

Desenvolvimento de Cristais Luminescentes para Dosimetria com Filmes

Davi S. Azevedo^{1*}, Susana S. Lalic², Savio Canuto³, Magno N. Xavier⁴, Francesco D'Errico⁵

1. Estudante da Universidade Federal de Sergipe (UFS)
2. (Orientadora) Doutora da Universidade Federal de Sergipe (UFS)
3. Estudante da Universidade Federal de Sergipe (UFS)
4. Mestrando da Universidade Federal de Sergipe (UFS)
5. Doutor da Università de Pisa, na Itália

Resumo

Existe um número limitado de dosímetros OSL (Luminescência Opticamente Estimulada) no mercado, e os que já existem não possuem todas as qualidades desejáveis para as diversas aplicações. Há um interesse clínico em detectar doses de entrada na pele do paciente, entretanto não existe um dosímetro que possa medir a dose com precisão nas superfícies irregulares. A ideia é utilizar os cristais emissores de OSL em filmes impermeáveis e flexíveis de PVC como alternativa para detecção de doses de entrada na pele. Com esses filmes carregados de cristais de MgB₄O₇:Ce,Li seria possível realizar dosimetria 2D. Neste plano de trabalho foi verificado que o cristal de MgB₄O₇:Ce,Li apresenta emissão OSL intensa e possui linearidade dose-resposta. Parâmetros de produção e sinterização de pastilhas foram variados a fim de obter a melhor rota de síntese, com isso conseguimos obter informações acerca da melhor granulometria, temperatura de sinterização e solvente (necessário para produção dos filmes).

Palavras-chave: tetraborato de magnésio; luminescência opticamente estimulada; radiação.

Apoio financeiro: Conselho Nacional de Desenvolvimento Científica e Tecnológico – CNPq.

Trabalho selecionado para a JNIC: UFS

1. Introdução

Terapia por captura de nêutrons com boro (BNCT) é uma técnica experimental usada para tratar o melanoma. O composto de boro é seletivamente concentrado em uma massa tumoral e, em seguida, exposto a um fluxo de nêutrons. O tratamento alivia as células normais porque a maior dose de radiação é entregue ao tumor em relação ao tecido normal adjacente após a reação nuclear causada por nêutrons térmicos em núcleos B-10 absorvidos pelo tumor.

Esses nêutrons térmicos são produzidos principalmente pela interação do fluxo de nêutrons com o corpo do paciente e são chamados de nêutrons albedo. Não é fácil medir a dose correta administrada pelos nêutrons à superfície do corpo porque o volume do paciente pode ser muito diferente e fornecer uma quantidade diferente de albedo. Por esta razão, nosso grupo na UFS tem procurado o desenvolvimento de filmes de polímeros extremamente finos e flexíveis carregados com materiais luminescentes sensíveis a nêutrons. Os filmes dosimétricos podem ser moldados na forma da área a ser tratada e medir a dose de nêutrons albedo na superfície. Souza *et al.* (2017b) investigaram filmes flexíveis com cristais de CaF₂:Ce, emissores OSL, imersos em uma matriz polimérica de PVC, sendo constatado que estes dosímetros apresentam características promissoras para aplicações em dosimetria in vivo e dosimetria 2D.

Em particular, nesse trabalho está sendo investigado desenvolvimento de filmes dosimétricos, flexíveis e impermeáveis, com uma matriz polimérica de cloreto de polivinila (PVC) carregada com micro cristais MgB₄O₇:Ce,Li. Já foi provado em trabalhos anteriores que estes cristais são emissores de luminescência opticamente estimulada, com um sinal proporcional à dose de radiação recebida e podem ser produzidos por síntese em estado sólido Souza *et al.* (2017a).

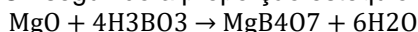
Desta forma, esse plano de trabalho teve por objetivo produzir os cristais luminescentes que serão usados nesses filmes e que podem contribuir significativamente para a dosimetria de nêutrons na BNCT. Em especial, tivemos por objetivo obter informações sobre como se comportam os cristais em função do tamanho de grãos e na forma de pastilhas sinterizadas com diferentes temperaturas.

2. Metodologia

2.1. Preparo do MgB₄O₇:Ce,Li

O método adotado para a produção de cristais foi a síntese do estado sólido. Essa síntese consiste em homogeneizar todos os reagentes em proporções estequiométricas, e passar a amostra resultante por um tratamento térmico a elevadas temperaturas, acima do ponto de fusão dos reagentes. Os reagentes utilizados foram: óxido de magnésio, ácido bórico, óxido de cério e carbonato de lítio.

Foram feitas amostras de MgB₄O₇ seguindo a proporção estequiométrica:



Os reagentes foram todos homogeneizados e em seguida levados ao forno por 900 °C por 7 horas para calcinificação.

2.2. Difração de raios X

As medidas de difração de raios X (DRX) foram feitas no Departamento de Física (DFCI) da UFS-Itabaiana. O difratômetro utilizado é o Bruker D8 Advance.

O difratômetro foi operado no modo de varredura contínua com intervalo de 10° a 60° , com passos de $0,02^\circ$. De acordo com a literatura (SANTOS, 2018), o intervalo em que todos os picos de absorção do MgB_4O_7 surgem está entre 10° e 60° , por isso a escolha deste intervalo de interesse.

2.3. Produção e sinterização das pastilhas com amostras de $MgB_4O_7:Ce, Li$.

Foram produzidas pastilhas com 40 mg de amostra. As amostras foram pesadas e em seguida foi aplicada a elas uma pressão de 100 kgf/cm^2 por 30 segundos, com uma prensa hidráulica. Foram feitas pastilhas com grãos menores de $45 \mu\text{m}$ e entre 45 e $75 \mu\text{m}$. Para conferir resistência mecânica, as pastilhas foram levadas ao forno para o processo de sinterização, onde aplicamos temperaturas próximas da fusão do cristal, que se dá em 900°C . Três temperaturas foram selecionadas para avaliação daquela mais adequada a sinterização: 825 , 850 e 875°C .

2.4. IRRADIAÇÃO COM FONTE BETA β

Para irradiação das pastilhas foi utilizada uma fonte de radiação β de $Sr^{90}\text{-}Y^{90}$ com taxa de dose de 362 mGy/min , disponível no Laboratório de Física Médica – LFM, na UFS – Universidade Federal de Sergipe.

As pastilhas foram enumeradas de um lado para identifica-las e irradiar um lado apenas. As pastilhas foram posicionadas em um suporte de acrílico com marcação para exposição uniforme da radiação.

2.5. LUMINESCÊNCIA OPTICAMENTE ESTIMULADA (OSL)

Para realização das medidas de luminescência com estímulo óptico foi utilizada a leitora OSL disponível no Laboratório de Física Médica – LFM, na UFS, modelo DOIN-L003. A leitora utiliza um LED azul para estimulação óptica e um tubo fotomultiplicador que capta a luminescência emitida pelo material, convertendo-o em sinal elétrico e o amplificando.

Com o uso de uma fonte de radiação β de $Sr^{90}\text{-}Y^{90}$ (362 mGy/min), foi tomado o cuidado de realizar a leitura da pastilha iluminando-a do mesmo lado no qual ela foi exposta. A pastilha não apresenta transparência, logo a luz estimulante da leitora OSL só atinge a face voltada para cima. Para isto o lado oposto da pastilha foi marcado com lápis grafite.

3. Resultados e Discussão

3.1. Análise de difração de raios X (DRX)

A síntese do estado sólido dos reagentes utilizados produziu um material que é cristalino. O espectro de DRX mostra que as fases das amostras coincidem com aqueles apresentados na ficha cristalográfica do borato de magnésico (ICSD 34397), também houve a presença de fases do ácido bórico (ICSD 24711) (figura 1), indicando que o ácido bórico não reagiu completamente.

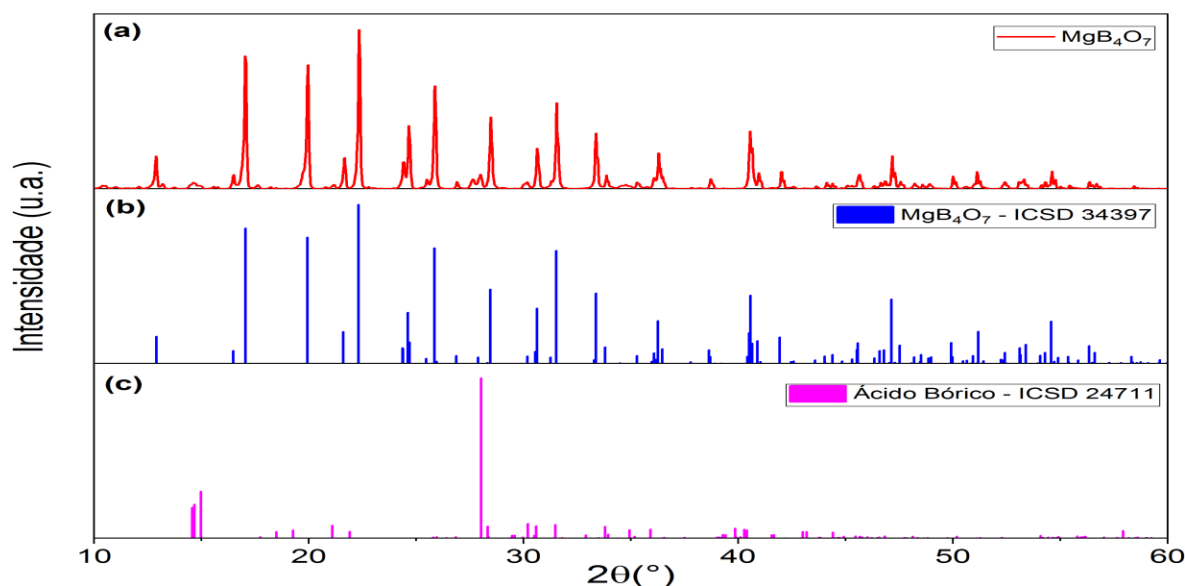


Figura 1: Difração de raios X da amostra produzida (vermelho); Padrão ICSD 34397 (azul); Padrão ICSD 24711 (rosa).

3.2. Análise das curvas de emissão OSL

Foram realizadas medidas de luminescência opticamente estimulada com as amostras sinterizadas à temperatura de 825, 850 e 875 °C, irradiadas por 5 minutos (dose = 1,81 Gy) com a fonte β (figura 2).

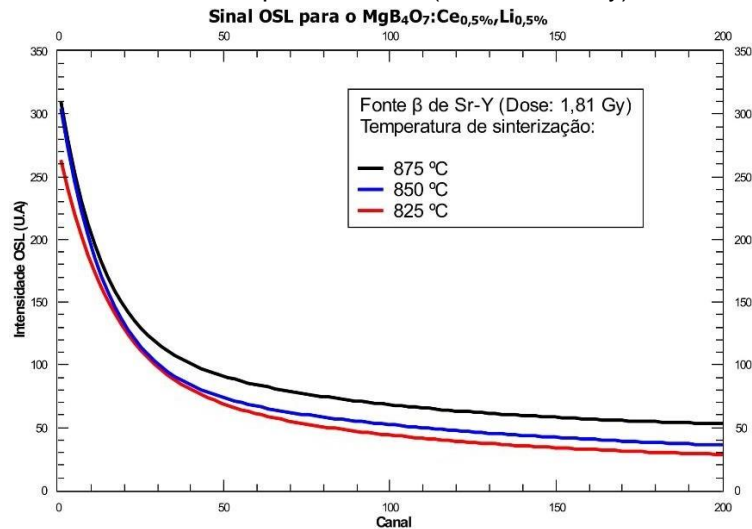


Figura 2: Decaimento OSL das pastilhas sinterizadas a 825, 850 e 875 °C

As pastilhas sinterizadas a $T_1 = 875$ °C tem intensidade OSL 17% maior que $T_2 = 850$ °C, que por sua vez tem intensidade 12% maior que $T_3 = 825$ °C. Outro fator que deve ser considerado é que a maior temperatura também provoca maior adesão da pastilha ao suporte do forno, dificultando sua remoção. Considerando intensidade OSL e praticidade foi escolhido a temperatura de sinterização de 850 °C como a mais adequada.

Para obtenção das curvas dose-resposta foram utilizadas pastilhas sinterizadas a 850 °C, com grãos entre 45 e 75 μm (figura 3) e grãos menores que 45 μm (figura 4). Cada ponto a curva representa a média da medida entre 3 pastilhas submetidas a determinada dose, as barras verticais são suas respectivas incertezas.

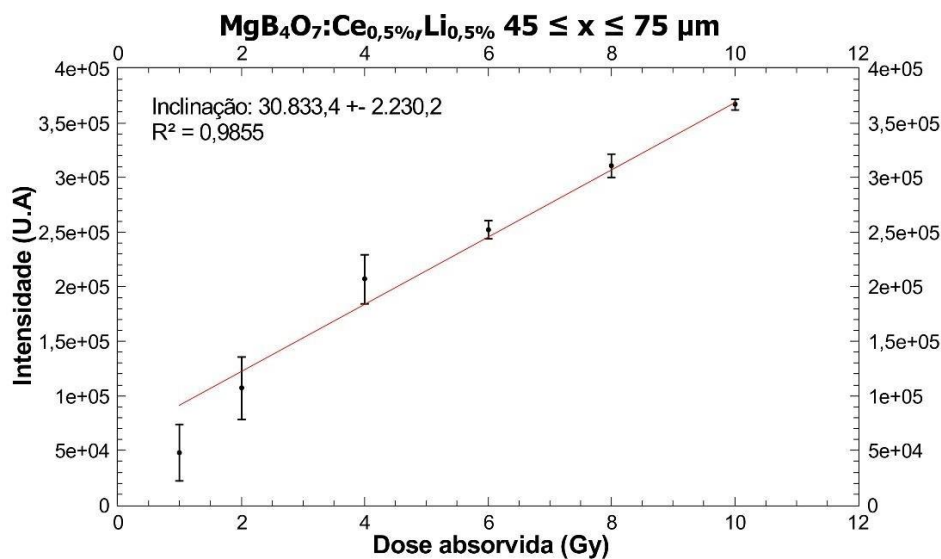


Figura 3: Curva dose-resposta das pastilhas com grãos entre 45 e 75 μm .

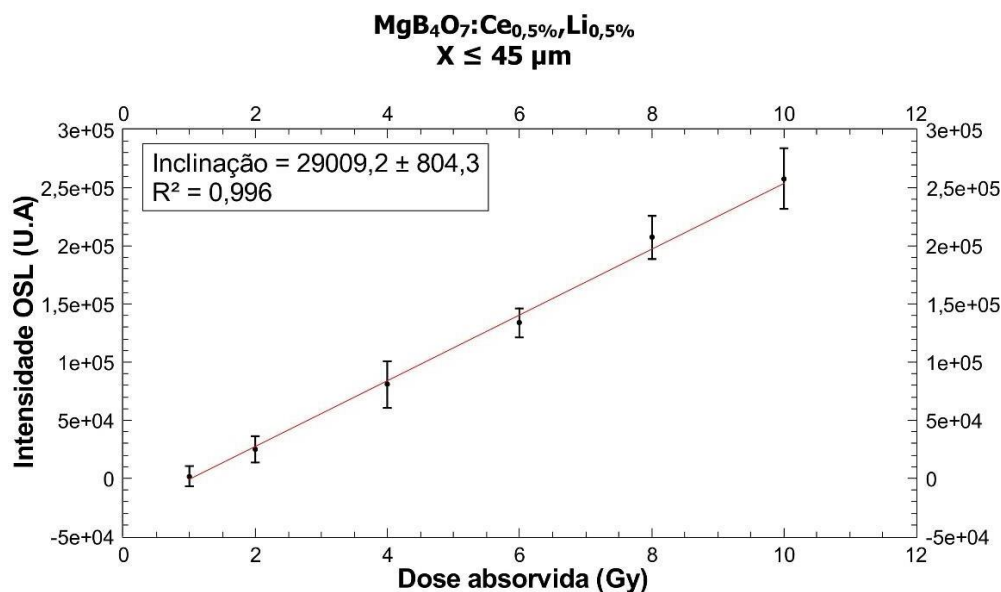


Figura 4: Curva dose-resposta das pastilhas com grãos menores que 45 μm.

Há linearidade dose-resposta do material, era esperado um leve aumento de intensidade para pastilhas feitas com grãos menores, a variação de intensidade é menor que a incerteza e as medidas não foram feitas no mesmo dia, sendo assim não é possível realizar comparações. Em trabalhos anteriores (SANTOS, 2018) foram obtidas curvas dose-resposta para doses baixas (10 – 100 mGy) onde também há comportamento de crescimento linear da resposta com a dose.

4. Conclusões

A rota de produção da síntese do estado sólido, com temperatura de 900 °C por 7 h, foi eficaz na formação da fase cristalina desejada. Ainda há presença de fases do ácido bórico, que está em excesso no material. Por ser o reagente de maior quantidade, o seu excesso é mais suscetível do que para os outros reagentes quando há descuidos e incertezas na pesagem. Utilizar uma balança analítica mais precisa ou com melhor calibração, maior cuidado na pesagem dos reagentes, bem como a troca do reagente por um de marca de maior pureza resolvem este problema.

Após a produção das pastilhas é necessário submetê-las a temperaturas altas, processo este que chamamos de sinterização. O objetivo é reduzir os poros da pastilha, aumentando sua resistência mecânica e sensibilidade. Três temperaturas de sinterização foram escolhidas, a maior delas ($T_1 = 875$ °C) teve intensidade OSL 17% maior que $T_2 = 850$ °C, a intensidade de T_2 foi 12% maior que a de $T_3 = 825$ °C. Mesmo com este resultado devemos levar em consideração que a maior temperatura de sinterização também provoca maior adesão das pastilhas no suporte do forno. Mais da metade das pastilhas sinterizadas a T_1 foram perdidas no processo de remoção delas do forno, para T_2 poucas pastilhas foram perdidas, para T_3 nenhuma pastilha foi perdida. Levando em consideração aumento de intensidade e economia de material a temperatura escolhida como mais adequada foi a $T_2 = 850$ °C (figura 2).

As curvas dose-resposta (figura 3 e 4) mostram crescimento linear da resposta OSL das pastilhas em relação a dose de radiação aplicada. Apesar de não ser uma característica obrigatória, o comportamento dose-resposta linear é o mais indicado pela simplicidade de relacionar a intensidade OSL do detector com a dose absorvida pelo usuário.

5. Referências bibliográficas

SOUZA, L.F.; SILVA, A.M.B.; ANTONIO, P.L.; CALDAS, L.V.E.; SOUZA, S.O.; D'ERRICO, F.; SOUZA, D.N. Dosimetric properties of MgB₄O₇:Dy,Li and MgB₄O₇:Ce,Li for optically stimulated luminescence applications. *Radiat. Meas.*, v. 106, p. 196-199, 2017 (a).

SOUZA, S. O.; D'ERRICO, F.; AZIMI, B.; BALDASSARE, A.; ALVES, A.V.S.; VALENÇA, J.V.B.; BARROS, V.S.M.; CASCONI, M.G.; LAZZERI, L. OSL films for in-vivo entrance dose measurements. *Radiat. Meas.*, v. 106, p. 643-648, 2017 (b).

SANTOS, C. C.; Desenvolvimento de Filmes Poliméricos Com MgB₄O₇: Ce, Li Para Aplicações Dosimétricas, 2018. Dissertação (Mestrado) Universidade Federal de Sergipe, São Cristóvão (2018).

SOUZA, L. F.; Produção e caracterização de compostos à base de MgB₄O₇ para aplicação em dosimetria, 2016. Dissertação (Doutorado) Universidade Federal de Sergipe, São Cristóvão (2016).