



## **AVALIAÇÃO DA CONCENTRAÇÃO DA MATRIX GELATINOSA DO DOSÍMETRO FRICKE GEL UTILIZANDO ÓXIDO DE POLIETILENO**

**Iasmin V. Nishibayaski<sup>1</sup>, Anna L. F. Silveira<sup>1</sup>, Luiz C. Meira-Belo<sup>1</sup>**

<sup>1</sup>Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear – CDTN / CNEN  
Campus da UFMG, Av. Pres. Antônio Carlos, 6627 – Pampulha, MG, 31270-901  
iasmin.nishibayaski@cdtn.br

**Palavras-Chave:** Dosimetria, Fricke, Polímero

### **RESUMO**

Os dosímetros tridimensionais possibilitam a determinação de grandezas dosimétricas que possuem uma distribuição volumétrica. Um exemplo é o Fricke Gel, dosímetro baseado na solução Fricke convencional que, por sua vez, é integrante de um sistema dosimétrico considerado padrão de referência em dosimetria química de acordo com as normas da ISO/ASTM (International Organization for Standardization / American Society for Testing and Materials). A determinação da dose absorvida no Fricke convencional é feita mensurando a variação das concentrações dos componentes químicos na solução, induzida pela incidência de radiação ionizante. O dosímetro tridimensional Fricke Gel é obtido adicionando-se uma matriz gelatinosa ao Fricke convencional, o que ocasiona uma restrição dos componentes químicos nesse dosímetro, possibilitando fazer um mapeamento da dose absorvida pelo gel. Matrizes gelatinosas constituídas por polímeros atualmente são muito estudadas e utilizadas por terem maior estabilidade em relação às gelatinas animais ou vegetais, bem estabelecidas na literatura. O óxido de polietileno é um polímero promissor como agente gelificante da solução Fricke por ter alta viscosidade, ser termoplástico e altamente solúvel em água. Neste trabalho foram analisadas as respostas dosimétricas do Fricke gelatinizado com o óxido de polietileno com diferentes concentrações. O objetivo desse estudo é estabelecer uma concentração otimizada de polímero que seja de fácil preparo, com menor custo e que forneça uma resposta dosimétrica adequada. Para isso, algumas propriedades físicas do gel foram avaliadas. Sua densidade foi determinada pelo método clássico e a opacidade do gel foi avaliada pela espectrofotometria por absorção molecular na região do visível. Propriedades mecânicas do material, como viscosidade e deformação, foram obtidas por reometria. Ao considerar fatores como a consistência, translucidez, facilidade de preparação e manuseio, a concentração de óxido de polietileno mais adequada para a aplicação como dosímetro tridimensional Fricke Gel foi a de 5 % m/V.

### **1. INTRODUÇÃO**

A dosimetria química refere-se à determinação de grandezas radiologicamente relevantes, como exposição, kerma e dose absorvida, através de mudanças químicas produzidas em um meio devido à irradiação [1]. A utilização de sistemas dessa natureza teve início com os filmes fotográficos e, posteriormente, com a solução Fricke, descrita por Fricke e Morse em 1927 [2]. O dosímetro Fricke é uma solução aquosa de ácido sulfúrico e sulfato ferroso amoniacal, e seu funcionamento é baseado na oxidação de íons ferrosos ( $\text{Fe}^{2+}$ ) em íons férricos ( $\text{Fe}^{3+}$ ). Esse processo se inicia com a radiólise da água, ou seja, com a quebra das ligações de hidrogênio das moléculas de  $\text{H}_2\text{O}$  presentes na solução Fricke quando há absorção de energia fornecida pela radiação ionizante. As espécies produzidas na radiólise da água reagem com os íons  $\text{Fe}^{2+}$  provindos do sulfato ferroso amoniacal da solução, transformando-os em  $\text{Fe}^{3+}$ . A produção de íons férricos está relacionada à energia incidente na solução, por unidade de massa, pela Eq. 1:

$$\Delta[\text{Fe}^{3+}] = \frac{D \cdot G(\text{Fe}^{3+}) \cdot 10^6}{N_A \cdot e} \quad (1)$$



Em que  $D$  é a dose absorvida pela solução Fricke,  $G(F^{3+})$  é o rendimento químico de íons férricos,  $\rho$  é a densidade da solução Fricke,  $N_A$  é o número de Avogadro e  $e$  é a carga do elétron. Como descrito pela Eq. 1, a concentração de  $Fe^{3+}$  depende linearmente da energia depositada pela radiação ionizante incidente na solução Fricke e, por isso, é possível inferir diretamente a dose absorvida pela determinação da produção de íons férricos [3].

Em 1984, Gore e colaboradores propuseram adicionar uma matriz gelatinosa na solução Fricke convencional, assim como sugeriram um método de leitura para esse novo dosímetro, baseado na técnica de ressonância magnética nuclear, para possibilitar o seu uso para a realização de dosimetria tridimensional [4]. Alguns tipos de gelatinas foram propostos como matriz para a solução Fricke, sendo a agarose e as gelatinas porcina e bovina as mais usualmente escolhidas [3]. A utilização de polímeros como agente gelificante está se tornando cada vez mais frequente; o mais comumente encontrado é o álcool polivinílico [3]. O óxido de polietileno (PEO – *Poly(Ethylene Oxide)*) é um candidato para ser utilizado como matriz gelatinosa da solução Fricke por apresentar características favoráveis para essa finalidade [5]. O objetivo geral deste artigo é estabelecer uma concentração otimizada de PEO para o dosímetro Fricke tridimensional que seja de fácil preparo, com menor custo e que forneça uma resposta dosimétrica adequada. Para a análise do gel, sua densidade, opacidade, viscosidade e deformação foram obtidas, para diferentes concentrações de polímero no volume do dosímetro.

### 1.1. Densidade

A solução Fricke, composta por 96,1 % de água, em peso, é amplamente utilizada como tecido equivalente em medições de calibração [6]. A equivalência de um material utilizado como dosímetro com o tecido humano é um fator vantajoso no processo de medição de grandezas dosimétricas pois, assim sendo, a aplicação de fatores de correção aos resultados obtidos é evitada, otimizando o processo de medição. Para avaliar a equivalência do PEO-Fricke com o tecido humano, características do gel como sua densidade foi obtida.

### 1.2. Opacidade

As radiações ionizantes possuem a capacidade de penetrar a matéria e interagir com seus átomos. Essas interações são caracterizadas pela transferência de energia, total ou parcial, dos fótons para o material, que será absorvida pelos seus átomos. Como consequência desse processo, o feixe de radiação sofrerá atenuação, ou seja, sua intensidade inicial  $I_0$  será reduzida a uma intensidade  $I$  de acordo com a Eq. 2.

$$I = I_0 e^{-\frac{\mu}{\rho}x} \quad (2)$$

Em que  $\mu$  é o coeficiente de atenuação linear,  $\rho$  é a densidade do material e  $x$  é a distância percorrida pelos fótons no material [8].

A atenuação de um feixe de radiação após ele percorrer certa distância do PEO-Fricke não irradiado terá influência no funcionamento do dosímetro principalmente quando algum método óptico for utilizado para sua leitura.

### 1.3. Deformação e viscosidade

Para a realização de dosimetria tridimensional, o material a ser utilizado como dosímetro deve apresentar uma estrutura que tenha pouca difusão de suas moléculas. Algumas propriedades mecânicas do material podem ser avaliadas para inferir a estabilidade estrutural do dosímetro



após sua irradiação. A deformação é definida como qualquer mudança nas dimensões ou geometria de um material quando ele é submetido a uma tensão externa. A manutenção do formato do dosímetro permite o mapeamento da dose absorvida por ele, ou seja, é possível identificar as regiões em que energia foi depositada no volume útil do material mesmo após certo tempo.

A avaliação da viscosidade de um fluido, que caracteriza sua resistência ao escoamento, é essencial pois, para a realização de uma leitura tridimensional, o dosímetro precisa manter sua estrutura após a irradiação.

## 2. METODOLOGIA

Para a análise do Fricke Gel gelatinizado com o PEO, géis com diferentes concentrações de polímero foram preparados. Inicialmente, a matriz gelatinosa foi preparada adicionando-se PEO em água tri-distilada nas seguintes concentrações: 1 % m/V, 2 % m/V, 3 % m/V, 4 % m/V, 5 % m/V, 6 % m/V e 7 % m/V. Para a dissolução do PEO, a mistura foi sujeita à agitação e aquecimento a 150 (5) °C por até 4 horas, a depender da concentração do polímero. Ao longo desse processo adicionou-se água tri-distilada tendo em vista a evaporação do líquido. Após a dissolução quase completa de PEO, a mistura foi submetida a um banho de ultrassom em temperatura ambiente com o intuito de eliminar bolhas de ar geradas com a agitação. Por último, uma solução Fricke com 1 mM de sulfato ferroso amoniacal, 0,4 M de ácido sulfúrico e 1 mM de cloreto de sódio foi preparada e, logo em seguida, foi adicionada na matriz gelatinosa proporção de 75 % de matriz e 25 % de solução. O sistema foi agitado até a sua homogeneização e o PEO-Fricke foi mantido na geladeira para endurecimento por 24 horas.

### 2.1. Densidade

A densidade do PEO-Fricke com diferentes concentrações foi obtida pela medição da massa e volume do gel e, posteriormente, pelo cálculo da razão entre essas duas quantidades. Alíquotas dos géis de diferentes concentrações foram colocadas em cubetas de polimetilmetacrilato de forma a completar totalmente seu volume útil. As dimensões da parte interna das cubetas foram coletadas com um paquímetro para o cálculo do volume dos géis. As massas dos géis foram medidas em uma balança analítica, da Mettler Toledo. A temperatura no momento da aquisição dos dados, fator de influência na densidade, foi de 25 (1) °C. Variações na preparação do PEO-Fricke podem interferir no valor da densidade de um material e, por isso, uma incerteza do tipo B foi atribuída ao valor calculado de densidade.

### 2.2. Opacidade

A atenuação de um feixe de luz pelo PEO-Fricke não irradiado foi analisada pela espectrofotometria por absorção molecular na região do visível. Nessa técnica, a absorbância de um feixe de luz pelo gel é obtida após esse feixe percorrer certa espessura da amostra não irradiada. Foi utilizado um espectrofotômetro modelo UV-mini 1240, da Shimadzu, que realiza leituras na faixa de comprimento de onda no ultravioleta e no visível. A faixa de comprimento de onda lida nos ensaios desse trabalho variou entre 200 nm e 900 nm. Esse equipamento está localizado no Laboratório de Dosimetria Luminescente, no Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear (CDTN).

### 2.3. Deformação e viscosidade

As propriedades mecânicas do PEO-Fricke foram obtidas através de uma análise reológica. A reometria é uma técnica de medição bem estabelecida em que o comportamento mecânico do



material é avaliado quando ele é submetido a forças externas. Para a realização dos ensaios deste estudo, um reômetro rotacional, modelo DHR 3 da *TA Instruments*, instalado no Laboratório de Caracterização MGgrafeno (CDTN), foi utilizado. Neste reômetro do tipo rotacional, a amostra é colocada entre duas superfícies e aplica-se uma rotação em uma delas. Com o auxílio de transdutores, as medições de interesse são realizadas, como fluxo, viscosidade e tensão superficial. A geometria utilizada para as análises em questão foi a cone-placa, isto é, foi utilizada uma base lisa Peltier, com 50 mm de diâmetro, e uma placa em cone com 2° de ângulo. O espaçamento entre elas, para todas as concentrações de PEO-Fricke, foi de 1,0 mm. Os géis foram analisados no modo oscilatório a uma frequência variando de 0 Hz até 10<sup>3</sup> Hz, a uma temperatura constante de 20 (1) °C.

### 3. RESULTADOS

#### 3.1. Densidade

Os valores obtidos de massa, volume e densidade para as diferentes concentrações de PEO-Fricke estão apresentados na Tab. 1.

Tab. 1. Densidade do PEO-Fricke com diferentes concentrações.

<b>Concentração (% m/V)</b>	<b>Massa PEO-Fricke (g)</b>	<b>Volume cubeta (cm<sup>-3</sup>)</b>	<b>Densidade (g · cm<sup>-3</sup>)</b>
1	4,1314 (9)	3,50 (2)	1,180 (7)
2	4,2938 (9)	3,50 (2)	1,237 (7)
3	4,4927 (9)	3,50 (2)	1,284 (7)
4	4,4971 (9)	3,50 (2)	1,285 (7)
5	4,6407 (9)	3,50 (2)	1,326 (8)
6	4,7143 (9)	3,50 (2)	1,347 (7)
7	4,9868 (9)	3,50 (2)	1,425 (8)

Ao analisar a densidade dos géis, o PEO-Fricke com concentração de 1 % m/V tem o valor de densidade mais próxima com a densidade da água e, assim sendo, tem um comportamento equivalente com o tecido humano. Esse resultado era esperado uma vez que a porcentagem de água tri-destilada nesse gel é a maior se comparado com os géis de outras concentrações. Entretanto, os PEO-Frickes com baixas concentrações de polímero não são viáveis devido à sua pouca gelatinização. Os valores de densidade aumentam de acordo com o aumento da concentração dos PEO-Frickes, uma vez que há um aumento da massa de PEO nesses casos.

#### 3.2. Opacidade

Os espectros de absorção das diferentes concentrações de PEO-Fricke não irradiado estão apresentadas na Fig. 1.

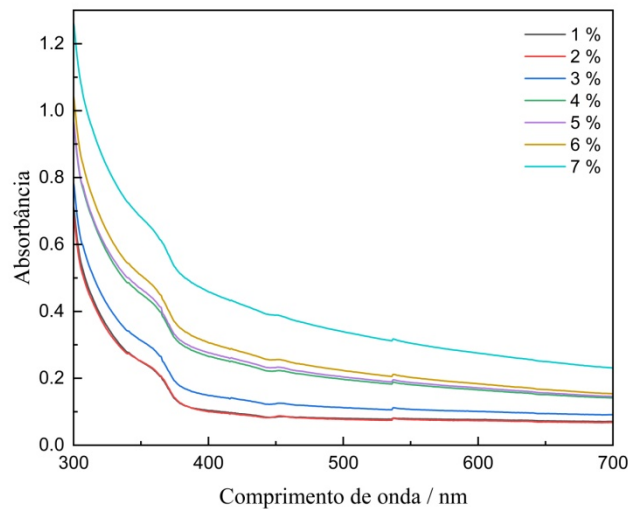


Fig. 1. Espectros de absorção do dosímetro PEO-Fricke (não irradiado).

Os PEO-Fricques que tiveram menor absorbância e, conseqüentemente, provocaram menor atenuação do feixe de luz incidente foram aqueles com concentração de 1 % m/V e 2 % m/V. O gel que relativamente atenua mais a luz é o que possui concentração de 7 % m/V de PEO. Isso era esperado uma vez que, segundo a Lei de Beer, expressa pela Eq. 3, a absorbância,  $A$ , é diretamente proporcional à concentração,  $C$ , do analito da amostra.

$$A = \epsilon bC \quad (3)$$

Em que  $\epsilon$  é a absorvidade molar e  $b$  é o caminho óptico.

Espera-se que quanto menor a atenuação da luz pelo PEO-Fricke não irradiado, maior o contraste de tonalidade do dosímetro após sua irradiação e, assim sendo, a obtenção da dose absorvida é facilitada. Os géis com maiores concentrações, apesar de apresentarem maior consistência, atenuam consideravelmente a luz e, conseqüentemente, informações relevantes devidas à irradiação são ocultadas, diminuindo a sensibilidade do dosímetro.

### 3.3. Deformação e viscosidade

A Fig.2 apresenta a tensão de cisalhamento medida nas diferentes concentrações de PEO-Fricke em função da taxa de cisalhamento a que foram submetidos.

Essa variação não-proporcional da tensão de cisalhamento com a taxa de deformação evidencia um comportamento não-newtoniano do PEO-Fricke. Os géis com menores concentrações de PEO, com 1 % m/V e 2 % m/V, apresentam tal variação não tão evidente, uma vez que é grande a proporção de água nessas misturas, um fluido tipicamente newtoniano. Em um fluido newtoniano, à medida que se aumenta a taxa de deformação a que o material é submetido, sua tensão de cisalhamento aumenta proporcionalmente à taxa de deformação. Assim sendo, a viscosidade desse fluido permanece constante com o tempo [8].

A deformação do PEO-Fricke é um fator de escolha da concentração de polímero predominante, uma vez que o propósito da utilização desse gel é fazer um mapeamento tridimensional da dose absorvida. Por isso, as concentrações de PEO-Fricke que apresentam maiores tensões de cisalhamento, isto é, menores deformações, como as de 5 % m/V, 6 % m/V e 7 % m/V, são as mais adequadas.

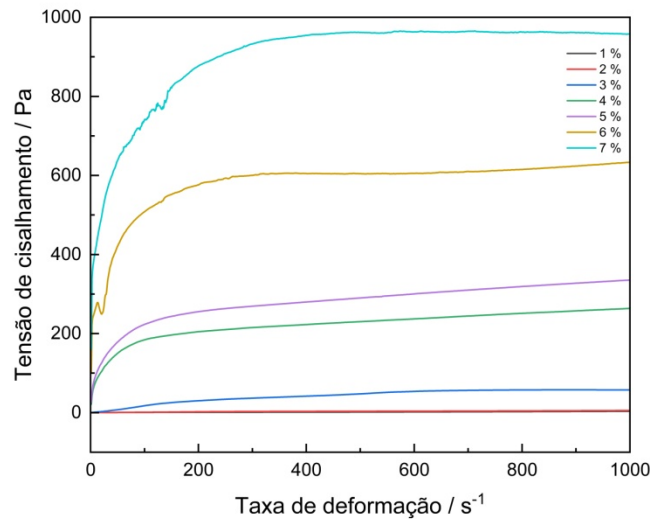


Fig. 2. Deformação do dosímetro PEO-Frick com diferentes concentrações.

A Fig.3 apresenta a viscosidade das diferentes concentrações de PEO-Fricke em função da taxa de cisalhamento fornecida.

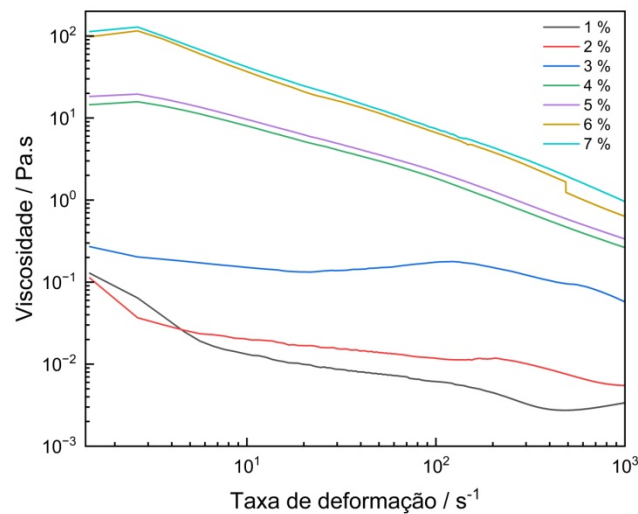


Fig. 3. Viscosidade do dosímetro PEO-Frick com diferentes concentrações.

É possível perceber, para todas as concentrações de PEO-Fricke analisadas, uma diminuição da viscosidade do gel a medida que a taxa de deformação aumenta com o tempo. Quando um fluido é submetido a uma tensão de cisalhamento, os emaranhamentos formados pelas cadeias poliméricas são desfeitos e, como consequência, a resistência do fluido ao escoamento diminui. Esse fenômeno é característico de materiais pseudoplásticos. Uma vez que o PEO-Fricke não será submetido a tensões externas durante sua utilização, a pseudoplasticidade apresentada por ele não afetará o funcionamento adequado do dosímetro.

A medida da resistência de um fluido pode ser medida pela viscosidade relativa à taxa de deformação igual zero (viscosidade *zero shear*,  $\eta_0$ ). O valor de  $\eta_0$  está relacionada ao número de



emaranhamentos intermoleculares presente no gel não submetido a tensões externas. Considerando esse parâmetro, o PEO-Fricke com maior resistência é o feito com a concentração de 7 % m/V. As concentrações de Fricke feitas com 1 % m/V e 2 % m/V de polímero apresentaram as menores viscosidades dentre as concentrações produzidas. A viscosidade dos PEO-Fricques com 4 % m/V e 5 % m/V de concentração ficaram próximas entre si, assim como as concentrações com 6 % m/V e 7 % m/V. Os PEO-Fricques com maiores valores de viscosidade são mais interessantes para a utilização como dosímetro tridimensional pois a difusão de íons  $Fe^{3+}$  produzidos após a irradiação, nesses casos, é relativamente menor, possibilitando a determinação da localização espacial de incidência do campo de radiação no material.

#### 4. CONCLUSÃO

Neste estudo, algumas características do PEO-Fricke, dosímetro baseado na solução Fricke e gelatinizado com o óxido de polietileno, foram avaliadas com o objetivo de estabelecer uma concentração otimizada deste polímero na composição do gel.

Ao considerar as propriedades mecânicas, como deformação e viscosidade, as concentrações de PEO-Fricke com 6 % m/V e 7 % m/V de polímero apresentaram um comportamento semelhante entre si. Esse comportamento, por sua vez, mostra a possibilidade da utilização do gel com essas concentrações como dosímetro tridimensional. Ao analisar a opacidade do PEO-Fricke com essas concentrações, ocorre considerável atenuação do feixe de luz na concentração de 7 % m/V, o que pode dificultar a leitura óptica do dosímetro após sua irradiação. O PEO-Fricke com concentração de 6 % m/V de polímero apresenta menor opacidade, porém há considerável dificuldade de preparo dessa concentração. Nesse caso, a solução demandou um longo tempo de agitação e aquecimento, o que gerou grande quantidade de bolhas de ar, causando uma não homogeneidade no gel. O PEO-Fricke com concentração de 5 % m/V, apesar de apresentar deformação e viscosidade abaixo dos geis com maiores concentrações, apresenta relativamente menor opacidade e maior facilidade de preparo e manuseio. Por isso, ao considerar os fatores, como a consistência, translucidez e facilidade de preparação e manuseio, a concentração de PEO mais otimizada e que é adequada para a aplicação como dosímetro tridimensional foi a de 5 % m/V.

#### AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem ao CDTN/CNEN pela estrutura que possibilitou a realização deste estudo, e aos órgãos de fomento, CAPES, CNPq, INCT e FAPEMIG pelo apoio financeiro.

#### REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] F. H. Attix, Introduction to Radiological Physics and Radiation Dosimetry, 1<sup>a</sup> ed., Weinheim, Ed. Wiley-VCH (2004).
- [2] H. Fricke e S. Morse, The action of X-rays on ferrous sulphate solutions, *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, Vol. 7:41, pp. 129-141 (1929).
- [3] L. J. Schreiner, Review of Fricke gel dosimeters, *Journal of Physics: Conference Series*, Vol. 3, pp. 9-21 (2004).
- [4] J. C. Gore *et al.*, Measurement of radiation dose distributions by nuclear magnetic resonance (NMR) imaging, *Physics in Medicine and Biology*, Vol. 29, pp. 1189-1197 (1984).





**Semana Nacional de Engenharia Nuclear e da Energia e Ciências das Radiações – VII SENCIR**  
Belo Horizonte, 12 a 14 de novembro de 2024

[5] B. C. R. Araujo *et al.*, A new formulation for polymer fricke dosimeter and an innovative application of neural network to study dose profile from spin-echo NMR data, *Radiation Physics and Chemistry*, Vol. 184, pp. 1-9 (2021).

[6] International Commission On Radiation Units And Measurements, Dosimetry Systems for Use in Radiation Processing, *ICRU Report 80*, Vol.8, n.2 (2008).

[7] J. E. Turner, Atoms, Radiation, and Radiation Protection, 3<sup>a</sup> ed., Oak Ridge, Weinheim: Wiley-VCH (2007).

[8] S. Middleman, Fundamentals of Polymer Processing, 1<sup>a</sup> ed., New York, McGraw-Hill, Inc. (1977).