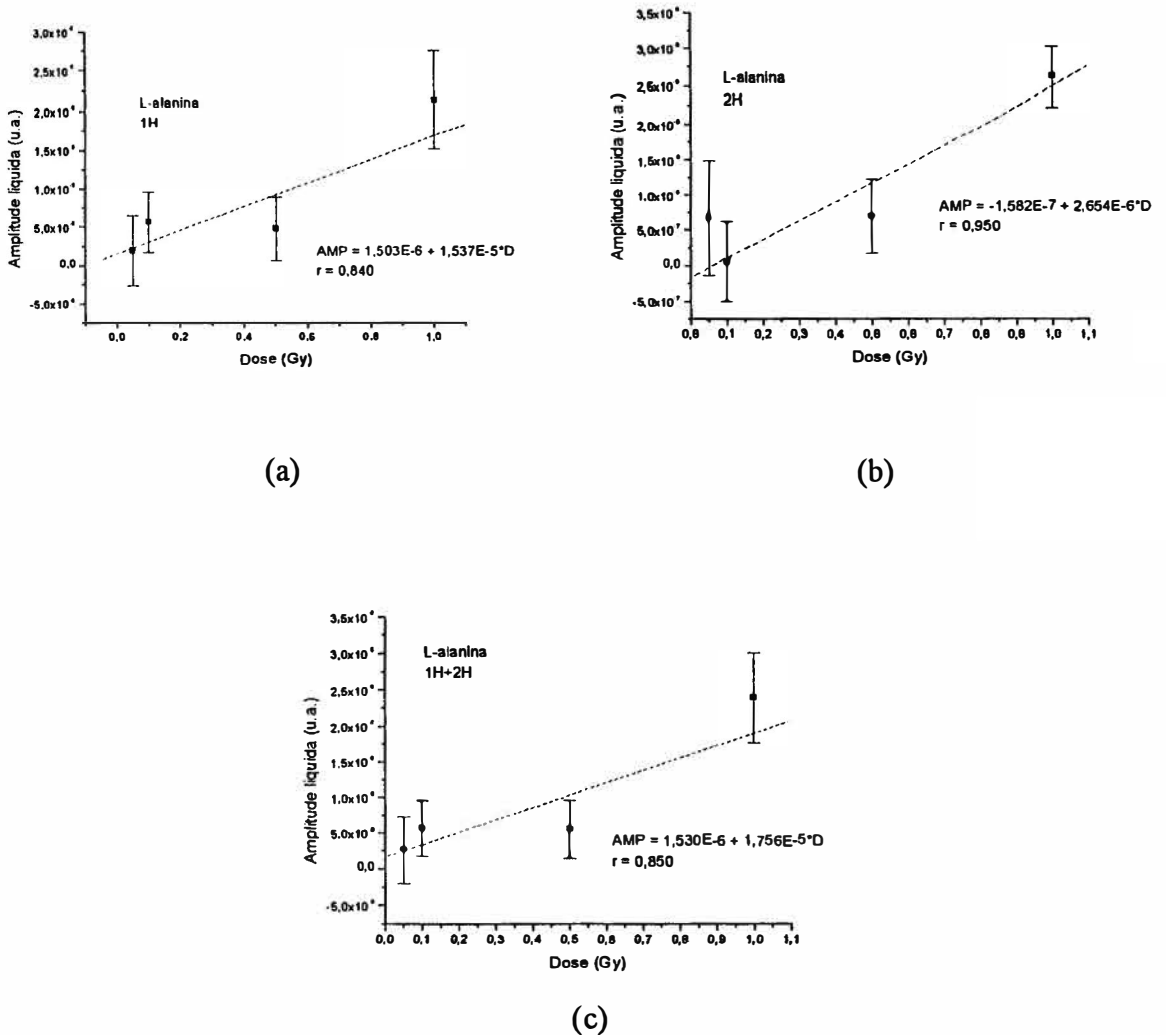


Figura 6.20 Curva dose-efeito para o primeiro e segundo harmônicos no caso da L-alanina, na faixa de baixas doses.

### Limite inferior de detecção.

Na figura 6.21 mostram-se os espectros para pastilhas não irradiadas (0 Gy) tanto para o caso da L-alanina e a DL-alanina para (a) primeiro harmônico e, (b) segundo harmônico. Da figura 6.21(a) nota-se apenas que a amplitude do sinal de fundo da DL-alanina é maior que a amplitude do sinal de fundo da L-alanina. Este fato pode-se apreciar melhor na figura 6.21(b) com o segundo harmônico. Segundo a definição dada na secção 3.2 do Capítulo 3, o limite inferior de detecção no caso da L-alanina resulta ser de 0,6 Gy aproximadamente, e para o caso da DL-alanina é cerca de 1 Gy.

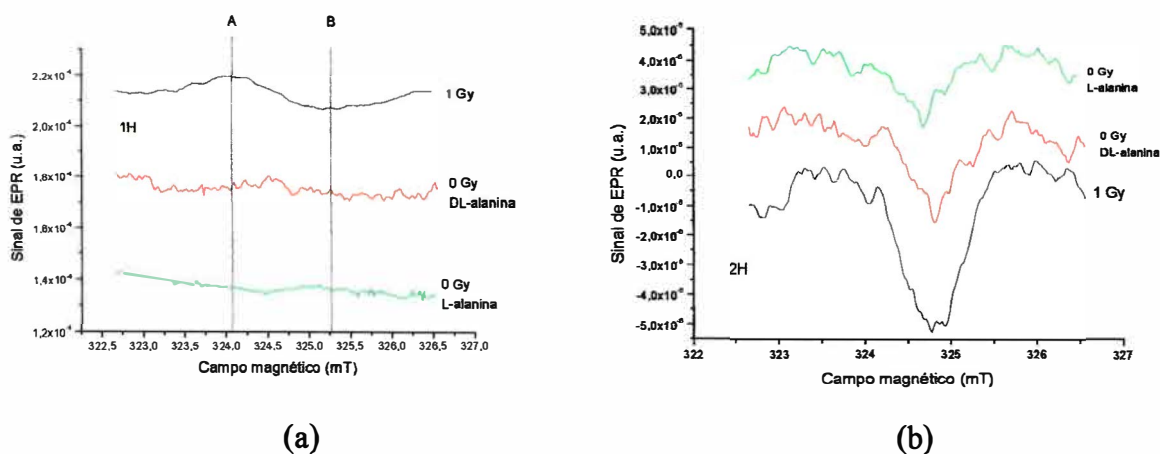


Figura 6.21 Sinais de fundo para a L-alanina e a DL-alanina no caso do (a) primeiro harmônico e, (b) segundo harmônico.

Segundo Bartolotta et al (1993), o limite inferior de detecção define-se como a dose a qual corresponde um sinal de EPR significativamente diferente do sinal de fundo, superior ao menos em três desvios padrões ( $r - r_0 > 3\sigma_0$ ). Para os dados obtidos, isto corresponde a uma dose de cerca de 0,5 Gy tanto para a L-alanina como para a DL-alanina. Na figura 6.16(a) e (b) nota-se que as diferenças em amplitude dos sinais de EPR são apenas perceptíveis para uma dose menor de 0,5 Gy.

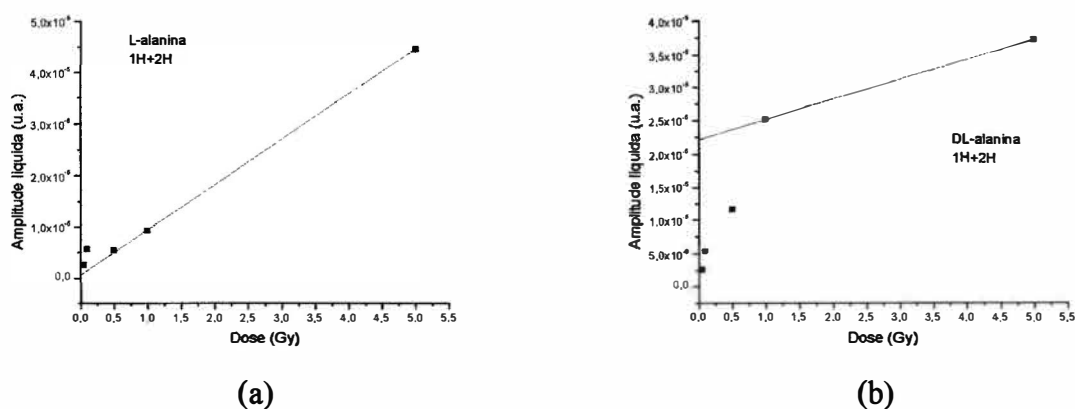


Figura 6.22 Extrapolação da curva dose-efeito para altas doses incluindo só os valores de doses de 1 e 5 Gy e os valores de baixas doses.

Uma outra possível maneira de determinar o limite inferior de detecção é fazendo uma extrapolação da curva dose-efeito mostradas nas figuras 6.17(c) para o caso da L-alanina e 6.18(c) para o caso da DL-alanina. Esta extrapolação é feita tomando só os valores de altas dose de 1 e 5 Gy, e incluindo os valores de baixas doses. Como indicam as

figuras 6.17(c) e 6.18(c), os valores de doses de 1 e 5 Gy são parte da reta dose-efeito. Levando em conta este fato, na figura 6.22 traçou-se uma reta entre os pontos correspondentes a 1 e 5 Gy e prolongou-se até o eixo das coordenadas. O valor de baixa dose que mais perto fica desta reta pode-se considerar como o limite inferior de detecção. Observando as figuras 6.22(a) e (b), deduziu-se que o limite corresponde a um valor de 0,5 Gy tanto para a L-alanina como para a DL-alanina.

### **6.5 Aplicação: Determinação de Curvas de Isodoses em Radioterapia.**

Foram registrados os sinais de EPR de cada uma das pastilhas de DL-alanina colocadas na fatia 25, e estes sinais foram transformados em valores de doses com a ajuda da curva dose-efeito da figura 6.18(a). Como o fantoma Rando foi irradiado com uma dose de aproximadamente 10 Gy, só registrou-se o primeiro harmônico. Estes valores de doses correspondem aos valores médios dos dois dosímetros/furo colocados nos 50 furos da fatia 25. Desta forma, obtêm-se 50 valores de doses correspondentes a matriz de pontos da fatia. Na figura 6.23 mostra-se a distribuição das doses num plano perpendicular ao eixo do fantoma em função das coordenadas de posição de cada furo. Nota-se desta figura que a distribuição de doses é muito uniforme no volume de irradiação. Nesta figura os pontos de igual tamanho correspondem a mesma dose, e pontos de maior tamanho representam uma dose maior. Na figura 6.24(a) mostra-se a distribuição de curvas de isodoses obtidas da matriz de pontos da fatia 25. Os números indicados nas curvas representam valores de doses em Gy. A discontinuidade das curvas é devido a quantidade de furos na fatia, com uma maior densidade de pontos as curvas seriam mais suaves. Na figura 6.24(b) mostra-se uma distribuição de curvas de isodoses teórica e os números indicados representam porcentagens de doses com respeito ao valor máximo. Se compararmos essas figuras, veremos que as distribuições apresentam um perfil muito semelhante.

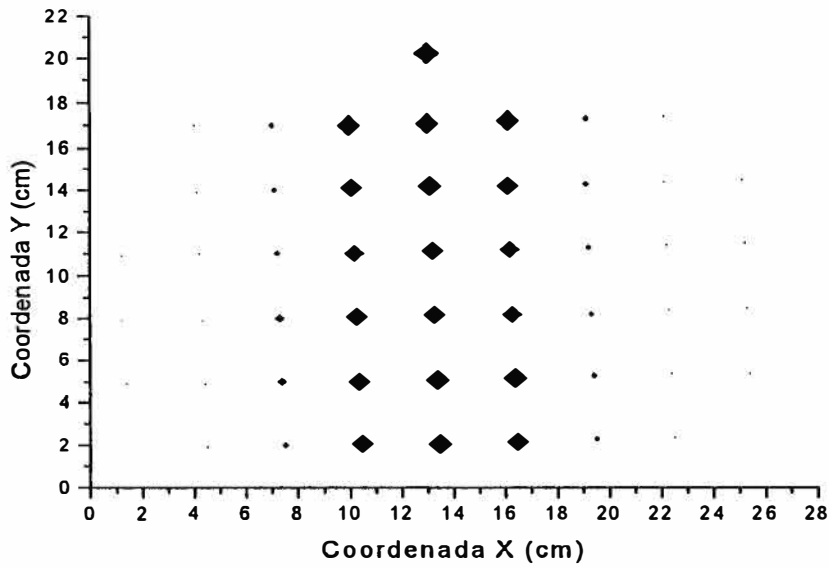


Figura 6.23 Distribuição pontual das doses na fatia 25. Campo (10x10) cm<sup>2</sup>.

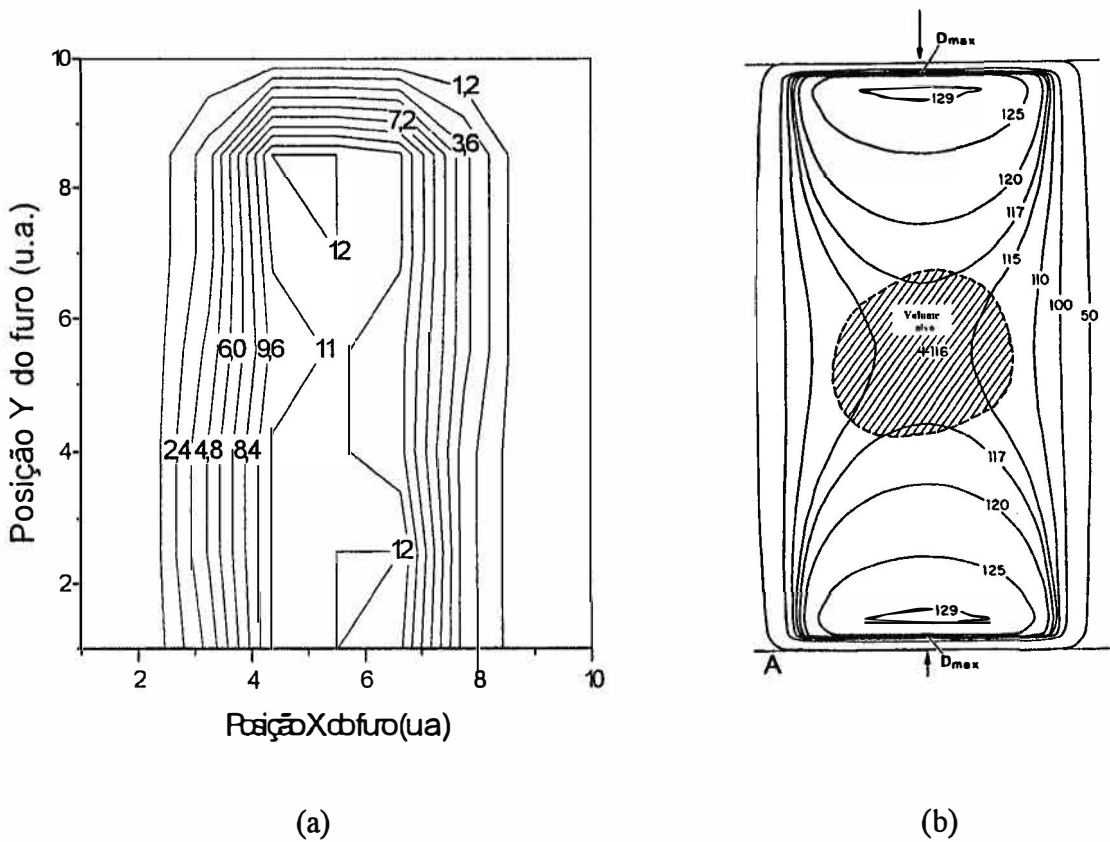


Figura 6.24 Distribuição de curvas de isodoses para dois projeções opostas.

(a) determinadas experimentalmente e, (b) calculadas teoricamente.

(R. K. Hobbie, *Intermediate Physics for Medicine and Biology*,

II Edition, 1988).

## Capítulo 7. Conclusões Finais.

Estudamos nesse trabalho os diversos fatores que influenciam a leitura de dosímetros de DL e L-Alanina, e a seguir foi ilustrado uma possível aplicação no mapeamento de doses em radioterapia. Como contribuição original deste trabalho foram realizados estudos da detecção segundo harmônico do espectro de EPR para diferentes doses. Esses resultados são interessantes e mostram que não se deve desprezar essa informação, principalmente quando uma amplitude de modulação elevada é utilizada para aumentar a sensibilidade. Em alguns casos a detecção do segundo harmônico oferece uma nítida vantagem para distinguir o sinal do ruído de fundo. Como cada espectrômetro de EPR comporta-se de forma individual e dado que as condições de fabricação das pastilhas de alanina podem ser particulares para cada laboratório, podemos afirmar que com os parâmetros de operação do equipamento e com a metodologia de fabricação das pastilhas utilizada, pode-se realizar uma dosimetria na faixa de doses de 1-10 Gy tanto com as pastilhas de DL e L-alanina. Na faixa de 1-20 Gy, a L-alanina mostrou ser cerca de 20% mais sensível que a DL-alanina indicando que existe uma maior produção de radicais livres por unidade de dose. No entanto, para doses menores de 1 Gy a sensibilidade de ambos tipos de alanina pode-se dizer que é quase igual. O resultado do limite inferior de detecção para nosso sistema de dosimetria de alanina/EPR coincide com a maioria dos autores citados na introdução deste trabalho. Pode-se adiantar que com o advento de amplificadores lock-in digitais, baseados em processadores digitais de sinais (DSP) essa metodologia poderá ser estendida para harmônicos de ordem mais elevado permitindo um ganho em sensibilidade e até, possivelmente, a reconstrução da curva original de absorção através da série de potências associada.

Como recomendações de futuros trabalhos podemos mencionar a detecção simultânea dos dois primeiros harmônicos e o estudo da variação da amplitude do sinal resultante com a potência de microondas, amplitude de modulação e frequência de modulação. Também se poderia fazer um procedimento de dosimetria alanina/EPR baseado em outra frequência de microondas mais elevada, com possíveis ganhos em intensidade.

## Bibliografia

ALEXANDRE, A. C. **Dosimetria por RPE usando Alanina.** Dissertação de Mestrado, Faculdade de Filosofia, Ciências, e Letras de Ribeirão Preto, Universidade de São Paulo (1991).

ALEXANDRE, A. C., BAFFA, O., NASCIMENTO, O. R. **The Influence of Measurement and Storage Conditions on Alanine ESR Dosimeters.** *Appl. Radiat. Isot.* **43**(11), 1407-1411 (1992).

ASTM Designation: E 1607-94. **Standard Practice for Use of the Alanine-EPR Dosimetry System.**

ATTIX, F. H. **Energy imparted, energy transferred and net energy transferred.** *Phys. Med. Biol.*, **28**, 1385-1390 (1983).

ATTIX, F. H. **Introduction to Radiological Physics and Radiation Dosimetry.** John Wiley & Sons, Inc. First Edition 1986.

BARTOLOTTA, A., ONORI, S., PANTALONI, M. **Intercomparison of the dosimetric system used in industrial irradiation plants in Italy.** *Appl. Radiat. Isot.*, **40** (10-12), 1003-1007 (1989).

BARTOLOTTA, A., FATTIBENE, P., ONORI, S., PANTALONI, M., PETETTI, E. **Sources of Uncertainty in Therapy Level Alanine Dosimetry.** *Appl. Radiat. Isot.*, **44** (1-2), 13-17 (1993).

BERGER, R. T. **The X- or Gamma-Ray Absorption or Transfer Coefficient: Tabulations and Discussion.** *Radiation Research*, **15**, 1-29 (1961).

BERGSTRAND, E. S., HOLE, E. O., and SAGSTUEN, E. **A Simple Method for Estimating Dose Uncertainty in ESR/Alanine Dosimetry.** *Appl. Radiat. Isot.*, **49**, 845-854 (1998).

BRADSHAW, W. W., CADENA Jr, D. G., CRAWFORD, G. W., SPETZLER, H. A. W. **The Use of Alanine as a Solid Dosimeter.** *Radiation Research* 17, 11-21 (1962).

CALLENS, F., VAN LAERE, K., MONDELAERS, W., MATTHYS, P., BOESMAN, E. **A Study of the Composite Character of the ESR Spectrum of Alanine.** *Appl. Radiat. Isot.* 47 (11-12), 1241-1250 (1996).

CARLSSON, G. A. and CARLSSON, C. A. **Quantities and Concepts Used in Radiation Dosimetry.** *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, 33, 953-965 (1982).

CHU, S., WIESER, A., FEIST, H., REGULLA, D. F. **ESR/alanine dosimetry of high-energy electrons in radiotherapy.** *Appl. Radiat. Isot.*, 40 (10-12), 993-996 (1989).

CONINCKX, F., SCHÖNBACHER, H., BARTOLOTTA, A., ONORI, S., ROSATI, A. **Alanine dosimetry as the reference dosimetric system in accelerator radiation environments.** *Appl. Radiat. Isot.*, 40 (10-12), 977-983 (1989).

DAVISSON, C. M. and EVANS, R. D. **Gamma-Ray Absorption Coefficients.** *Reviews of Modern Physics*, 2, 79-107, (1952).

EVANS, R. D. **The Atomic Nucleus.** Robert E. Krieger Publishing Company, Inc. 1955. Reprint edition: 1972, 1982.

HUBBELL, J. H. **Photon Mass Attenuation and Mass Energy-Absorption Coefficients for H, C, N, O, Ar, and Seven Mixtures from 0.1 keV to 20 MeV.** *Radiation Research*, 70, 58-81, (1977).

HUBBELL, J. H. and SELTZER, S. M. **Tables of X-ray Mass Attenuation Coefficients and Mass Energy-Absorption Coefficients 1 keV to 20 MeV for Elements Z=1 to 92 and 48 Additional Substances of Dosimetric Interest.** NISTIR 5632, U.S. Department of Commerce. May 1995.

IKEYA, M. **New Applications of Electron Spin Resonance: Dating, Dosimetry and Microscopy.** World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd. 1993.

- INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Absorbed dose determination in photon and electron beams. An international code of practice.** Vienna, IAEA (1987).
- JUNCHENG, G., ZAIYONG, Z., **The Extension of the Range of NIM Alanine/ESR Dosimetric System to Therapy Level.** *Appl. Radiat. Isot.* **47 (11-12)**, 1193-1196 (1996).
- KUDYNSKI, R., KUDYNSKA, J., BUCKMASTER, H. A. **The Application of EPR Dosimetry for Radiotherapy and Radiation Protection.** *Appl. Radiat. Isot.* **44 (6)**, 903-906 (1993).
- KUNTZ, F., PABST, J. Y., DELPECH, J. P., WAGNER, J. P., MARCHONI, E. **Alanine-ESR *In Vivo* Dosimetry: a Feasibility Study and Possible Applications.** *Appl. Radiat. Isot.* **47 (11-12)**, 1183-1188 (1996).
- LEHNINGER, A. L., **Principios de Bioquímica.** Capítulo 5, página 71. Sarvier Ltda. 1984.
- McMILLAN, J. A. **Paramagnetismo Electrónico.** Monografía da Organização de Estados Americanos. 1975.
- MEHTA, K., GIRZIKOWSKY, R. **Alanine-ESR Dosimetry for Radiotherapy IAEA Experience.** *Appl. Radiat. Isot.* **47 (11-12)**, 1189-1191 (1996).
- MILLER, A., KOVACS, A., WIESER, A., REGULLA, D. F. **Measurements with alanine and film dosimeters for industrial 10 MeV electron reference dosimetry.** *Appl. Radiat. Isot.*, **40 (10-12)**, 967-969 (1989).
- MIYAGAWA, I., GORDY, W. **Electron Spin Resonance of an Irradiated Single Crystal of Alanine: Second-Order Effects in Free Radical Resonances.** *The Journal of Chemical Physics*, **32**, 255-263 (1960).
- MORGAN, K. Z. and TURNER, J. E. **Principles of Radiation Protection.** Robert E. Krieger Publishing Company, Inc. 1973.



NETTE, H. P., ONORI, S., FATTIBENE, P., REGULLA, D., WIESER, A. **Coordinated Research Efforts for Establishing an International Radiotherapy Dose Intercomparison Service Based on the Alanine/ESR System.** *Appl. Radiat. Isot.*, **44** (1-2), 7-11 (1993).

PAKE, G. E. and ESTLE, T. L. **The Physical Principles of Electron Paramagnetic Resonance.** W. A. Benjamin, Inc. Second Edition, 1973.

POOLE, C. P. **Electron Spin Resonance. Comprehensive Treatise on Experimental Techniques.** John Wiley & Sons, Inc. 1983.

REGULLA, D. F. and DEFFNER, U. **Dosimetry by ESR Spectroscopy of Alanine.** *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, **33**, 1101-1114 (1982).

ROTLAT, J., SIMMONS, J. A. **Dose-Response Relationship in the Yield of Radiation-Induced Free Radicals in Amino Acids.** *Phys. Med. Biol.* **7**, 489-497 (1963).

RUCKERBAUER, F., SPRUNCK, M., REGULLA, D. F. **Numerical Signal Treatment for Optimized Alanine/ESR Dosimetry in the Therapy-level Dose Range.** *Appl. Radiat. Isot.* **47** (11-12), 1263-1268 (1996).

SCHAEKEN, B., SCALLIET, P. **One Year of Experience with Alanine Dosimetry in Radiotherapy.** *Appl. Radiat. Isot.* **47** (11-12), 1177-1182 (1996).

SELTZER, S. M. **Calculation of Photon Mass Energy-Transfer and Mass Energy-Absorption Coefficients.** *Radiation Research*, **136**, 147-170, (1993).

SHARPE, P. H. G., RAJENDRAN, K., SEPHTON, J. P. **Progress Towards an Alanine/ESR Therapy Level Reference Dosimetry Service at NPL.** *Appl. Radiat. Isot.* **47** (11-12), 1171-1175 (1996).

SLICHTER, C. P. **Principles of Magnetic Resonance.** Springer-Verlag. Corrected 3<sup>rd</sup> Printing, 1996.

SNIPES, W., HORAN, P. K. **Electron Spin Resonance Studies of Free Radical Turnover in Gamma-Irradiated Single Crystals of Alanine.** *Radiation Research* **30**, 307-315 (1967).

SWARTZ, H. M.; BOLTON, J. R.; and BORG, D. C. **Biological Applications of Electron Spin Resonance.** John Wiley & Sons, Inc. 1972.

VAN LAERE, K., BUYSSE, J., BERKVEN, P. **Alanine in high-dose dosimetry: spectrophotometric and electrochemical readout procedures compared with ESR.** *Appl. Radiat. Isot.*, **40** (10-12), 885-896 (1989).

VAN ROGGEN, VAN ROGGEN, and GORDY. *Bull. Am. Phys. Soc. II* **1**, 266 (1956).

WIESER, A., LETTAU, C., FILL, U., REGULLA, D. F. **The Influence of Non-radiation Induced ESR Background Signal from Paraffin-Alanine Probes for Dosimetry in the Radiotherapy Dose Range.** *Appl. Radiat. Isot.* **44** (1-2), 59-65 (1993).

WIESER, A., and REGULLA, D. F. **ESR dosimetry in the "gigarad" range.** *Appl. Radiat. Isot.*, **40** (10-12), 911-913 (1989).