

AVALIAÇÃO DO QUARTZO COMO DOSÍMETRO PESSOAL BASEADO EM LUMINESCÊNCIA OPTICAMENTE ESTIMULADA

T. D. Mineli^{*, **}, A. O. Sawakuchi^{**}, L. Nogueira^{**}, N. K. Umisedo^{***} e E. T. Costa^{*, ****}

^{*}Departamento de Engenharia Biomédica, FEEC – UNICAMP, Campinas, Brasil

^{**}Laboratório de Espectrometria Gama e Luminescência, IGc – USP, São Paulo, Brasil

^{***}Laboratório de Dosimetria, IF – USP, São Paulo, Brasil

^{****}Centro de Engenharia Biomédica, CEB – UNICAMP, Campinas, Brasil

e-mail: thaysdesiree@gmail.com

Resumo: O uso de radiação ionizante é cada vez mais intenso, seja na indústria seja na área médica. Os efeitos nocivos da radiação ionizante exigem medidas de segurança na sua utilização e um dos meios mais comuns para proteção da saúde do operador de equipamentos que usam esta radiação é o controle da dose que pode receber em determinado período e, para tal controle, são normalmente utilizados dosímetro pessoais. Estudos sobre datação de sedimentos costeiros e fluviais do Brasil têm encontrado tipos específicos de quartzo com excelentes características dosimétricas. Com o objetivo de analisar as propriedades dosimétricas de amostras de quartzo de elevada sensibilidade de luminescência e avaliar a sua possível utilização na dosimetria pessoal, foram feitos testes comparativos com amostra do principal e mais utilizado dosímetro pessoal do tipo OSL (*Optically Stimulated Luminescence*), o $Al_2O_3:C$. Este artigo apresenta as características de luminescência do tipo de quartzo estudado e os resultados para testes de recuperação de dose conhecida (*dose recovery*) por meio de protocolo de alíquota única (*Single-Aliquot Regenerative – SAR*). Os resultados preliminares mostraram que o tipo de quartzo estudado é capaz de registrar doses da ordem de dezenas de mGy, com incerteza comparável à do $Al_2O_3:C$. Isto incentiva estudos mais aprofundados para avaliar o uso deste tipo de quartzo como elemento sensor em dosímetros pessoais. **Palavras-chave:** Dosimetria de radiação, Luminescência Opticamente Estimulada, quartzo.

Abstract: *The use of ionizing radiation is becoming more intense, whether in industry or in the medical field. The harmful effects of ionizing radiation require safety measures in its use. One of the most common ways to protect the health of the operator of ionizing radiation equipments is the dose control that can receive in a given period. Personal dosimeters dosimeters are used for this purpose. Studies about dating of coastal and fluvial sediments in Brazil have found quartz types with very high luminescence signal and excellent dosimetry characteristics. In order to analyze the dosimetric properties of very bright Brazilian quartz samples and evaluate their use in personal dosimetry, comparative tests with the most used personal OSL (Optically Stimulated Luminescence) dosimeter, $Al_2O_3:C$, were made. This article presents the OSL characteristics of the*

studied quartz type and results for dose recovery tests performed using Single-Aliquot Regenerative (SAR) protocol for dose measurement. Preliminary results have shown that the studied quartz type is suitable to recover dose of tens of mGy, with uncertainty similar to that presented by $Al_2O_3:C$. These results support additional studies to evaluate the use of this high sensitivity Brazilian quartz as a sensor element in personal dosimeters.

Keywords: *Radiation dosimetry, Optically Stimulated Luminescence, quartz.*

Introdução

O uso da radiação ionizante está presente em diversas áreas, desde a indústria até a medicina, de modo que deve ser feito de forma controlada e com segurança devido aos efeitos biológicos nocivos que podem ser causados nos tecidos humanos [1]. A dosimetria pessoal visa monitorar os indivíduos ocupacionalmente expostos, com o uso de dosímetros para certificar se os limites de dose estabelecidos pelas normas da CNEN (Comissão Nacional de Energia Nuclear) estão sendo cumpridos [2].

Dosímetros são detectores utilizados para estimar a dose de radiação ionizante acumulada por um longo período em uma pessoa ou ambiente. Dentre os tipos de dosímetros, têm-se os termoluminescentes e os de luminescência opticamente estimulada (OSL, do inglês *Optically Stimulated Luminescence*). Geralmente, os dosímetros luminescentes são cristais fabricados em laboratório. Quando a radiação interage com o cristal, cargas são armadilhadas, permanecendo em um estado metaestável até que lhes seja entregue uma forma de energia. As cargas, ao se recombinarem, voltam para o estado fundamental e energia é liberada, no caso, em forma de luz. Esta luz pode ser detectada e convertida em um sinal que representa uma informação de dose de radiação à qual foi exposto o dosímetro.

Para fabricar dosímetros do tipo OSL existem poucos materiais, como o óxido de alumínio dopado de carbono ($Al_2O_3:C$) e o óxido de berílio (BeO) [3]. O quartzo (SiO_2) possui propriedades termoluminescentes e de OSL, podendo, assim, ser utilizado como dosímetro de radiação ionizante [3,4]. No entanto, as propriedades de luminescência do quartzo natural ou sintético são

altamente variáveis, de modo que a maioria dos tipos de quartzo descritos na literatura apresenta características [5, 6] que dificultam seu uso como dosímetro pessoal. Estas características incluem, por exemplo, baixa sensibilidade (razão entre sinal OSL e dose de radiação) e variação da relação entre dose e sinal de luminescência devido a procedimentos de medida (iluminação, aquecimento e irradiação da amostra).

A dosimetria por OSL do quartzo teve grande avanço a partir de 1998, ano em que foi formalizado o protocolo SAR que permitiu a correção das variações de sensibilidade das amostras de quartzo [6]. Desde então, quartzo de materiais antrópicos (tijolos e cerâmicas) ou naturais (sedimentos) tem sido amplamente utilizado para dosimetria retrospectiva [5,3]. O quartzo natural pode ser facilmente encontrado, o que tornaria menor o custo de produção de dosímetro pessoal. Geralmente, os materiais artificiais são estáveis e mais luminescentes que a maioria dos tipos de quartzo naturais. Contudo, tipos específicos de quartzo com propriedades dosimétricas de excelente qualidade, se comparadas às de tipos de quartzo sintético [7], têm sido encontrados em sedimentos costeiros e fluviais brasileiros. Isto justifica o estudo destes tipos específicos de quartzo de sedimentos brasileiros para avaliar o seu uso na área de dosimetria médica. Este trabalho visa avaliar as propriedades dosimétricas de amostras específicas de quartzo natural com luminescência de alta intensidade. Esta avaliação envolve a comparação com amostra de $Al_2O_3:C$.

Materiais e métodos

Foram selecionadas 3 amostras de quartzo (XNG47.2, PIN01 e TE65B) na fração de 180-250 μ m de sedimentos previamente datados por OSL. Estas amostras foram escolhidas por se destacarem devido à peculiaridade de apresentarem características essenciais para a dosimetria.

Dose recovery – Este teste é feito administrando uma dose de radiação conhecida na amostra e comparando o seu valor com o valor calculado através de uma curva de calibração (Figura 1). Esta é obtida a partir dos sinais OSL corrigidos em função da dose, segundo os protocolos de medidas (tabelas 1 e 2).

Foram utilizados leitores Risø TL/OSL DA-20 com fonte beta selada de Sr^{90}/Y^{90} (taxas de dose de 0,01 Gy/s, 0,084 Gy/s e 0,119 Gy/s), que além de irradiar, aquecem o material e realizam medidas de OSL. Foram pesadas 12 alíquotas de cada amostra e colocadas em *cups* de aço apropriados. O protocolo para os testes das amostras de quartzo seguem o protocolo SAR [8], com pré-aquecimento de 200°C e detecção usando filtros Hoya U-340. Para a amostra de $Al_2O_3:C$, não é necessário o pré-aquecimento e a leitura do sinal OSL é feita em temperatura ambiente. As doses recuperadas a partir do componente rápido (primeiro 0,8 s de estimulação) foram de 50,00 mGy, 0,42Gy, 35,7 Gy e 49,98 Gy. Em todos os cálculos, o *background* foi calculado a partir dos últimos 10 s do sinal.

Tabela 1: Protocolo SAR

Etapa	Procedimento
1	Iluminar com LED azul por 100 s a 280° C
2	Administrar dose D_i , $i=1$ (desconhecida), 2, 3, 4, 5, 6 (Dose = 0 Gy), 7 (Dose = D2), 8 (Dose (IRSL) = D2)
3	Pré-aquecer a alíquota por 10 s a 200° C
4	Estimular com LED azul por 40 s a 125° C (sinal L_i)
5	Administrar uma dose teste (Dt)
6	Pré-aquecer a alíquota a 160° C
7	Estimular com LED azul por 40 s a 125° C (sinal T_i)
8	Iluminar com LED azul por 40 s a 280° C, retornar ao passo 2

Tabela 2: Protocolo utilizado para a amostra de $Al_2O_3:C$

Etapa	Procedimento
1	Iluminar com LED azul por 100s a 280°C
2	Administrar uma dose D_i , $i = N$ (desconhecida), 1, 2, 3, 4, 5 (Dose = 0 Gy), 6 (Dose = D1)
3	Estimular com LED azul por 600s a 20°C (sinal L_i)
4	Administrar uma dose teste (Dt)
5	Estimular com LED azul por 600s a 20°C (sinal T_i)
6	Iluminar com LED azul por 600s a 500°C, retornar ao passo 2

A dose teste é uma dose fixa dada para corrigir o sinal OSL, pois a sensibilidade dos sinais OSL do quartzo pode mudar com repetidos pré-aquecimentos, estimulações e irradiações [8].

A curva de calibração é construída a partir da integração do componente rápido (dado em contagens) dos sinais OSL corrigidos (L_i/T_i) em função da dose administrada e ajustada para uma função exponencial do tipo:

$$Y = a(1 - \exp(-x/b)) \quad (1)$$

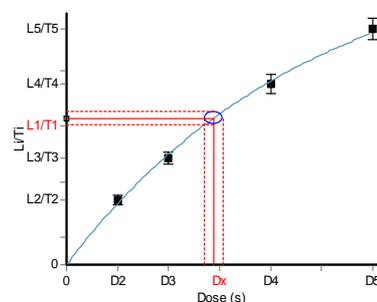


Figura 1: Curva de calibração (dose-resposta OSL). Sinal corrigido (L_i/T_i) é dado em função da dose (D_i) segundo a equação $L_i/T_i = a(1 - \exp(-D_i/b))$.

Obtendo a curva de calibração e conhecendo o valor de L_1/T_1 , pode-se determinar o valor da dose (D_x) à qual a amostra foi exposta. No teste de *dose recovery* essa dose é conhecida e se podem conferir os valores calculados.

Teste de reciclagem, teste de feldspato e teste de recuperação – O teste de reciclagem tem a função de verificar se, após ciclos de aquecimento, irradiação e iluminação, há variação na sensibilidade da amostra. É calculado pela razão entre os sinais corrigidos do ciclo 7 e do ciclo 2 dos protocolos ($R_7/R_2 = (L_7/T_7) / (L_2/T_2)$).

O teste de feldspato é feito para verificar se não há sinal OSL devido aos grãos de feldspato remanescentes. No ciclo 8 do protocolo SAR, a amostra é estimulada

por luz infravermelha (IR) por 40s a 60°C antes de ser estimulada pelo LED azul. Os grãos de feldspato são sensíveis à luz IR, emitindo um sinal característico. Seu cálculo é feito pela razão entre os sinais corrigidos do ciclo 8 e do ciclo 2 ($R_8 / R_2 = (L_8/T_8) / (L_2/T_2)$).

O teste de recuperação verifica se não há sinal OSL residual quando é dada uma dose de 0 Gy (ciclo 6). O resultado do teste é apresentado em porcentagem a partir da razão $R_6 / R_1 = (L_6/T_6) / (L_1/T_1)$.

Sensibilidade OSL – Para o cálculo da sensibilidade OSL foram utilizadas as contagens dos sinais OSL obtidos pela integração do componente rápido do sinal da primeira dose teste administrada nos protocolos. As contagens foram divididas pela dose dada e pela massa da alíquota.

Resultados

As curvas de decaimento OSL para amostra de quartzo e para a amostra de Al₂O₃:C são exemplificadas na Figura 2. A dose dada neste caso foi de 0,42 Gy e as curvas representam a OSL da primeira dose teste administrada.

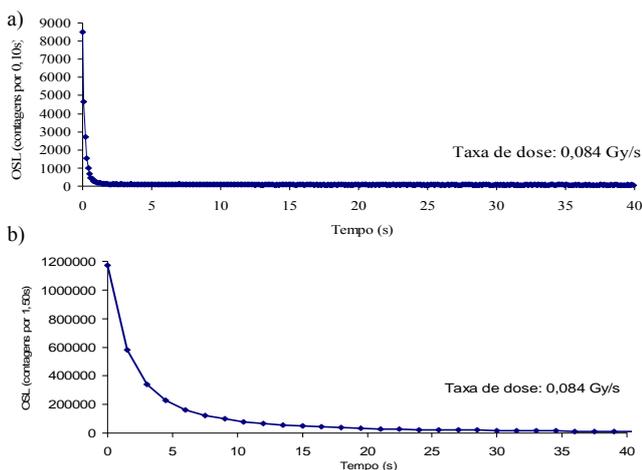


Figura 2: Curvas de decaimento do sinal OSL. (a) Quartzo (TE65B), (b) Al₂O₃:C.

Dose recovery – Os resultados do teste de *dose recovery* são apresentados na Tabela 3. A Tabela 4 apresenta as razões entre as doses calculadas e as doses administradas.

Tabela 3: Comparação entre as doses calculadas e as doses administradas.

Amostras	Dose Administrada			
	50,00 mGy	0,42 Gy	35,70 Gy	49,98 Gy
	Dose Calculada			
XNG47.2	50,41 ± 0,62	0,42 ± 0,00	34,91 ± 0,36	48,51 ± 0,51
PIN01	51,11 ± 0,71	0,42 ± 0,00	34,78 ± 0,41	50,54 ± 0,97
TE65B	52,41 ± 0,54	0,42 ± 0,00	35,42 ± 0,41	49,75 ± 0,66
Al ₂ O ₃ :C	-	0,41 ± 0,01	24,65 ± 1,00	-

Tabela 4: Razões entre as doses calculadas e as doses administradas.

Amostras	Dose Administrada			
	50,00 mGy	0,42 Gy	35,70 Gy	49,98 Gy
	Dose Calculada / Dose Administrada			
XNG47.2	1,01	1,00	0,98	0,97
PIN01	1,02	1,00	0,97	1,01
TE65B	1,05	1,00	0,99	1,00
Al ₂ O ₃ :C	-	0,99	0,69	-

Teste de reciclagem, teste de feldspato e teste de recuperação – A Tabela 5 apresenta os resultados para o teste de reciclagem (R_7/R_2), para o teste de feldspato (R_8/R_2) e para o teste de recuperação (R_6/R_1).

Tabela 5: Teste de reciclagem, teste de feldspato e teste de recuperação. Média e desvio padrão.

Amostra	Dose (Gy)	R ₇ / R ₂	R ₈ / R ₂	R ₆ /R ₁ (%)
XNG47.2	0,05	0,96 ± 0,03	0,99 ± 0,05	0,40 ± 0,73
	0,42	0,99 ± 0,02	0,99 ± 0,03	0,11 ± 0,11
	35,70	0,99 ± 0,01	1,00 ± 0,01	0,03 ± 0,01
	49,98	0,95 ± 0,01	0,96 ± 0,02	0,07 ± 0,01
PIN01	0,05	0,96 ± 0,06	0,98 ± 0,04	2,60 ± 1,33
	0,42	1,00 ± 0,04	0,98 ± 0,03	1,02 ± 1,25
	35,70	0,98 ± 0,02	0,98 ± 0,02	0,09 ± 0,02
	49,98	0,97 ± 0,04	0,98 ± 0,05	0,03 ± 0,38
TE65B	0,05	0,95 ± 0,03	0,95 ± 0,04	2,68 ± 0,91
	0,42	0,99 ± 0,02	1,00 ± 0,02	0,50 ± 0,24
	35,70	0,98 ± 0,01	0,98 ± 0,01	0,08 ± 0,02
	49,98	0,94 ± 0,01	0,94 ± 0,01	0,19 ± 0,06
Al ₂ O ₃ :C	0,05	-	-	-
	0,42	1,02 ± 0,07	-	0,01 ± 0,00
	35,70	1,01 ± 0,02	-	0,39 ± 0,14
	49,98	-	-	-

Sensibilidade OSL – Os valores de sensibilidade OSL obtidos são apresentados na Tabela 6.

Tabela 6: Sensibilidade em contagens mg⁻¹ Gy⁻¹.

Amostras	Dose Administrada			
	50,00 mGy	0,42 Gy	35,70 Gy	49,98 Gy
	Contagens mg ⁻¹ Gy ⁻¹			
XNG47.2	33585±12454	14554±3125	3288±495	2731±604
PIN01	25332±14949	5021±2571	1543±1332	3789±2688
TE65B	77158±21520	17916±5615	5803±1879	5116±946
Al ₂ O ₃ :C	-	1276498±129005	221350±30670	-

Estabilidade da sensibilidade OSL – Para as doses de 50,00 mGy e de 0,42 Gy foi verificada a baixa variação na sensibilidade OSL das amostras de quartzo durante os ciclos dos protocolos. A Figura 3 apresenta essa baixa variação comparada com a amostra de Al₂O₃:C para a dose de 0,42 Gy.

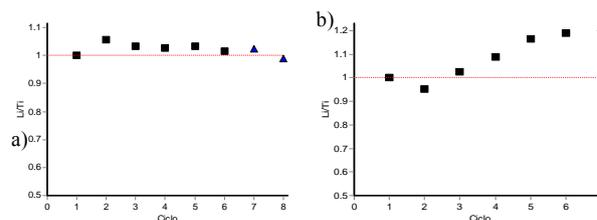


Figura 3: Variação da sensibilidade OSL para 0,42Gy. (a)Amostra de quartzo (PIN01), (b) amostra de Al₂O₃:C.

Isto permitiu calcular a dose a partir do sinal OSL não corrigido pela dose teste, através dos ajustes da curva de calibração por uma função linear e por uma função exponencial (exemplificada pela Figura 4), como demonstram as tabelas 7 e 8.

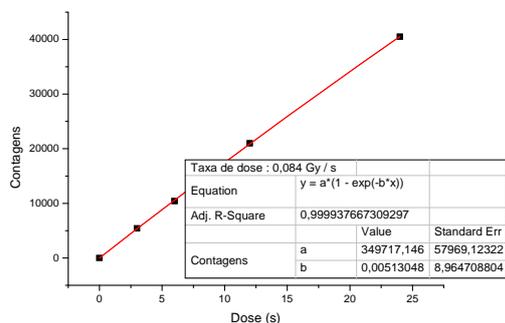


Figura 4: Curva de calibração para o componente rápido do sinal OSL sem correção pela dose teste (amostra de quartzo PIN01).

Tabela 7: Comparação entre as doses calculadas sem a correção pela dose teste nos casos de baixa variação de sensibilidade OSL.

Amostras	Dose Administrada		
	50,00 mGy	0,42 Gy	0,42 Gy
	$y = b x$	$y = b x$	$y = a (1 - \exp(-b x))$
	Dose Calculada		
XNG47.2	50,63 ± 1,46	0,43 ± 0,01	0,47 ± 0,01
PIN01	53,37 ± 1,61	0,43 ± 0,01	0,45 ± 0,01
TE65B	54,33 ± 1,57	0,43 ± 0,01	0,47 ± 0,01
Al2O3:C	-	0,36 ± 0,02	0,36 ± 0,01

Tabela 8: Razões entre as doses calculadas sem a correção pela dose teste e as doses administradas.

Amostras	Dose Administrada		
	50,00 mGy	0,42 Gy	0,42 Gy
	$y = b x$	$y = b x$	$y = a (1 - \exp(-b x))$
	Dose Calculada / Dose Administrada		
XNG47.2	1,01	1,11	1,03
PIN01	1,07	1,07	1,02
TE65B	1,09	1,11	1,03
Al2O3:C	-	0,85	0,85

Discussão

A amostra de Al₂O₃:C é mais luminescente do que as amostras de quartzo estudadas, como exemplifica a Figura 2. Porém, as amostras de quartzo podem reproduzir com maior exatidão a dose a que elas foram submetidas, como apresentou o resultado do teste de *dose recovery*.

O teste de reciclagem indica que tanto as amostras de quartzo quanto de Al₂O₃:C recuperam a dose dada após ciclos de irradiação, aquecimento e iluminação. A preparação das amostras de quartzo foi eficaz em eliminar eventuais grãos ou inclusões de feldspatos, que poderiam interferir na leitura do sinal OSL do quartzo. Este dado é verificado pelo teste de feldspato, cujos valores próximos de 1,00 na Tabela 5 demonstram que o sinal OSL não sofreu variação quando as amostras de quartzo eram iluminadas por luz infravermelha. O teste

de recuperação indica que as amostras de quartzo selecionadas não emitem sinal OSL quando são irradiadas por uma dose de 0 Gy, o que indica ausência de sinal residual ou transferência térmica.

A estabilidade da sensibilidade para as baixas doses (50,00 mGy e 0,42 Gy) permitiu o cálculo da dose sem a correção pela dose teste. Este fato faz com que o cálculo da dose possa ser realizado de forma mais simples e rápida, uma vantagem para as amostras de quartzo, já que a dose calculada nessa situação foi obtida com maior exatidão quando comparada com a amostra de Al₂O₃:C.

Conclusão

As amostras de quartzo estudadas apresentaram desempenho dosimétrico similar ao do dosímetro Al₂O₃:C, o que possibilitaria o seu uso como dosímetro pessoal. A relação linear entre baixas doses e sinal de luminescência das amostras permite calcular a dose a partir do sinal de luminescência não corrigido. Isto seria extremamente vantajoso para a utilização deste tipo de quartzo como dosímetro pessoal, pois permitiria medidas mais rápidas.

A repetição do teste de *dose recovery* com condições diferentes de pré-aquecimento poderá gerar dados ainda mais exatos. Além desses testes, testes do tempo de decaimento do sinal OSL das amostras, testes com doses mais baixas e testes com outros tipos de radiação são as próximas etapas do estudo em questão.

Referências

- [1] Okuno E, Yoshimura E. Física das Radiações. 1ªed. São Paulo: Oficina dos textos; 2010.
- [2] CNEN-NN-3.01. Diretrizes básicas de proteção radiológica. Comissão Nacional de Energia Nuclear, 2011.
- [3] Yuhikara EG, McKeever SWS. Optically stimulated luminescence, fundamentals and applications. Oklahoma: John Wiley & Sons; 2011.
- [4] Boetter-Jensen L, McKeever SWS, Wintle AG. Optically Stimulated Luminescence Dosimetry. Amsterdam: Elsevier Science; 2003
- [5] Preusser F, Chithambo ML, Götte T, Martini M, Ramseyer K, Sendezera EJ, Susino GJ, Wintle A. Quartz as a natural luminescence dosimeter. Earth-Science Reviews. 2009; 97: 184-214
- [6] Murray AS, Roberts RG. Measurement of the equivalent dose in quartz using a regenerative-dose single-aliquot protocol. Radiation Measurements. 1998; 29: 503-515.
- [7] Kuhns CK, Larsen NA, McKeever SWS. Characteristics of LM-OSL from several different types of quartz. Radiation Measurements. 2000; 32:413-418.
- [8] Murray A, Wintle AG. The single aliquot regenerative dose protocol: potential for improvements in reliability. Radiation Measurements. 2003; 37: 377-381.