AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

Desenvolvimento de um Calorímetro com Núcleo de Água e de uma Unidade de
Tratamento de Líquidos para Dosimetria de Radiação Gama

Felipe Belonsi de Cintra

Tese apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Doutor em Ciências na Área
de Tecnologia Nuclear - Aplicações

Orientadora:

Profa. Dra. Linda V. E. Caldas

São Paulo
2016

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Autarquia associada à Universidade de São Paulo

Desenvolvimento de um Calorímetro com Núcleo de Água e de uma Unidade de
Tratamento de Líquidos para Dosimetria de Radiação Gama

Felipe Belonsi de Cintra

Tese apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Doutor em Ciências na Área
de Tecnologia Nuclear - Aplicações

Orientadora:
Profa. Dra. Linda V. E. Caldas

Versão Corrigida
Versão Original disponível no IPEN

São Paulo
2016

*Dedico este trabalho à
minha família e a todos que
me apoiaram nessa
caminhada.*

Agradecimentos Especiais

Aos técnicos do laboratório, Renato Giordano e Aldo de Oliveira, da Gerência de Metrologia das Radiações, pelas inúmeras contribuições, peças, sugestões e consertos que facilitaram enormemente meu trabalho.

Ao CNPq pelo apoio financeiro durante todo o período do Doutorado, essencial para a condução desta tese com tranquilidade.

À Dra. Linda Caldas pela paciência, atenção e orientação na condução deste projeto, pelas lições e conselhos que contribuíram não só com meu crescimento profissional como pessoal.

Aos meus amigos do Centro de Engenharia Nuclear: Felipe Massicano, Rodrigo Viana, Pedro Nishiyama, Talita Coelho, Vinícios Castro, Rafael Possani, Paula Antunes, Tássio Cavalieri, Giuliana Gonçalves, César Loureiro e Gabriel Fonseca. Grato pelos anos de amizade, companheirismo e aprendizado que fizeram desta passagem pelo IPEN muito divertida, produtiva e agradável.

Aos meus amigos da GMR: Daniela Groppo, Tallyson Alvarenga, Nathália Costa, Eduardo Correa, Lilian Toshie, Maira Yoshizumi, Patrícia Antônio, Cristiane Honda, Christiane Cavinato, Maysa Castro, Ivon Polo, Glauco Veneziani e Natália Fiorini. Grato pelos bons momentos de convivência, conversas, ideias, sugestões e apoio.

Ao pessoal do CTR: Elisabeth Somesari, Helio Paes e Carlos Souza. Obrigado pela enorme boa vontade, paciência e atenção.

Aos meus amigos de apartamento Ariane Tada, Liedson Carneiro e Adriane Calaboni pela convivência pacífica, divertida e agradável que permitiu que nossa pequena república fosse um lar.

À Carolina Bernardo, meu amor, pelo carinho, compreensão e renúncia em tantos momentos com tanta paciência, fazendo deste período tão intenso, os melhores anos da minha vida.

À minha irmã Carolina, aos meus Pais Francisco e Marcia, tios, avós e primos que precisaram conviver com minha ausência por alguns anos. Obrigado pela enorme compreensão que me fez sentir todo o carinho familiar, mesmo de longe.

A todas as pessoas, que de alguma forma tenham contribuído com meu trabalho durante esses anos e que eu possa ter esquecido. Contribuição na forma de ajuda, conselhos, amizade, companheirismo, risadas, apoio, aprendizados e trocas que permitiram que o IPEN se tornasse uma segunda casa.

Obrigado a todos!

Sumário

Resumo.....	3
Abstract	4
Capítulo 1: Introdução	5
Capítulo 2: Fundamentos teóricos.....	9
2.1 A radiação ionizante	9
2.2 Interação de fótons com a matéria	12
2.3 Coeficiente de atenuação total para compostos e misturas	19
2.4 Dosimetria das radiações ionizantes	20
2.4.1 Principais grandezas dosimétricas e suas unidades.....	21
2.4.1.1 Kerma (K)	22
2.4.1.2 Dose absorvida (D).....	24
2.4.2 Fundamentos de dosimetria e dosímetros	26
2.4.3 Tipos de detectores de radiação	27
2.4.3.1 Câmaras de ionização	27
2.4.3.2 Dosímetros luminescentes	29
2.4.3.3 Dosímetros fotográficos (filmes)	29
2.4.3.4 Dosímetros químicos	30
2.4.3.5 Semicondutores.....	31
2.4.3.6 Calorímetros	32
2.4.4 Calibração de dosímetros.....	34
2.5 Calorimetria para fins dosimétricos	35
2.5.1 Definição	36
2.5.2 Tipos e aplicações de calorímetros	36
2.5.2.1 Adiabático.....	36
2.5.2.2 Isotérmico.....	37

2.5.2.3	Por fluxo de calor	37
2.5.2.4	Diferencial	38
2.5.3	Calibração de um calorímetro	39
2.5.4	Sensores de temperatura	40
2.5.4.1	Termopares	40
2.5.4.2	Termistores.....	41
2.5.5	Eletrônica associada.....	42
2.5.6	Vantagens e limitações dos calorímetros	42
2.6	Solubilidade de gases na água.....	44
Capítulo 3: Revisão Bibliográfica.....		46
Capítulo 4: Materiais e Métodos		50
4.1	Escolha do calorímetro ideal	51
4.2	Sistemas de radiação ionizante	52
4.2.1	Gerência de Metrologia das Radiações (GMR).....	52
4.2.2	Centro de Tecnologia das Radiações (CTR)	52
4.3	Projeto dos componentes	53
4.4	Construção do calorímetro	54
Capítulo 5: Resultados e Discussão.....		58
5.1	Etapa 1: Projeto dos componentes	58
5.2	Etapa 2: Construção da Unidade de Tratamento de Água	67
5.3	Etapa 3: Irradiação e testes de uso	86
5.3.1	Fontes da GMR.....	86
5.3.2	Fonte panorâmica do CTR	95
Capítulo 6: Conclusão.....		101
Capítulo 7: Referências Bibliográficas		104

Desenvolvimento de um Calorímetro com Núcleo de Água e de uma Unidade de Tratamento de Líquidos para Dosimetria de Radiação Gama

Felipe Belonsi de Cintra

Resumo

Este trabalho consiste no desenvolvimento de um detector composto por um calorímetro com núcleo de água para dosimetria de feixes de ^{60}Co e ^{137}Cs com média intensidade. Além do calorímetro, foi também dimensionada a instrumentação, a metodologia de calibração e a medição de temperatura. O trabalho foi dividido em 4 etapas distintas: escolha do melhor projeto como base para desenvolvimento do calorímetro, dimensionamento de parâmetros e ajuste fino do projeto, construção e calibração. Durante o desenvolvimento deste trabalho foi construída uma Unidade de Tratamento de Água que permite a produção da água que o calorímetro emprega. Em seguida foi construído o calorímetro em si com os conceitos das etapas anteriores. O equipamento foi testado tanto nas instalações da GMR quanto no CTR do IPEN, obtendo taxas de dose na água com fontes de ^{137}Cs e ^{60}Co com diversas atividades (3,3 TBq, 15,54 TBq e 7 TBq) e em algumas distâncias. Foram obtidas taxas de dose que variavam de 2 mGy/s até 15 mGy/s, dependendo do tipo de fonte e SDD escolhida. O projeto contou com simulações de códigos como MCNP5 e FLUENT 14 e foram essenciais na construção do equipamento. O objetivo deste trabalho foi aprimorar a infraestrutura do LCI, desenvolvendo um detector que deverá aumentar a gama dos serviços prestados pelo LCI com um tipo de medição dosimétrica ainda inexistente no país.

Development of a Water Calorimeter and a Liquid Treatment Unit for Gamma Radiation Dosimetry

Felipe Belonsi de Cintra

Abstract

This work aims to develop a radiation detector composed by a water calorimeter for beam dosimetry of ^{60}Co and ^{137}Cs gamma radiation with medium intensity. Besides the calorimeter itself, all the instrumentation, methodology, calibration and testing protocols were established. This work was divided into 4 parts: the choice of the best design; simulation and setting of the ideal operation parameters; adaptation of the project; construction and calibration. During the development of this work a water treatment unit was built which allows the production of distilled water for the calorimeter. Then the calorimeter itself was built with the concepts from the previous steps. The equipment has been tested both in the facilities of GMR as the CTR at IPEN, obtaining dose rates (from 2 mGy/s up to 15 mGy/s) in water for ^{137}Cs and ^{60}Co sources in some activities (3,3 TBq, 15,54 TBq e 7 TBq) and distances. The MCNP5 and FLUENT 14 have been used and proved essential in the development of the prototype. The main goal was to improve the LCI infrastructure with a new radiation detector that will increase the calibration laboratory service range with a still absent kind of dosimetric measurement in Brazil.

Capítulo 1: Introdução

Com o aumento do enfoque em pesquisas envolvendo a radiação, sem ainda o completo entendimento dos efeitos biológicos que ela poderia induzir, foram observados alguns efeitos colaterais danosos em pessoas que manipulavam materiais radioativos. Com as evidências cada vez maiores de que a radiação ionizante poderia representar um perigo à saúde humana, ficou clara a importância de se mensurar de maneira cada vez mais precisa de como e onde a energia poderia interagir com a matéria ao redor, seja ela biológica ou não. A ciência que estuda esta classe de problemas é chamada de dosimetria das radiações ionizantes [ATTIX, 2004; GREENING, 1985].

Após os primeiros incidentes envolvendo pesquisadores ou assistentes, surgiram então as primeiras orientações de proteção radiológica. As formas seguras de se trabalhar com a radiação ionizante ficaram cada vez mais importantes com o progressivo aumento da energia das radiações e quantidades de materiais radioativos envolvidos nos experimentos. Entender como e onde a energia podia ser absorvida, sendo depositada ou transmitida pelo meio material, foi considerado vital não só do ponto de vista acadêmico como também da segurança pessoal.

Portanto a dosimetria das radiações ionizantes andou em conjunto com o desenvolvimento tanto científico como tecnológico da área nuclear. As orientações de como trabalhar com a radiação ionizante foram agrupadas em protocolos como o *International Commission on Radiation Units* (ICRU) [ICRU, 2016] e *International Commission of Radiation Protection* (ICRP) [ICRP, 2016], ambos em consonância com a Agência

Internacional de Energia Atômica (IAEA) [IAEA, 2016]. Estes protocolos são periodicamente revistos pela comunidade científica internacional.

No Brasil, as atividades radiológicas e nucleares estão regulamentadas pela Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN) [CNEN, 2016a]. Fundada em outubro de 1956, tem a função de licenciar, fiscalizar e orientar o uso seguro e pacífico da energia nuclear. Atualmente a CNEN conta com 14 unidades em 9 estados brasileiros [CNEN, 2016b].

O emprego da tecnologia nuclear hoje é extremamente amplo e pode ser concentrado em quatro grandes aplicações: Medicina, Indústria, Pesquisa e Energia. A esterilização de alimentos e produtos de higiene, catalisação de reações químicas em gemas e plásticos, produção de radiofármacos, determinação de microfissuras em dutos e estruturas metálicas, produção de energia, caracterização de elementos em amostras e diversas técnicas de diagnóstico e tratamento em praticamente todas as áreas da medicina são algumas das inúmeras aplicações que estão disponíveis à sociedade [HNT, 1962].

Para garantir a segurança e o bom funcionamento das técnicas nucleares são fundamentais laboratórios metrológicos que permitam calibrar e caracterizar as mais variadas fontes e equipamentos que empregam radiações ionizantes. Os principais laboratórios metrológicos padrões primários são o *Bureau International des Poids et Mesures* [BIPM, 2016] na França, o *National Physical Laboratory* [NPL, 2016] do Reino Unido, o *National Institute of Standards and Technology* [NIST, 2016] dos EUA e o *Physikalisch-Technische Bundesanstalt* [PTB, 2016] na Alemanha. Os laboratórios de calibração são denominados padrões secundários quando possuem seus equipamentos calibrados nos laboratórios padrões primários. No Brasil, alguns laboratórios associados à CNEN são

responsáveis pelas emissões dos certificados que atestam que detectores de radiação estejam em conformidade com os padrões de qualidade estabelecidos pelos protocolos da IAEA. Há ainda outros laboratórios de calibração, como por exemplo, os da Universidade Federal de Pernambuco e da Universidade Estadual do Rio de Janeiro, além da Metrobras, do grupo MRA em Ribeirão Preto, São Paulo e o laboratório de calibração do Instituto Federal da Bahia, em Salvador (LABPROSAUD). Na América Central e na América do Sul não existem laboratórios padrões primários na área de metrologia das radiações.

O Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes (LNMRI), situado no Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD/CNEN), Rio de Janeiro, participa da rede de laboratórios padrões secundários da Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA) desde 1979, junto a outras 79 instituições da rede SSDL (*Secondary Standards Dosimetry Laboratories*). Mesmo como referência nacional na área de dosimetria das radiações, com representação no comitê consultivo da IAEA e até mesmo com alguns equipamentos do tipo padrão primário, ainda conta com poucos equipamentos padrões primários, comparando com a infraestrutura de laboratórios como o BIPM, por exemplo [IRD, 2016].

No Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), o Laboratório de Calibração de Instrumentos (LCI) da Gerência de Metrologia das Radiações [GMR, 2016] constitui um dos principais laboratórios brasileiros, responsáveis pela calibração de equipamentos medidores de radiação ionizante, em especial de fótons e elétrons, e futuramente de nêutrons. O desenvolvimento de sistemas absolutos de medição de doses absorvidas na água é um dos caminhos para a obtenção de padrões primários para dosimetria de feixes de radiação gama e,

portanto, justificado, porque aumenta a infraestrutura e a qualidade de um laboratório de dosimetria de radiações ionizantes.

O presente trabalho tem como objetivo aprimorar a infraestrutura do LCI, implantando um sistema de detecção de radiação com um calorímetro com um núcleo de água para a dosimetria de feixes de radiação gama de fontes de ^{60}Co e ^{137}Cs . Ele permitirá aumentar a gama dos serviços prestados pelo LCI com um tipo de medição dosimétrica ainda inexistente no país. Com o aperfeiçoamento do primeiro protótipo, será possível implantar um sistema padrão primário para dosimetria de radiação gama diferente das conhecidas câmaras de ionização de ar livre.

Capítulo 2: Fundamentos teóricos

2.1 A radiação ionizante

A radiação ionizante pode ser definida como *quanta* de energia com ou sem massa de repouso, oriundas de transições atômicas ou nucleares. Esses “pacotes” de energia têm a capacidade de excitar e ionizar átomos ao longo do seu caminho. Deste modo, estão inclusos desde radiação eletromagnética com comprimentos de onda menores que 320nm (UV) até raios X, radiação gama (γ), partículas beta (β) e alfa (α), nêutrons, e fragmentos de fissão, entre outros. A grande variedade da natureza da radiação torna complexos seus efeitos físicos ou químicos em qualquer material, sejam biológicos ou não, e é graças a essa grande variedade de efeitos que torna a tecnologia nuclear tão útil e versátil em tantas aplicações diferentes atualmente.

Como o efeito nos materiais devido à incidência da radiação ionizante é função do tipo de partícula incidente, de sua energia, da taxa de incidência e do tipo de alvo, foi necessário desenvolver uma ciência que estudasse em detalhes como a radiação ionizante interage com a matéria, com uma abordagem tanto quantitativa como qualitativa. A esta ciência é dado o nome de dosimetria. Os tipos mais importantes de radiação ionizante, daqui por diante referida somente como “radiação”, são os seguintes:

- Radiação gama (γ) – Radiação eletromagnética (fótons) emitida em transições do núcleo ou em reações de aniquilação matéria/antimatéria. Tem por característica não possuir carga elétrica, spin e nem massa de repouso. Sua energia é dada por:

$$E_{\gamma} = h\nu = \frac{hc}{\lambda} = \frac{12,398}{\lambda} \quad (keV) \quad (2.1)$$

onde c é a velocidade da luz no vácuo ($2,998 \times 10^8 \text{ m/s}$), h é constante de Planck ($6,626 \times 10^{-34} \text{ J s}$), ν é a frequência do fóton, λ é o comprimento de onda da partícula.

- Raios X – Assim como a radiação gama, os raios X são fótons, mas neste caso são provenientes de transições atômicas (raios X característicos) ou de cargas elétricas em movimento acelerado (*Bremsstrahlung*). Podem ser emitidos num espectro contínuo ou discreto. Normalmente são divididos entre raios X “moles” produzidos com tensões entre 0,1 e 20kV, raios X de diagnóstico com tensões entre 20 e 120kV, ortovoltáicos com tensões entre 120-300kV, raios X intermediários com tensões entre 300kV e 1MV e por fim os raios X de megavoltagem com tensões acima de 1MV.

Como informado anteriormente, tanto a radiação gama como os raios X são fótons, e compartilham, portanto, o comportamento de interagir na presença de campos eletromagnéticos dos átomos do meio material e gerar novos tipos de partículas, também chamadas de

partículas secundárias. Estas partículas são provenientes do rearranjo nos níveis de energia do núcleo ou átomo devido à perturbação causada pelo fóton incidente. As principais partículas geradas são elétrons rápidos, elétrons Auger, pósitrons e outros fótons (raios X característicos). As interações mais significativas quando a energia cinética do fóton é alta, como nas reações fotonucleares, serão desprezadas.

Como os fótons são responsáveis por desencadear a emissão de partículas carregadas pelo meio material, são chamados de radiação *indiretamente* ionizante.

Continuando com a listagem dos principais tipos de radiação ionizante, pode-se citar: elétrons rápidos, partículas carregadas pesadas e os nêutrons.

Assim como os fótons, os nêutrons são classificados como radiação indiretamente ionizante, porque são as partículas secundárias que eles produzem que são responsáveis por ionizar o meio e depositar energia. Apenas as partículas carregadas eletricamente, como elétrons, pósitrons e as partículas carregadas pesadas, são chamados de radiações diretamente ionizantes.

Como o escopo deste trabalho está diretamente associado aos fótons, e mais especificamente à radiação gama originada por fontes de cézio e cobalto, daqui em diante os fótons receberão naturalmente uma atenção maior.

2.2 Modos de interação dos fótons com a matéria

Entre os principais fenômenos de interação dos fótons com a matéria, pode-se destacar o efeito fotoelétrico, o espalhamento coerente (Rayleigh), o espalhamento incoerente (Compton) e a produção de pares. A probabilidade de ocorrência de cada um destes efeitos é função em especial do número atômico dos átomos que compõem o alvo e da energia do fóton que está transitando. A Figura 2.1 ilustra onde cada efeito é predominante (considerando os intervalos de energia da radiação incidente e o número atômico do alvo).

Figura 2.1. Efeito predominante segundo o número atômico e energia do fóton incidente [OKUNO e YOSHIMURA, 2010].

O efeito fotoelétrico é o fenômeno predominante para fótons de baixas energias em meios leves (baixo número atômico). Basicamente o fóton interage com um elétron da eletrosfera de um átomo do meio, mais

especificamente das camadas mais internas, onde a seção de choque é maior, sendo completamente absorvido. Como resultado, o elétron é ejetado da eletrosfera com energia cinética (T) dada pela diferença entre a energia do fóton incidente ($h\nu$) e a energia de ligação E_b associada à camada onde ocorreu a interação. A energia cinética de recuo do átomo (T_a), em geral é desprezada, embora seu momento linear não seja. Tem-se então:

$$T = h\nu - E_b - T_a = h\nu - E_b \quad (2.2)$$

A Figura 2.2 ilustra resumidamente este fenômeno.

Figura 2.2. Cinemática do efeito fotoelétrico [ATTIX, 2004]. O termo “Mom” é utilizado para designar o momento linear das partículas.

No efeito Compton, um fóton com energia $h\nu$ e momento $h\nu/c$ atinge um elétron na eletrosfera de um átomo alvo. Este elétron é considerado em repouso e sem energia de ligação; o fóton é então (diferentemente do efeito fotoelétrico onde ele é completamente

absorvido) espalhado com energia $h\nu'$, momento $h\nu'/c$ e ângulo de deflexão φ . Quanto ao elétron, ocorre também sua ejeção da eletrosfera com energia T , momento p e ângulo de espalhamento θ . A Figura 2.3 ilustra este fenômeno.

Figura 2.3. Cinemática do efeito Compton [ATTIX, 2004]. O termo “Mom” é utilizado para designar o momento linear das partículas.

Do ponto de vista da energia, que se conserva, tem-se

$$T = h\nu - h\nu' \quad (2.3)$$

Quanto ao momento, normalmente é feita a decomposição para a direção de incidência do fóton e para a direção perpendicular; sendo assim, o momento é representado, respectivamente, como:

$$h\nu = h\nu' \cos \varphi + pc \sin \theta \quad (2.4)$$

e

$$h\nu' = \text{sen } \varphi = pc \text{ sen } \theta \quad (2.5)$$

Expressando $h\nu$ em termos da energia cinética, utilizando as relações relativísticas de massa, momento e energia, ou seja, $pc = \sqrt{T(T + 2m_0c^2)}$, pode-se reescrever as Equações (6),(7) e (8) escolhendo os três parâmetros de maior interesse. As mais convenientes para a maioria das aplicações usuais são:

$$h\nu' = \frac{h\nu}{1 + (h\nu/m_0c^2)(1 - \cos \varphi)} \quad (2.6)$$

$$T = h\nu - h\nu' \quad (2.7)$$

$$\cot \theta = \left(1 + \frac{h\nu}{m_0c^2}\right) \tan\left(\frac{\varphi}{2}\right) \quad (2.8)$$

As energias estão expressas em MeV e $m_0c^2 = 0,511\text{MeV}$. Estas expressões são válidas especialmente para fótons incidentes com energias e para ângulos reduzidos; para energias maiores ($>0,01\text{MeV}$) a teoria começa a falhar, já que neste caso o espalhamento começa a deixar de ser puramente “elástico”; nestes casos, fica mais evidente um aprimoramento deste modelo, o que foge do escopo deste trabalho. Vale ressaltar que esta análise é apenas do ponto de vista da cinemática do evento e não diz absolutamente nada da probabilidade de ocorrência do efeito Compton. É aí que entra o estudo da seção de choque.

No caso do efeito Rayleigh, o sistema se comporta puramente como elástico, ou seja, o fóton incidente não perde sua energia cinética e o

átomo recua somente o necessário para conservar o momento. Quanto ao fóton, seu ângulo de deflexão é pequeno e, portanto sua detecção é mais complicada, porque facilmente se confunde com o feixe incidente que não interagiu. Como não há transferência de energia, este efeito não contribui para o kerma ou dose absorvida já que não há a presença de partículas carregadas, nem mesmo os fenômenos de excitação ou ionização.

Quanto ao ângulo de espalhamento do fóton, há uma dependência tanto da energia do fóton incidente $h\nu$, como do número atômico do meio onde o feixe incide (Z). Cerca de 2/3 dos fótons são espalhados para ângulos menores ou iguais aos tabelados por Fano (1953), como se pode observar na Tabela 2.1.

Tabela 2.1. Ângulo máximo de espalhamento Rayleigh para fótons de diversas energias e alvos de alumínio e chumbo [FANO, 1953].

Material do alvo	Energia (MeV)		
	0,1	1	10
Al	15°	2°	0,5°
Pb	30°	4°	1,0°

Pode-se notar que para energias de incidência menores, o ângulo de espalhamento tende a aumentar, tornando este efeito mais significativo.

Segundo Hubbell (1969), os valores da fração do coeficiente mássico de atenuação do efeito Rayleigh em relação ao coeficiente mássico total, incluindo todas as possíveis interações do fóton com o meio material, estão agrupados na Tabela 2.2.

Tabela 2.2. Razões do coeficiente de atenuação total que correspondem à seção de choque de espalhamento Rayleigh [HUBBELL, 1969].

Elemento	Energia (MeV)		
	0,01	0,1	1
C	0,07	0,02	0
Cu	0,006	0,08	0,007
Pb	0,03	0,03	0,03

Como se nota da Tabela 2.2, a contribuição do espalhamento Rayleigh sempre é pequena, mesmo para diversos elementos e energias de feixe incidente; em geral, este efeito é ofuscado pelos outros fenômenos como o fotoelétrico e o Compton (exceto talvez para baixos valores de Z e baixas energias dos fótons incidentes).

Na produção de pares, um fóton é completamente absorvido nas imediações de um átomo, devido ao campo coulombiano, normalmente do núcleo, e dá origem a um pósitron e a um elétron. Com menor probabilidade, o campo coulombiano da eletrosfera também pode iniciar a produção de pares; neste caso, diz-se que foi originado um tripleto, porque normalmente o elétron ligado que permitiu a criação do par elétron/pósitron ganha energia cinética suficiente para ser ejetado, assim como o par recém-criado. A energia mínima dos fótons incidentes para a ocorrência deste efeito é a soma das massas de repouso do par, ou seja $2m_0c^2$ e requer proximidade suficiente de um campo coulombiano, seja do núcleo, ou seja do átomo. Quanto à geração do tripleto, para que

sejam satisfeitas a leis de conservação de momento e energia, é necessária uma energia mínima de $4m_0c^2$.

A Figura 2.4 ilustra como a produção de pares ocorre na presença de um campo elétrico. Basicamente, um fóton de energia $h\nu$ se desintegra e origina um par elétron/pósitron com energias cinéticas T^- e T^+ respectivamente.

Figura 2.4. Cinemática da produção de pares, o momento do núcleo é dado por p_a e as energias cinéticas do par são T^+ e T^- [ATTIX, 2004]. O termo “Mom” é utilizado para designar o momento linear do núcleo do átomo.

Sendo assim, ignorando a energia cinética adquirida pelo núcleo, tem-se

$$h\nu = 2m_0c^2 + T^+ + T^- = 1,022 + T^+ + T^- \quad (MeV) \quad (2.9)$$

A energia cinética média transferida para cada elemento do par é

$$\bar{T} = \frac{h\nu - 1,022}{2} \quad (MeV) \quad (2.10)$$

O coeficiente mássico de atenuação para a produção de pares (κ/ρ) é:

$$\frac{\kappa}{\rho} = {}_a\kappa \frac{N_A}{A} \quad (cm^2/g) \quad (2.11)$$

onde ρ é a densidade, A a massa atômica e N_A o número de Avogadro e ${}_a\kappa$ é a seção de choque total por átomo para produção de pares.

Como para a maioria dos átomos, Z/A é aproximadamente constante (com exceção do hidrogênio, esse valor beira a 0,5), $\kappa/\rho \propto Z$.

2.3 Coeficiente de atenuação total para compostos e misturas

O coeficiente de absorção combinado dos quatro efeitos mais importantes que surgem da interação de fótons com a matéria pode ser descrita como

$$\frac{\mu}{\rho} = \frac{\tau}{\rho} + \frac{\sigma}{\rho} + \frac{\kappa}{\rho} + \frac{\sigma_R}{\rho} \quad (2.12)$$

Na Equação 2.12, μ/ρ é o coeficiente total de absorção, em unidade de cm^2/g . As quatro contribuições da soma se devem aos efeitos

fotoelétrico, Compton, produção de pares e Rayleigh respectivamente. Deve-se observar que foram desprezadas possíveis interações fotonucleares (γ, n) ou (γ, p) .

Vale citar algumas noções importantes a respeito de misturas e compostos, já que na grande maioria dos casos práticos dificilmente o material que compõe o alvo do feixe é constituído de apenas um elemento. Para estes casos, é feita uma média ponderada dos coeficientes de atenuação de todos os i -ésimos elementos que compõem a mistura. Os pesos da média ponderada são dados pela fração em massa (f_i) de cada tipo de i -ésimo elemento presente.

$$\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{mistura} = \sum_i f_i \left(\frac{\mu}{\rho}\right)_i \quad (2.13)$$

2.4 Dosimetria das radiações ionizantes

A dosimetria é a ciência que trata do estudo qualitativo e quantitativo da interação da radiação ionizante com a matéria, incluindo as possíveis consequências em tecidos biológicos por meio de grandezas como kerma, dose absorvida, dose efetiva, equivalente de dose, exposição, fluência, e assim por diante.

Para estudos nesta área, a principal ferramenta de medição consiste no dosímetro. Este pode ser definido como qualquer instrumento capaz de fornecer informações sobre a energia depositada pela radiação ionizante num dado volume sensível de material do detector. Idealmente, espera-se que a resposta de um dosímetro seja linear com a dose

absorvida (D_{abs}) e que todo o volume sensível do detector contribua igualmente para a resposta do detector.

Um ponto a se destacar é que normalmente não se está interessado em mensurar a dose absorvida em um dosímetro, mas sim em determinar essa dose, ou uma grandeza correlata, em um meio que não permite uma medição direta, seja por impossibilidades técnicas ou por problemas de acessibilidade ou praticidade. Sendo assim, uma das maiores dificuldades em dosimetria consiste exatamente em relacionar e interpretar a resposta de um dosímetro; muitas vezes esta dificuldade excede até mesmo a realização da própria medição. Geralmente obtém-se uma curva de calibração sob parâmetros muito bem definidos que levam à relação da resposta com a dose absorvida no meio de interesse. No entanto, a calibração é dependente da energia do feixe e do tipo de partícula incidente, exceto em casos onde o volume sensível do dosímetro coincide com o meio de interesse do estudo dosimétrico, o que em geral não acontece. Fica assim bem evidente o valor de um calorímetro com núcleo de água para fins dosimétricos.

2.4.1 Principais grandezas dosimétricas e suas unidades

A seguir serão apresentados as grandezas e os conceitos de interesse deste projeto de pesquisa.

2.4.1.1 Kerma (K)

Kerma é um acrônimo para **K**inetic **E**nergy **R**elaxed in **M**atter (Energia Cinética Liberada na Matéria). Esta grandeza só tem sentido no contexto de radiações indiretamente ionizantes como fótons, nêutrons ou quaisquer fontes que emitam radiações ionizantes dentro do próprio meio absorvedor [ATTIX, 2004].

Define-se esta grandeza (K) como a razão entre a energia transferida ao meio devido à radiação (ϵ_{tr}) e a massa da unidade de volume infinitesimal considerada (dm).

$$K \equiv \frac{d\epsilon_{tr}}{dm} \quad (2.14)$$

Em outras palavras, pode-se entender o kerma como a quantidade de energia cinética inicial transferida, por unidade de massa, para as partículas secundárias carregadas geradas pela radiação indiretamente ionizante. Deve-se incluir a energia adquirida por eventuais processos de perdas radiativas e excluir a transferência de energia de uma partícula carregada para outra.

O kerma pode ser expresso em J/kg , erg/g ou rad (esta última é a unidade antiga e já em desuso). A primeira forma citada também é conhecida como gray (Gy) no Sistema Internacional de Unidades (SI), em homenagem a um dos pioneiros da Física das Radiações, L. H. Gray. A relação entre estas unidades é dada por:

$$1Gy = 1J/kg = 10^4 erg/g = 100rad \quad (2.15)$$

Para fótons monoenergéticos de energia E incidentes num material de número atômico Z , o kerma pode ser obtido num ponto P por meio da seguinte relação:

$$K = \Psi \cdot \left(\frac{\mu_{tr}}{\rho} \right)_{E,Z} \quad (2.16)$$

onde Ψ representa a fluência energética do feixe em J/m^2 , lembrando que se trata de uma função escalar que depende da posição $P(x, y, z)$ e da energia E . O termo $(\mu_{tr}/\rho)_{E,Z}$ é chamado de coeficiente de absorção de energia em massa, que depende da energia do feixe e do número atômico do material irradiado, e é dado em cm^2/g ou m^2/kg . O parâmetro μ_{tr} é chamado de coeficiente de absorção de energia em massa linear, que é dado em m^{-1} ou cm^{-1} .

Portanto, como o kerma contabiliza a energia cinética adquirida pelas partículas carregadas, que será dissipada por meio de colisões e por emissão de radiação (modos não exclusivos entre si), pode-se portanto dividir o kerma em duas parcelas, o kerma de colisão e o kerma de radiação:

$$K = K_C + K_R \quad (2.17)$$

Pode-se entender o kerma de colisão K_C como a energia transferida à rede (estrutura formada pelos átomos do alvo) por meio de partículas carregadas geradas na interação fóton-átomo, por unidade de massa, no

ponto de interesse (excluindo as perdas radiativas e a energia que é transmitida de uma partícula carregada para outra). Quanto ao kerma de radiação K_R , pode-se entendê-lo como a diferença entre o kerma total e o kerma de colisão.

A razão entre o kerma e o tempo é conhecida como taxa de kerma ($\dot{K}$), e é expressa como:

$$\dot{K} = \frac{dK}{dt} = \frac{d}{dt} \left(\frac{d\epsilon_{tr}}{dm} \right) \quad (2.18)$$

A unidade de taxa de kerma é o Gy/h .

2.4.1.2 Dose absorvida (D)

A dose absorvida (D_{abs} ou simplesmente D) num ponto P é definida como a energia depositada localmente $d\epsilon$ num volume infinitesimal dv com massa dm .

$$D = \frac{d\epsilon}{dm} \quad (2.19)$$

A unidade da dose absorvida é a mesma do kerma, sendo portanto utilizado também o Gy . Define-se a energia depositada da Equação 2.19 como:

$$\epsilon = (R_{ent})_u - (R_{sai})_u + (R_{ent})_c - (R_{sai})_c + \sum Q \quad (2.20)$$

Nesta equação $(R_{ent})_u$ representa a energia radiante de partículas sem carga entrando no volume V e $\sum Q$ representa a energia resultante da conversão de matéria (massa de repouso) em energia ou vice-versa, por exemplo, em produção de pares $\sum Q = -2m_0c^2$, $(R_{sai})_u$ é a energia radiante de todas as partículas que não têm carga elétrica que saem do volume dv , $(R_{ent})_c$ é a energia radiante das partículas carregadas que entram no volume dv e por último $(R_{sai})_c$ é a energia radiante que também sai de dv , mas desta vez devido às partículas com carga elétrica.

A dose absorvida é considerada uma das grandezas mais importantes do ponto de vista biológico, visto que ela contabiliza justamente a energia que fica no meio material para que possa surtir algum tipo de efeito químico ou físico. Mas, diferentemente do kerma, a dose absorvida não pode ser relacionada com a fluência já que uma parcela de seu valor depende muito da presença das partículas secundárias e não só do feixe incidente.

A razão entre a dose absorvida e o tempo é conhecida como taxa de dose ($\dot{D}$), e é expressa como

$$\dot{D} = \frac{dD}{dt} = \frac{d}{dt} \left(\frac{d\epsilon}{dm} \right) \quad (2.21)$$

A unidade da taxa de dose absorvida é, assim como a unidade da taxa de kerma, o Gy/h .

2.4.2 Fundamentos de dosimetria e dosímetros

Como mencionado no item 2.4, a dosimetria procura relacionar a dose absorvida com o respectivo efeito num meio, devido à incidência da radiação ionizante. Por meio das grandezas como kerma, dose absorvida, fluência (entre outras), são desenvolvidos os modelos e teorias, para se chegar à dose absorvida e às suas grandezas correlatas (como dose efetiva e equivalente de dose) no meio material de interesse. Sendo assim, é evidente a necessidade de equipamentos que sejam, de alguma forma, sensíveis à passagem da radiação, para que se possa ter uma resposta proporcional à dose no meio que se busca de fato estimar. Estes equipamentos de grande importância na dosimetria são os dosímetros.

Um dosímetro pode variar radicalmente de conceito, forma e tamanho, mas a ideia básica é sempre a mesma: associar a resposta do dosímetro à dose no meio em que ele está inserido para um dado feixe ou campo de radiação, ou mesmo caracterizar a fonte e a natureza da radiação emitida (como o espectro). Como a natureza, a energia, a distribuição do feixe de radiação, a grande variedade de materiais e mesmo as aplicações na área de tecnologia das radiações podem ser muito diferentes, não há como definir um único tipo de dosímetro universal. A escolha do equipamento ideal depende de todas as questões apresentadas e geralmente cada aplicação tem um ou até mais modelos preferidos pela comunidade internacional. Independente do tipo de dosímetro ou para qual aplicação ele se destina, existem alguns conceitos básicos que se aplicam a todos, e características que são desejáveis a qualquer que seja o instrumento de medição.

Todos os dosímetros precisam ter um volume sensível; é nesse volume que a radiação interage com o meio e no qual a resposta é mensurada; o desejável é que a eficiência do dosímetro para gerar o sinal de resposta seja sempre independente do volume sensível; no entanto, caso esta resposta não seja homogênea ao longo do volume, então a dose será, na verdade, uma média justamente porque a resposta no volume sensível também é representada por um valor médio.

Como características gerais dos dosímetros pode-se listar: (a) o fato de serem absolutos ou não, (b) sua precisão e exatidão, (c) sua dependência energética, (d) seus limites de dose absorvida ou taxa de dose absorvida inferiores (abaixo dos quais suas respostas se confundem com o ruído eletrônico) e superiores (acima dos quais não são confiáveis ou sofrem danos), (e) sua estabilidade de resposta antes e depois da irradiação, (f) sua configuração, (g) sua calibração ou manutenção; e (h) o fato de serem ou não descartáveis. Cada tipo de dosímetro constitui uma única combinação entre estes fatores.

2.4.3 Tipos de detectores de radiação

A seguir serão apresentados os tipos mais utilizados de detectores de radiação e suas características principais.

2.4.3.1 Câmaras de ionização

Basicamente uma câmara de ionização é uma cavidade com um dado volume sensível, confinado por uma parede condutora e com um eletrodo

coletor geralmente no centro ou no eixo de simetria da cavidade. Em geral, como é aplicada alta tensão entre o eletrodo e a parede condutora, o isolamento deve ser muito bem feito para evitar descargas que possam comprometer a medição ou mesmo o equipamento. As câmaras de ionização também contam com uma proteção que garante que as cargas coletadas sejam efetivamente as geradas dentro do volume sensível; esta proteção é conhecida como anel de guarda.

Um eletrômetro fornece a resposta da câmara de ionização, que costuma ser de correntes elétricas da ordem de nanoamperes ou até menores.

Resumidamente, quando a radiação passa pelo volume sensível ocorre uma ionização no gás ou fluido, que gera cargas elétricas que são coletadas e medidas como um sinal pelo eletrômetro.

As câmaras de ionização podem ser dosímetros absolutos e variam muito de forma, volume sensível e tipo de parede, mas todas têm seu fundamento na teoria cavitária [ATTIX, 2004]. Entre as vantagens, pode-se destacar a boa precisão e exatidão das medições, leitura imediata e em tempo real; os fatores de correção são bem estudados e conhecidos; por estes motivos, as câmaras de ionização são amplamente utilizadas para dosimetria de feixes de radiação. Entre as desvantagens, destaca-se a necessidade de uso de cabos elétricos e alta tensão, e o excesso de fatores de correções quando a energia do feixe é alta.

2.4.3.2 Dosímetros luminescentes

Os dosímetros luminescentes baseiam-se no efeito de fosforescência ou fluorescência de materiais que absorvem parte da energia do feixe de radiação incidente e ficam com seus átomos em estados metaestáveis. Ao voltarem ao seu estado fundamental, normalmente após algum tipo de estímulo externo, a energia é liberada nas regiões espectrais do UV, visível ou infravermelho [ATTIX, 2004]. O armazenamento de parte da energia recebida pelo material se deve a elétrons presos em “armadilhas”, ou seja, em níveis de energia posicionados na banda proibida (entre a banda de valência e a de condução). Estas armadilhas são geralmente criadas por meio de dopagem de uma rede cristalina com impurezas.

2.4.3.3 Dosímetros fotográficos (filmes)

Os filmes radiográficos basicamente são películas de plástico revestidas em ambos os lados por uma emulsão de brometo de prata, que é sensível à passagem da radiação. Após a exposição, assim como em uma fotografia convencional, o filme também precisa ser revelado utilizando reagentes químicos (exceto os filmes radiocrômicos, que não necessitam de tratamento químico após a irradiação). Como o filme é marcado permanentemente, é muito utilizado como registro ou documentação e desempenha um papel muito importante em proteção radiológica, medicina diagnóstica e em terapia [ATTIX, 2004].

Utilizando equipamentos de medição chamados densitômetros, é medida a densidade óptica do filme, partindo do pressuposto de que o

índice de transmissão de luz no ponto analisado é proporcional à dose absorvida, embora sejam mais comumente utilizados para análises mais qualitativas com ótima resolução 2-D.

2.4.3.4 Dosímetros químicos

Os dosímetros químicos podem ser divididos em: tipo Fricke ou tipo polimérico. O dosímetro Fricke tem íons de ferro II em solução de sulfato ferroso disperso em gelatina, agarose ou algum tipo de coloide. Com a passagem da radiação, os íons de ferro +2 se transformam em íons de ferro +3 devido aos radicais livres criados na radiólise da água ou mesmo pela interação direta com a radiação. Com o aumento do número de oxidação, ocorrem alterações paramagnéticas dos íons de ferro que podem então ser detectados pela técnica de ressonância magnética nuclear (RMN); estas imagens são 3-D e relacionam a dose absorvida em meio aquoso (e de composição próxima ao tecido mole) em uma distribuição geométrica complexa. Espera-se que a RMN seja sempre realizada logo após a finalização da irradiação, evitando-se assim que naturalmente os íons de ferro se difundam no gel, produzindo uma imagem cada vez mais borrada [ATTIX, 2004].

No caso dos dosímetros poliméricos, em geral usa-se acrilamida em gelatina ou agarose. Com a passagem da radiação, os monômeros se polimerizam gerando uma matriz 3-D que pode ser detectada pelas técnicas de RMN, tomografia computadorizada ou mesmo por ultrassonografia.

2.4.3.5 Semicondutores

Dosímetros semicondutores são diodos com junções do tipo $p - n$, ou seja, um cristal de silício ou germânio é dopado com uma certa impureza e fica com excesso de vacâncias (excesso de cargas positivas); esta parte do cristal acaba se tornando a junção p . Entre 10 μm e 5 mm de distância desta parte do cristal encontra-se uma camada fina do cristal (da ordem de 0,1 μm) com excesso de elétrons (visto que está ligado a uma carga fortemente negativa); a esta parte se dá o nome de junção n . Para formar esta camada fina, em geral é feito algum tipo de eletrodeposição de um metal na superfície do cristal.

Entre as junções p e n encontra-se uma região neutra, ou seja, um volume sensível com carga elétrica total nula. Esta região é naturalmente criada quando se aplica ao terminal n um potencial positivo (sua espessura é proporcional ao valor deste potencial); geralmente esta camada varia entre alguns micrometros e alguns poucos milímetros.

Quando uma partícula ionizante atravessa o cristal, cria um “caminho” de ionizações (pares de íons) na região neutra; as cargas recém-geradas pelo par de íons tendem a migrar para a junção n ou p dependendo da carga, gerando um sinal de corrente após cerca de 10^{-8} s da irradiação. Um ponto interessante a se destacar é que como a energia necessária para se criar um par de íons no silício, por exemplo, é de apenas 3,62 eV (para a temperatura de 300 K) o sinal tende a ser 10 vezes maior que em uma câmara de ionização de ar livre, onde a energia para criação do par de íons ($\bar{W}$) é de aproximadamente 33,97 eV.

2.4.3.6 Calorímetros

Calorímetros são dispositivos utilizados há séculos como aparatos para medição de entropia em reações químicas, mudanças de estados de um fluido ou mesmo para quantificar o trabalho produzido por alguma força. Como se percebe, o uso de um calorímetro é vasto e, por isso, hoje é um instrumento de medição indispensável em diversos campos das ciências.

No contexto da dosimetria de radiações ionizantes, os calorímetros são os equipamentos que mais se aproximam da medição direta de energia depositada em um meio, porque eles medem o acréscimo de temperatura no meio material quando a energia radiante é depositada. Deste modo, exceto por pequenas correções na medição da temperatura devido a eventuais reações químicas induzidas na irradiação, as medições calorimétricas podem ser vistas como produzidas por um dosímetro absoluto, já que mede a grandeza física básica, a temperatura.

Essencialmente, um calorímetro é composto pelo meio material que será irradiado e um sensor de temperatura (um termopar ou um termistor) posicionado dentro deste meio. Dependendo do modelo do calorímetro, outros componentes são adicionados, como blindagens térmicas passivas (revestimentos termicamente isolantes como madeira, isopor ou mesmo uma região de vácuo) ou ativas (fluido circulante com temperatura bem definida). O objetivo do calorímetro como dosímetro é permitir que um feixe de radiação ionizante entre por uma “janela” e deposite energia (E) no núcleo ou no meio material dentro do equipamento, justamente onde o sensor de temperatura está

posicionado. Entende-se que o acréscimo de temperatura (ΔT) se relaciona com a energia depositada por meio da equação fundamental da calorimetria:

$$E = m c_{esp} \Delta T \quad (2.22)$$

onde c_{esp} é o calor específico do meio que está sendo irradiado, em $cal/(g\ ^\circ C)$ ou $J/(kg\ ^\circ C)$ e m é a massa do meio material. As duas unidades se relacionam como:

$$1\ cal/g\ ^\circ C = 4,181\ J/kg\ ^\circ C \quad (2.23)$$

No entanto, como nem toda a energia que é depositada se relaciona diretamente com o acréscimo de temperatura, é necessário introduzir um fator de correção, conhecido como “defeito de calor” (h_c). Esta diferença se deve ao fato de que parte da energia depositada induz reações químicas no meio, que podem ser endotérmicas ou exotérmicas, afetando a forma como a temperatura se altera no meio. Deste modo, a temperatura é resultado tanto da deposição de energia do meio como da soma das energias liberadas ou absorvidas pelas reações químicas que estão ocorrendo. Espera-se que medições de boa qualidade minimizem ou pelo menos mantenham muito bem conhecida a parcela de energia que fica destinada às reações químicas.

Deste modo, a Equação 2.22 fica modificada da seguinte forma:

$$E(1 - h_c) = m c_{esp} \Delta T \quad (2.24)$$

ou seja, a variação de temperatura ΔT se relaciona com a energia depositada:

$$\Delta T = \frac{E(1 - h_c)}{mc_{esp}} = \frac{\bar{D}(1 - h_c)}{c_{esp}} \quad (2.25)$$

onde $\bar{D}$ é a dose média no volume sensível. Nota-se mais facilmente que em um calorímetro, além de leituras com boa relação sinal/ruído, são necessárias estimativas muito bem conhecidas do defeito de calor h_c do meio em questão, ou então as medições de temperatura estarão alteradas devido à interferência de reações químicas e não somente ao resultado da deposição de energia no meio. Mais detalhes de calorímetros como dosímetros serão apresentados no item 2.5.

2.4.4 Calibração de dosímetros

Os dosímetros, assim como grande parte dos instrumentos de medição, precisam ser calibrados. No contexto das radiações ionizantes, os dosímetros podem ser calibrados por meio de duas técnicas distintas, a primeira é conhecida como método do campo conhecido e a segunda por meio de uma comparação ou resposta conhecida de um segundo dispositivo previamente calibrado.

No primeiro procedimento, a do campo conhecido, o dosímetro é exposto a um feixe com características muito bem estabelecidas, sendo assim, sabe-se a dose e a taxa de dose que este feixe deve produzir no

dosímetro; conseqüentemente, pode-se determinar o fator de calibração do dosímetro.

No segundo método, um equipamento que já está calibrado é exposto no campo de radiação; deste modo, sua resposta já indica qual deve ser a característica do campo de radiação no ponto onde o equipamento calibrado foi colocado. Em seguida posiciona-se o dosímetro a ser calibrado exatamente no mesmo ponto onde o primeiro foi posto, e então pode-se determinar o fator de calibração comparando-se as respostas dos dois dosímetros.

Ambos os métodos precisam, como é de se esperar em qualquer calibração, que um parâmetro do sistema seja conhecido, seja por meio de um segundo equipamento ou pelo próprio campo em si. Deve-se ter em mente que para qualquer processo de calibração também se deve estar atento a possíveis dependências energéticas e angulares, além dos níveis mínimos e máximos de operação de um dosímetro.

2.5 Calorimetria para fins dosimétricos

Por se tratar do foco deste trabalho, os calorímetros como dosímetros recebem destaque. Nos itens a seguir serão detalhados diversos parâmetros relevantes em um calorímetro [PÉREZ, 1994; ATTIX, 2004].

2.5.1 Definição

Por definição, um calorímetro é um equipamento de medição empregado para quantificar o calor específico de um meio ou então a energia que um processo químico ou físico utiliza ou gera. No caso de ser empregado em dosimetria, é utilizado para quantificar a energia depositada no meio devido à incidência de radiação de uma dada fonte, que pode ou não ser conhecida. Os calorímetros podem ser divididos em adiabáticos, isotérmicos, por fluxo de calor e diferenciais. As diferenças entre eles se baseiam em como a variação de energia térmica é controlada, mensurada e como são feitas as trocas de calor entre o núcleo e o revestimento que o isola do meio.

2.5.2 Tipos e aplicações de calorímetros

A seguir serão apresentados os principais modelos de calorímetros e suas características de operação.

2.5.2.1 Adiabático

No modelo adiabático de calorímetro, o núcleo é mantido isolado do meio externo; neste caso, a troca de calor ou de matéria com o ambiente deve ser a mínima possível. O controle de energia que entra ou sai é feito por meio de uma ou mais barreiras onde a temperatura é muito bem controlada. O comportamento do núcleo e das sucessivas barreiras é bem determinado e a taxa de aumento de temperatura e a massa que compõe o núcleo são constantes.

Geralmente, devido à impossibilidade de se conseguir um calorímetro puramente adiabático por limitações tecnológicas e financeiras, o que mais se emprega é o modelo quase adiabático. Este é o modelo mais empregado pelos laboratórios de calibração ao redor do mundo [WILLIAMS E ROSSER, 1998].

2.5.2.2 Isotérmico

No modelo isotérmico de calorímetro, o núcleo passa por transformações de estado físico e portanto sua temperatura se mantém constante já que:

$$E(1 - h_c) = mL \quad (2.26)$$

onde L é o calor latente da mudança de estado do meio em questão, m é a massa e h_c é o defeito de calor, ou seja, a fração de energia que não contribui com o aumento de temperatura do meio (associada à entalpia de reações químicas como a da radiólise da água). Sendo assim, durante a deposição de energia, que acarreta a mudança de fase, o calorímetro continua em sua temperatura de operação, que em geral é o ponto de fusão ou ebulição do material.

2.5.2.3 Por fluxo de calor

No modelo de calorímetro por fluxo de calor, o que se mede não é a temperatura, mas sim o fluxo de calor entre o núcleo e a carcaça do

dosímetro. Deste modo, o cuidado é com relação a como e onde o calor pode ou não transitar ao longo da estrutura do calorímetro. Ao se irradiar o núcleo de massa m , o acréscimo de temperatura gera um gradiente entre o núcleo e a carcaça (que mantém a temperatura de operação constante) fazendo com que se origine um fluxo de calor que é direcionado a uma região preferencial (por meio de áreas condutoras seguidas de isolantes) e então é quantificado. Como o fluxo de calor é função de ΔT , espera-se que a taxa do aumento de temperatura no início seja crescente, e conforme o calorímetro atinja o equilíbrio térmico, esta taxa tende a ficar constante e nula. Neste momento, a diferença de temperatura entre o núcleo e a carcaça está relacionada à taxa de deposição de energia.

O fluxo de calor Ψ que passa por uma abertura de seção reta de raio A é dado por

$$\Psi = \frac{E(1 - h_c)}{A} = \frac{\Delta T c_{esp} m (1 - h_c)}{A} \quad (2.27)$$

Sendo assim, fica relacionada a variação de temperatura com a energia depositada pelo feixe.

2.5.2.4 Diferencial

O modelo diferencial de calorímetro pode ser considerado um subtipo do calorímetro por fluxo de calor. Neste modelo também se registra o fluxo de calor entre dois meios, mas diferentemente do primeiro modelo, onde o calor flui do núcleo para a carcaça, neste

modelo, o fluxo se dá entre dois ou mais núcleos inseridos em um meio intermediário.

2.5.3 Calibração de um calorímetro

A calibração de um calorímetro, assim como de qualquer outro dosímetro, pode ser realizada pelos dois métodos previamente citados (campo conhecido ou por comparação com outro dosímetro calibrado previamente). No entanto, existe uma terceira maneira no caso dos calorímetros: nesta maneira, uma resistência interna posicionada dentro do núcleo dissipa uma potência P muito bem definida durante um certo tempo Δt . Por definição, a energia total transferida ao núcleo é o produto $P \Delta t$, supondo que toda a potência dissipada é absorvida pelo núcleo (portanto são desprezadas as eventuais perdas para o meio ambiente), acarretando o acréscimo na temperatura do núcleo. Deste modo, fica relacionada a dose com a temperatura:

$$D = \frac{E}{m} = \frac{P \Delta t}{m} = \frac{I^2 R \Delta t}{m} = mc_{esp} \Delta T \quad (2.28)$$

De forma simplificada, pode-se dizer que ao introduzir uma quantidade de energia bem definida com ajuda de uma resistência, calibra-se a resposta dos sensores de temperatura para a variação ΔT esperada. A qualidade metrológica do calorímetro depende da qualidade com que os parâmetros da Equação 2.28 são obtidos.

2.5.4 Sensores de temperatura

As medições de temperatura podem ser consideradas como a principal resposta que um calorímetro deve obter; grande parte da qualidade deste dosímetro depende de suas medições de temperatura. Para esta tarefa, em geral são empregados dois tipos distintos de sensores que operam como termômetros: os termopares e os termistores [OMEGA, 2016]. Cada um conta com as respectivas vantagens e desvantagens e a escolha depende à qual aplicação será destinado o calorímetro.

2.5.4.1 Termopares

Os termopares são sensores que se baseiam no efeito Seebeck (ou efeito termoelétrico). Duas ligas com funções trabalho diferentes são unidas e um extremo, o chamado “braço quente”, é exposto a uma fonte de calor. A segunda extremidade, que é chamada de “braço frio”, é imerso num banho frio, que está em uma temperatura muito bem conhecida (por exemplo, num recipiente com gelo). Quando estes dois metais são ligados entre si e submetidos a este gradiente térmico (de uma fonte conhecida e de outra desconhecida) é originada uma corrente elétrica que flui entre os dois metais. É importante destacar que termopares medem diferenças de temperatura relativas ao “braço frio”; deste modo, fica implícito um valor de referência para as leituras de corrente de um termopar [OMEGA, 2016].

Estes sensores têm um coeficiente de temperatura da ordem de 40 a 70 $\mu V/^\circ C$, com variações de temperatura típicas de 10 K. Como se pode

notar, a resposta deste sensor pode ser medida por voltímetros comerciais. Eles podem ser de diversos tipos (B, R, S, T, C, M, etc...), diferenciando-se somente pelo tipo de liga empregada e, conseqüentemente, do valor do coeficiente de temperatura; deste modo, cada tipo se destina a uma região de temperatura distinta.

Em geral os termopares são equipamentos mais simples e de baixo custo, com uma sensibilidade limitada, mas que podem perfeitamente ser empregados em calorímetros onde a dose absorvida é grande ao ponto de gerar diferenças da ordem de décimos de kelvin. Em geral são encontrados comercialmente com diâmetros da ordem de até frações de milímetro.

2.5.4.2 Termistores

Termistores são sensores de temperatura que se baseiam em um fenômeno diferente do que é empregado pelos termopares. Nestes sensores tem-se uma liga, cuja composição em geral é segredo do fabricante, que possui uma resistividade que varia em função da temperatura de forma muito bem definida no intervalo de temperatura considerado. Em geral são semicondutores de óxido metálico com outros componentes. Exibem coeficientes de temperatura negativos, ou seja, têm resistência menor com o acréscimo de temperatura. Este valor pode variar alguns percentuais por $^{\circ}\text{C}$ e tem resistência típica da ordem de 10^3 a $10^5 \Omega$. A resistência em geral é medida de forma bem simples, com uma ponte de Wheatstone. Embora de sensibilidade maior em relação ao termopar, o termistor apresenta o problema de gerar auto-aquecimento, já que se trata de uma resistência elétrica, fato que demanda um fator de

correção em geral determinado por meio computacional ou de forma empírica.

A relação entre a resistência e a temperatura é dada por

$$R = R_0 e^{\beta(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0})} \quad (2.29)$$

onde R é a resistência em *ohms* à temperatura T , R_0 é resistência à temperatura T_0 , e β é a constante característica do material. As temperaturas são dadas em graus *kelvin*. Em geral, a temperatura de referência T_0 é de 298 K e a constante característica β é de 4000.

2.5.5 Eletrônica associada

Como já mencionado anteriormente, a eletrônica associada necessária ao funcionamento de um calorímetro depende do projeto em questão; os modelos mais sofisticados demandam sistema automático para controle das barreiras ativas de temperatura (modelo adiabático), além de uma ponte de *Wheatstone* ligada a uma bateria (para evitar interferências eletromagnéticas em componentes elétricos mais sofisticados); se for empregado o termistor, também é necessário um voltímetro.

2.5.6 Vantagens e limitações dos calorímetros

Entre as vantagens destes detectores de radiação destacam-se:

- Podem ser dosímetros absolutos;

- Fornecem o tipo de medição mais direta possível da energia absorvida incidente, devido à radiação ionizante;
- Quase qualquer material pode ser empregado no núcleo, desde que possua um calor específico e um defeito de calor bem determinados, e valores admissíveis de condutividade térmica;
- São independentes da taxa de dose se mantidos em condições adiabáticas; em altas taxas de dose, onde os dosímetros usuais costumam ter problemas, é justamente onde os calorímetros mais se destacam;
- Para os calorímetros, o tipo de radiação incidente é indiferente, sendo assim, independem da taxa de energia cinética transferida pela radiação ao meio material ao longo do caminho (LET);
- São resistentes a doses relativamente altas; em geral o fator limitante é o sensor de temperatura.

Entre as limitações dos calorímetros pode-se citar:

- São necessárias doses altas para que a resposta seja suficientemente mensurável, limitando o uso do calorímetro a altas doses;
- A blindagem térmica e a eletrônica associada em geral são volumosas, o que limita a portabilidade do calorímetro em sua utilização;
- Há necessidade de considerar o defeito de calor nas medições.

2.6 Solubilidade de gases na água

A solubilidade de gases em meios líquidos depende basicamente de um equilíbrio entre a pressão parcial do gás e da própria solução saturada do gás. Qualquer líquido que possui interface com um gás está sujeito a uma infinidade de colisões que eventualmente permitem a difusão de algumas destas moléculas no líquido, em especial quando se aumenta a energia cinética do gás ou a área da interface; portanto, é natural que líquidos e gases compartilhando o mesmo volume interajam e troquem moléculas entre si. Definida como a quantidade de moles ou gramas do gás dissolvidos por volume de solução, a solubilidade depende da temperatura e da pressão, além dos tipos de gases e líquidos em questão seguindo a lei de Henry. Resumidamente, esta lei estabelece que, dada uma temperatura constante, a concentração do gás dissolvido depende linearmente da pressão parcial, ou seja, dobrando-se a pressão parcial, dobra-se a concentração do gás dissolvido.

No entanto, a solubilidade tem uma dependência mais complexa com a temperatura, segundo a *International Union of Pure and Applied Chemistry* (IUPAC) de maneira geral (exceto para gases como H_2S e H_2Se) pela função empírica 2.29 [BATTINO, 1982].

$$\ln X_l = A + B/T^* + C \ln T^* \quad (2.29)$$

onde X_l representa a solubilidade em fração molar (mols do gás em relação aos mols da solução) e $T^* = T/100K$.

Para o gás nitrogênio (N_2 , massa molecular de 28,0134 u.m.a.) à 100kPa (1 atm) em água (H_2O), as constantes A, B e C são respectivamente -67,3877; 86,3213 e 24,7981 (desvio padrão de 0,72% entre as temperaturas de 273,15 até 348,15K) [GEVANTMAN, 2014]; assim, a solubilidade do gás nitrogênio pode ser representado pela Figura 2.5.

Figura 2.5. Solubilidade (X_l) do gás nitrogênio (N_2) em água (H_2O) à pressão de 100kPa (1atm) entre 273 ($0^\circ C$) e 348K ($75^\circ C$).

Capítulo 3: Revisão Bibliográfica

Domen [1980] propôs que calorímetros com núcleos de água fossem utilizados para estimar a dose absorvida em água, porque se trata do material de referência em condições hospitalares. Em seu projeto inicial, ele prensou dois termistores de 0,25 mm de diâmetro entre duas camadas de um filme de polietileno e os deixou imersos em 5 cm de água em um núcleo quadrado com 30 cm de aresta. O aparato foi irradiado com uma fonte de ^{60}Co com taxas de dose absorvida de 66 mGy/s executando ao todo 10 medições de 3,5 min, em um intervalo de 2 horas. Com isso, Domen concluiu que tal aparato é completamente factível para dosimetria e propôs que mais estudos fossem feitos no sentido de entender melhor o calor produzido pela inserção dos termistores, a estabilidade do sinal em fios imersos por longos períodos em água e até mesmo se o filme de polietileno poderia ser substituído por outro material.

Dois anos mais tarde, Domen [1982] propôs um segundo calorímetro, com diversas melhorias, em especial teóricas. Neste trabalho, ele já considerou que o defeito de calor introduzido por reações químicas na água poderia interferir nas medições de doses absorvidas. Sua principal sugestão foi inserir artificialmente um defeito de calor que fosse estável e que pudesse introduzir um valor constante que permitisse posteriormente ser subtraído nos resultados finais. Ao saturar a água com gases como N_2 ou H_2 , ele notou diferenças de até 3% que eram reproduzíveis e estáveis. Também realizou diversos estudos como o efeito térmico dos termistores, a influência de impurezas na água, e estudos de convecção no meio

aquoso. Por último, ele realizou uma comparação entre calorímetros de água e grafite, constatando uma diferença de até 3,5% entre as respostas.

Kubo [1983] realizou uma comparação entre um calorímetro de água e uma câmara de ionização do tipo Farmer, usando uma fonte de ^{60}Co : foi constatada uma diferença de até cerca de 5 % entre elas. Por fim, insistiu em dizer que o defeito de calor era o principal desafio para melhorar a qualidade metrológica do calorímetro de água.

Estudos como os de Schulz e Weinhaus [1985] avaliaram a influência de correntes convectivas e notaram diferenças quando as medições foram feitas quando o feixe entrava nos sentidos horizontais e verticais. Estas diferenças foram notadas após o período de irradiação, como diferenças na inclinação da curva de relaxação (resfriamento após a irradiação): foi sugerido que uma possível solução fosse minimizar a capacidade de formação de correntes convectivas trabalhando à temperatura de $4\text{ }^{\circ}\text{C}$, onde a água adquire sua densidade máxima. Com isso, as correntes convectivas foram anuladas, mas a complexidade do calorímetro aumentou.

Após estes trabalhos iniciais, Nath e Rothman [1988], Womersley [1990] e Ross e Klassen [1996], propuseram diversas melhorias técnicas como o uso de ferramentas computacionais para estimar o transporte de calor dentro do calorímetro, além do uso de códigos de transporte de radiação para ajudar no projeto de tais dosímetros.

Domen [1994] apresentou um novo modelo de calorímetro onde ele basicamente fez duas grandes mudanças: introduziu uma barreira passiva de isolamento térmico entre o núcleo e a carcaça do calorímetro e eliminou o filme de polietileno, colocando no lugar um compartimento, ou cápsula de vidro, onde os terminais dos termistores ficam expostos. O

recipiente foi completado com água ultra pura (conhecida pela sigla UPW); enquanto fora da cápsula, a água foi mantida apenas filtrada. Neste momento, Domen voltou sua atenção para o defeito de calor introduzido nas medições de dose absorvida com o uso de diversos gases, concluindo que o ideal seria saturação com H_2 . Por fim, propôs otimizações no processo de medição que possibilitasse executar séries de medições mais longas, aumentando portanto, a dose total depositada no meio sem comprometer as medições com o efeito de auto-aquecimento dos termistores. Concluiu também que sua cápsula de vidro com cerca de 3 cm de diâmetro era uma barreira convectiva eficiente, o que permitiria operar o calorímetro em temperatura ambiente.

No Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares da CNEN, Pérez [1994] construiu o primeiro calorímetro do IPEN; no entanto, seu núcleo era de grafite e foi empregado para feixes de elétrons com doses de 0,1 a 30 kGy. É um modelo adiabático automático calibrado por meio de resistência interna. Pérez concluiu que seu calorímetro atendia aos requisitos técnicos que foram sugeridos como objetivos de sua tese.

Neste ponto, a calorimetria com núcleo de água dividiu-se em dois caminhos, o primeiro propôs a redução de correntes convectivas com o uso de barreiras físicas, como o modelo de Domen, ou por meio do uso de gelo no núcleo como proposto por Rosser [1994]. O segundo caminho consistia em operar o calorímetro em $4\text{ }^{\circ}\text{C}$ como o modelo de Schulz e Weinhaus [1985] e Seuntjens e Palmans [1999].

Na década de 90, a calorimetria com núcleo de água pareceu atingir certa maturidade e diversos laboratórios de metrologia das radiações passaram a contar com pelo menos um modelo construído pela própria Instituição. A grande maioria baseou-se no modelo de Domen (com a

cápsula de vidro) ou no modelo de Schulz e Weinhaus, operando em temperatura controlada como, por exemplo, o de Ross, Klassen e Shortt [1994]. Portanto, a calorimetria adquiriu certa confiabilidade já que vários estudos foram feitos para dimensionar as duas grandes barreiras para a calorimetria com água: o defeito de calor e as correntes convectivas do núcleo [SHORTT *et al*, 2000; KRAUSS, 2002; HAO *et al*, 2006; KRAUSS, 2006; SHARPE E DUANE, 2007].

Nos últimos anos, os calorímetros participaram da elaboração de diversos padrões e protocolos na área de dosimetria das radiações, e mesmo em práticas clínicas como braquiterapia [SARFEHNIA *et al*, 2010a e SARFEHNIA *et al*, 2010b]. Atualmente praticamente todos os laboratórios tipo padrão primário contam com pelo menos um calorímetro com núcleo de água, constituindo, portanto, em um importante equipamento nos principais laboratórios de calibração modernos.

Capítulo 4: Materiais e Métodos

Nas seções seguintes serão abordadas as etapas de como o projeto foi escolhido e quais os critérios adotados para avaliar a adequação do modelo de calorímetro do LCI. A metodologia pode ser subdividida em 3 etapas; cada uma será brevemente explicada a seguir:

A **primeira** etapa consistiu na escolha e no planejamento do modelo de calorímetro que foi construído neste trabalho. Basicamente foram compiladas informações sobre tipos e modos de operação de sistemas de calibração calorimétricos e simulado computacionalmente um modelo personalizado, tanto seu comportamento durante a irradiação como a forma de atuação do sistema de circulação de refrigerante para troca ativa de calor em função do tempo.

A **segunda** etapa consistiu na construção e no ajuste do equipamento. Uma vez definidos na primeira etapa como o calorímetro funcionaria e quais seriam seus parâmetros de operação, iniciou-se o processo de compra, confecção ou adaptação de itens já existentes para se adequar às necessidades específicas do projeto. Destaca-se aí a confecção da Unidade de Tratamento de Água (UTA), parte fundamental do funcionamento deste sistema de dosimetria. Coube a esta etapa também os devidos ajustes e correções de problemas que não foram previstos ou observados durante a primeira etapa.

A **terceira** e última etapa consistiu em, uma vez terminada a montagem e os testes iniciais, testá-lo de fato em condições reais de utilização no IPEN.

4.1 Escolha do calorímetro ideal

Existem diversos projetos diferentes de calorímetros. As variações de projeto abrangem a escolha dos materiais envolvidos do núcleo e estrutura, dos sensores, dos sistemas de controle de temperatura e da eletrônica associada. Outra diferença importante foi a escolha da metodologia empregada para relacionar o aumento de temperatura com a dose ou taxa de dose devido ao feixe de radiação [PÉREZ, 1994; WILLIAMS E ROSSER, 1998].

Entre os calorímetros com núcleo de água utilizados pelos laboratórios metrológicos para dosimetria destacam-se 4 tipos diferentes de projetos descritos na literatura, a saber: o modelo de Schulz *et al* [1987], o modelo de Ross *et al* [1989 e 1994], o modelo de Domen [1994] e o modelo de Seuntjens e Palmans [1999]. Outros modelos mais sofisticados são empregados pelos laboratórios modernos que se adequam às necessidades de cada país. Pode-se colocar nesta categoria, por exemplo, o calorímetro utilizado pelo PTB como descrito por Krauss [2006] ou o do NPL como descrito por Brede *et al* [2000] e Williams e Rosser [1998]. Embora os princípios básicos de funcionamento sejam os mesmos, a eletrônica tende a ser aprimorada, além de incluir ajustes finos na blindagem térmica ou uso de novos processos de calibração.

Nesta etapa foi ponderado o modelo de calorímetro mais apropriado às necessidades específicas do LCI segundo os prós e contras de cada projeto. Um ponto de partida bastante razoável (pelo menos a princípio, a versão final do protótipo foi diferente), que garante resultados de alta qualidade metrológica e que possui tanto construção como

manuseio simplificado, é o modelo quase adiabático com núcleo de água com controle térmico ativo-passivo de ar e água mais uma blindagem térmica de madeira e polietileno expandido. Os sensores térmicos escolhidos a princípio seriam termistores, pois são os sensores térmicos mais utilizados nos calorímetros de água para dosimetria de feixes devido a sua alta sensibilidade e tamanho reduzido [McEWEN E DUSAUTOY, 2009].

4.2 Sistemas de radiação ionizante

4.2.1 Gerência de Metrologia das Radiações (GMR)

Na Gerência de Metrologia das Radiações do IPEN foram utilizadas as fontes de radiação das salas 7 e 5 (*bunker*). A sala 7 conta com uma fonte colimada de ^{137}Cs com 3,3 TBq (90 Ci) de atividade e a fonte da sala 5, com uma fonte também colimada de ^{137}Cs com 15,54 TBq (420 Ci) de atividade. As distâncias fonte-detector foram variadas para estimar a taxa de dose absorvida na água.

4.2.2 Centro de Tecnologia das Radiações (CTR)

No Centro de Tecnologia das Radiações do IPEN foi utilizada a fonte panorâmica de ^{60}Co com cerca de 6,9 TBq (187 Ci) de atividade, da Yoshizawa Kiko Co. Ltd. de 1977. A distância também foi variada na obtenção da taxa de dose.

4.3 Projeto dos componentes

Após definido o modelo de calorímetro que mais atendesse às necessidades do LCI, o passo seguinte foi projetar cada componente com auxílio de métodos numéricos, analíticos e experimentais.

O código de transporte MCNP5 foi empregado na determinação da distribuição da dose em cada componente e em especial no núcleo de água segundo um dado feixe [X-5 MONTE CARLO TEAM, 2003]. O MCNP5 (Monte Carlo N-particle) foi originalmente desenvolvido pelo Laboratório Nacional de Los Álamos na década de 50 para o transporte de nêutrons e fótons para o projeto de reatores nucleares.

Algumas décadas mais tarde, o código de transporte de elétrons ITS 1.0 foi incorporado na versão 4A, acoplando a física dos três tipos de partículas. Esta união tornou o MCNP um código de aplicação mais geral, sendo desde então um dos principais códigos na área de física médica [CINTRA, 2010].

O FLUENT 14 é um código desenvolvido pela ANSYS para engenheiros simularem a dinâmica dos fluidos em uma dada geometria (baseado no método dos elementos finitos). Permite simular turbinas, cascos de navios, tubulações, pás de hélices, aerofólios, aerodinâmica de protótipos, trocadores de calor, etc... Atualmente é um dos *softwares* mais consagrados para esta aplicação [ANSYS, 2015] e aqui foi utilizado para simular o comportamento do sistema de troca ativa de calor, fazendo com que o equipamento trabalhe à temperatura de 4 °C (ou em outra temperatura de referência, caso seja desejado).

Todas as simulações de fluido-dinâmica e de transporte de radiação ionizante foram executadas em um computador Intel i7 2600K com 3,4 GHz, 16 GB de memória RAM e SO Windows 7 (compilação 6.1.7601).

O posicionamento dos termistores foi definido por modelos de condução de calor em regime transiente como o de Schmidt e que é citado por Holman [1983].

4.4 Construção do calorímetro

Com todas as especificações e materiais definidos, geometria e eletrônica devidamente escolhidas, o passo seguinte foi construir o calorímetro nas dependências do LCI, utilizando a infraestrutura da GMR. Empresas brasileiras também foram requisitadas para a confecção e o fornecimento de equipamentos e produtos que não puderam ser produzidos nas dependências do IPEN.

Os seguintes equipamentos foram utilizados, comprados, modificados ou construídos nesta etapa:

- Bomba de vácuo e pressão Quimis modelo Q355B, que funciona pelo princípio de rotor centrífugo com palhetas, montada numa plataforma metálica com pés de borracha, bivolt, 840 W, pressão máxima de 20 psi ($2,2 \text{ kgf/cm}^2$), vácuo máximo de 87 kPa (660 mmHg) e capaz de deslocar 37 L/min. Vide Figura 4.1;
- Agitador mecânico Fisatom 713 com controle analógico (para produtos semi viscosos, bivolt, 130 W e rotação máxima de

5500 rpm). Inclui plataforma com haste de sustentação e haste metálica de aço inox 318 com diâmetro de 3/8 " e pás para agitar fluidos;

- Selo mecânico cônico 45/50 em teflon da Fisatom;
- Vaso de vidro borossilicado cilíndrico com 10 L de capacidade, tampa de vidro de mesmo material com 5 saídas (4 tipo 29/42 e uma central 45/50) e saída na parte inferior do vaso (oliva GL18)
- Kit multi-parâmetro IMPAC WA-2015;
- Termômetro PT100 da INSTRUTEMP ITMPA 210;
- Fluxômetro de gás nitrogênio;
- Manta térmica Higherflex (235 mm x 630 mm) com isolamento térmico, jaquetas emborrachadas e fechamento por velcro com 1000 W de potência, sensor PT100 embutido, 220 V e painel de controle próprio para aquecer o vaso quando necessário (Figura 4.1b);
- Impressora 3D modelo UP+2 da UP3D Brasil.

A seguir estão listados os itens de consumo ou peças que foram adquiridas ou montadas para o funcionamento dos equipamentos listados anteriormente:

- Mangueiras de silicone Synth, modelo 208 (diâmetro interno de 9,5 mm e diâmetro externo de 14,6 mm), para manuseio de líquidos e mangueiras reforçadas para manuseio de gases em alta pressão;

- Registros e tubulação de cobre 3/8”;
- Kitassato de vidro com 0,5 L;
- Óleo SAE 20W40;
- Rolhas de borracha branca n.10;
- Sistema de válvulas de vidro/teflon e latão/ferro;
- Suporte em plástico PLA para os termistores;
- Dispensor de gás de vidro na forma toroidal;
- Tripé de ferro revestido com borracha para sustentar o vaso de vidro;
- Abraçadeira plástica para prender o vaso de vidro na haste metálica;
- Gás nitrogênio industrial (99,5 % de pureza), fornecido pelo IPEN;
- Tubulações e chapas de PMMA.

A bomba de vácuo foi montada em plataforma metálica com pés de borracha, ao lado do vaso de vidro. A Figura 4.1 mostra a bomba de vácuo e pressão da Quimis, com o filtro de óleo para evitar danos à bomba e o registro de válvulas para alternar o modo vácuo ou pressão.

Figura 4.1. (a) Bomba de vácuo e pressão Quimis Q355B. A saída da esquerda fornece pressão positiva e a da direita, pressão negativa. (b) Filtro de óleo (SAE 20W40) para proteção em um kitassato de 0,5 L para o modo de pressão negativa. (c) Sistema de válvulas em latão e registro de esfera desenvolvido para a bomba trabalhar de modo alternado (pressão/vácuo) sem remoção de mangueiras.

Após a construção, diversos ensaios foram realizados para se definir os parâmetros de interesse do calorímetro e fundamentais para que ele possa ser usado por um laboratório de calibração.

Capítulo 5: Resultados e Discussão

5.1 Etapa 1: Projeto dos componentes

Um calorímetro para uso em dosimetria pode ser adiabático (ou quase adiabático), isotérmico e diferencial. O calorímetro quase adiabático pressupõe um núcleo de certo material isolado do ambiente externo, impedindo a transferência tanto de energia quanto de matéria. Deste modo, a variação de temperatura interna do núcleo de água deve-se exclusivamente à exposição da radiação ionizante. O calorímetro isotérmico mede o fluxo de calor que sai do núcleo para que a temperatura original continue constante. O calorímetro diferencial é similar ao isotérmico, exceto pelo fato que neste o fluxo de calor medido é o que transita entre dois núcleos.

Baseado nos modelos de calorímetros observados ao redor do mundo, o procedimento com o melhor custo benefício parece ser a medição de temperatura. A tecnologia de termistores e termopares permite boa precisão e exatidão a custos vantajosos. Como é mais barato e simples isolar um volume de água do ambiente externo, o modelo quase adiabático foi escolhido.

O calorímetro adota uma simetria cilíndrica. O núcleo de água possui 30 cm de diâmetro por 30 cm de altura. Tal núcleo é selado com vidro (ou acrílico) e preenchido com água ultra pura (UPW tipo I) ou água destilada. Em torno deste recipiente há uma barreira de calor ativa, composta por água e fluido anticongelante efetuando circulação forçada, garantindo que

o núcleo esteja à temperatura desejada. A segunda barreira consiste de acrílico e é envolta por uma barreira de calor passiva, vácuo, lacrado por outra parede de acrílico. Todas as camadas estão aterradas e com o mínimo de contato entre uma camada e outra. Para evitar o defeito de calor (h_c), que introduz ruído às medições de temperatura, foi decidida a redução da concentração de oxigênio da água e substituição por gás nitrogênio. Todas as paredes foram dimensionadas para espessura de 5 mm. Quando completo, foi idealizado que o calorímetro contaria com uma pequena camada adicional de isopor e madeira (ou alumínio). Nesta etapa o calorímetro opera em 277 K, ou seja, à temperatura onde a água tem densidade máxima e portanto correntes convectivas mínimas. A Figura 5.1 ilustra o esquema de todos os subsistemas que compõem o sistema de dosimetria escolhido. É importante destacar aqui que este foi o modelo de equipamento que se almejou.

Por mudanças no contexto econômico e posteriores adaptações que se tornaram evidentes, o protótipo construído ficou diferente da versão inicial. O exemplo mais significativo foi a remoção da camada responsável pela troca ativa de calor, responsável pelo ajuste da temperatura inicial do núcleo de água. Outros exemplos se restringem à troca de um material isolante por outro ou acréscimo de materiais que não haviam sido considerados, como a massa de calafetar para ajudar na vedação do calorímetro. Portanto, o calorímetro simulado e o construído são diferentes, como é de se esperar na construção de qualquer protótipo; ainda assim, os conceitos aprendidos na etapa de simulação forneceram parâmetros para se começar o projeto e mostraram possíveis caminhos que futuros protótipos podem tomar.

Figura 5.1. Esquema de todos os “subsistemas” e suas relações no sistema de medição de energia depositada de radiação gama.

A Figura 5.2 apresenta o calorímetro desenhado no Ansys Design Modeler 14. As camadas de madeir/isopor/alumínio foram omitidas.

Figura 5.2. Calorímetro de água desenhado no software Desing Modeler 14 da Ansys. As partes em acrílico estão translúcidas.

Há 4 entradas para o fluido refrigerante e também 4 saídas. Todos os dutos têm 1 cm de diâmetro e velocidade constante de 0,77 m/s a 253 K (ou -20°C , temperatura inicial, na entrada; este também é o menor valor de temperatura que *chillers* comerciais atualmente atingem). Estes parâmetros foram escolhidos de acordo com as especificações de *chillers* comerciais, como os da PolyScience (modelo EW-12930-32).

A Figura 5.3 ilustra a mesma geometria desenhada no Design Modeler 14 agora no MCNP5, junto ao feixe quadrado (14,5 cm de aresta) de ^{60}Co posicionado a 117 cm da janela do núcleo de água, alinhado com o eixo de simetria do calorímetro. A abertura do feixe tinha um cosseno diretor de 0,999 (ângulo entre o eixo de simetria e a direção de propagação do feixe mais externa). A Tabela 5.1 apresenta o espectro de radiação do ^{60}Co empregado na simulação. Foram rodadas 5×10^8 histórias, tally *f8 nas esferas imaginárias da matriz com 0,5 cm de raio, situada no plano axial (simetria) distanciadas uma da outra por 2 cm.

Figura 5.3. Calorímetro modelado no MCNP5 (imagem obtida pelo software VISED X_22). (a) Vista do feixe de radiação e do caminho percorrido pelos fótons (em verde) e (b) imagem aproximada do calorímetro em si, com as respectivas estruturas internas e as esferas imaginárias onde o *tally* *f8 (deposição de energia) era aplicado (volume das 11 x 10 esferas de água dentro do núcleo, também de água).

As Figuras 5.4 e 5.5 apresentam os perfis de temperatura radial (plano de corte na metade da altura do núcleo) e axial (passando pelo eixo de simetria), obtidos com o Fluent.

Os resultados da simulação do MCNP5 são apresentados nas Figuras 5.6 e 5.7. Nestas figuras a energia depositada pelo feixe de ^{60}Co é mostrada de acordo com a profundidade em relação à janela de entrada do feixe e o perfil radial é relativo à distância ao eixo de simetria do calorímetro. Com o cálculo de distribuição de energia absorvida e estimando um defeito de calor h_c de -0,3 %, foi possível mapear a distribuição de temperaturas em várias regiões do núcleo de água, para o feixe proposto, supondo uma irradiação ininterrupta de 45 min. As Figuras

5.8 e 5.9 apresentam o cálculo do perfil de temperatura usando uma fonte de ^{60}Co com 18,5 GBq (500 Ci) e 7,4 GBq (200 Ci).

Tabela 5.1. Espectro de radiação gama de uma fonte de ^{60}Co [LBNL, 2016].

Energia (MeV)	Intensidade (u.a.)
0,347	$8,0 \times 10^{-3}$
0,826	$8,0 \times 10^{-3}$
1,173	$9,9974 \times 10^1$
1,333	$9,9986 \times 10^1$
2,159	$1,0 \times 10^{-3}$
2,505	$2,0 \times 10^{-6}$

Figura 5.4. Perfil radial de temperatura no núcleo de água à meia-altura do calorímetro em $t=0$ s (linha vermelha) e em $t=1830$ s (linha azul). Resultados obtidos pelo Fluent.

Figura 5.5. Perfil de temperatura axial no eixo de simetria do calorímetro em $t=0$ s (linha vermelha) e em $t=1830$ s (linha azul). Resultados obtidos pelo Fluent.

Figura 5.6. Energia depositada por partícula em função da profundidade do núcleo de água no eixo de simetria (eixo de irradiação).

Figura 5.7. Energia depositada por partícula simulada em função da distância do eixo axial para diversas profundidades no núcleo de água (referencial para o valor de profundidade: janela de entrada de radiação).

Figura 5.8. Perfil da variação de temperatura em relação à referência de 277 K na matriz (11 x 10 esferas situadas no plano axial do núcleo de água) de esferas imaginárias utilizando a fonte de ^{60}Co com 18,5 TBq (500Ci).

Figura 5.9. Perfil da variação de temperatura em relação à referência de 277 K na matriz (11 x 10 esferas situadas no plano axial do núcleo de água) de esferas imaginárias utilizando a fonte de ^{60}Co com 7,4 TBq (200 Ci).

5.2 Etapa 2: Construção da Unidade de Tratamento de Água

Boa parte da complexidade do sistema e parte essencial do trabalho foi a Unidade de Tratamento de Água (UTA), porque é nela que a água é preparada para então ser transferida para o calorímetro. É na UTA portanto que a concentração de oxigênio é reduzida, os gases são dissolvidos e o controle de qualidade de parâmetros como pH, sólidos dissolvidos, temperatura e pressão são conhecidos (com os kits de instrumentos multiparâmetros da IMPAC e INSTRUTEMP). Esta opção foi

feita de forma a tornar o calorímetro em si o mais simples e robusto possível, evitando componentes e peças que poderiam futuramente quebrar ou adicionar peso desnecessário.

A peça principal da UTA é o vaso de vidro; suas saídas inicialmente sem uso (mas que permitirão em outros trabalhos futuros a inserção de outros instrumentos de medição, o posicionamento de novos equipamentos ou a adição de solutos) foram seladas com rolhas de borracha, presas com abraçadeiras de metal (Figura 5.10a). Ele é preso lateralmente com a braçadeira plástica na haste de sustentação e com o tripé na parte inferior. A manta térmica foi usada para envolvê-lo, podendo fornecer diretamente calor de forma estável para o vaso de vidro (painel de controle na Figura 5.10b). Com uma massa de 3,5 kg e posicionado acima do vaso de vidro de 10L, o agitador mecânico precisou de modificações. Foi necessário confeccionar uma nova haste de sustentação, maior, com 1 m de comprimento e de aço (a original era um tubo de alumínio com 70 cm). A haste com pás também foi prolongada em 20 cm para melhor posicionamento dentro do vaso de vidro.

O selo mecânico de Teflon foi responsável pela inserção da haste de agitação metálica no vaso de vidro de forma a manter a pressão interna do vaso, mesmo com o agitador em funcionamento. As válvulas seletoras inferiores, para passagem de líquido, são de vidro borossilicado e as superiores, para passagem de gás, são de latão e aço (Figura 5.10c). Todas as conexões metálicas contaram com isolamento em fita Teflon (vedação por rosca e esmagamento).

Figura 5.10. (a) Rolhas de borracha n.10 presas à tampa do vaso de vidro mediante abraçadeiras metálicas. (b) Painel de controle desenvolvido para a manta térmica Higherflex (Controlador Proporcional Integral Derivativo, chave liga/desliga e fusível de proteção). (c) Válvula seletora superior para passagem de gás em latão com registros do tipo esfera.

A Figura 5.11 apresenta a UTA completa, incluindo um reservatório de suporte para água com capacidade para 30 l, posicionado entre o filtro de água e a UTA. É importante salientar que praticamente todos os componentes vistos na figura foram modificados ou mesmo projetados do início. As medições de concentração de oxigênio, condutividade, temperatura, sólidos dissolvidos e pH podem ser executadas com o kit multi-parâmetro da IMPAC modelo WA-2015 (Figura 5.11d).

Figura 5.11. (a) A Unidade de Tratamento de Água (UTA), junto ao reservatório de água filtrada destilada e a bomba de vácuo. (b) Dispersor de gases de vidro, posicionado dentro do vaso de vidro. (c) Válvulas seletoras de vidro, responsáveis por canalizarem a água tratada para o seu destino (calorímetro ou descarte) ou introduzirem a água não tratada proveniente do tanque. (d) Multi-parâmetro IMPAC WA-2015.

Os suportes para os termopares do calorímetro, confeccionados em plástico PLA, foram modelados em 3D (com o Design Modeler) e posteriormente impressos na impressora UP+2. Como o volume útil de impressão deste modelo era de apenas 14 cm x 14 cm x 14 cm, o suporte foi desenhado em partes, encaixando um a um, em 22 segmentos diferentes, das quais apenas 4 utilizaram cola de cianoacrilato (tipo “Super bonder™”). A Figura 5.12 mostra a etapa de impressão na UP+2 de um dos

segmentos. O tempo médio de impressão foi de aproximadamente 25 min por segmento na “resolução” máxima.

Figura 5.12. (a) Impressora UP+2 em funcionamento. (b) Vista lateral da plataforma de impressão e bico injetor. (c) Vista isométrica do segmento impresso, este em questão é um dos 18 arcos de um dos anéis da estrutura de sustentação dos termistores.

Em seguida foi iniciada a construção do calorímetro em si, seguindo a ordem de “dentro para fora”. Sendo assim, foram criados inicialmente os suportes para os termistores (total de 2, situados em posições diametralmente opostas, na profundidade que o usuário desejar no núcleo de água). Os suportes prontos são mostrados na Figura 5.13.

Figura 5.13. (a) Suporte em plástico ABS para os termistores; a base em forma de anel com quase 30 cm de diâmetro foi encaixada no fundo do vaso que contém água. (b) Detalhe do encaixe do termistor (20 mm de diâmetro interno e 1 mm de espessura). Por meio de 6 parafusos (0,6 cm de diâmetro), a ponta responsável pela medição poderá ser posicionada de acordo com o aperto dos parafusos. (c) Vista lateral do suporte com ênfase no trilho do suporte (0,5 cm de largura). A altura também poderá ser ajustada de acordo com o usuário mediante ajuste das borboletas metálicas.

A UTA, cuja função é preparar o meio aquoso, pobre em gás oxigênio e saturado de outros gases (gás nitrogênio, neste caso) apresentou uma curva de aquecimento para um volume de água de 7,5 L mostrada na Figura 5.14. A curva preta representa a série de dados referente ao aquecimento sem agitação mecânica e a curva vermelha representa a curva de aquecimento com agitação mecânica de 500 rpm. A Figura 5.15 apresenta a respectiva saturação de gás nitrogênio obtida ao longo do tempo em que a UTA prepara a solução.

Figura 5.14. Curvas experimentais de temperatura referente ao sistema de aquecimento da UTA para um volume de água de 7,5 L com e sem o sistema de agitação mecânica.

Figura 5.15. Curvas de solubilidade prevista do gás nitrogênio para as duas configurações de operação da UTA (com e sem sistema de agitação mecânico).

A partir das Figuras 5.14 e 5.15 pode-se concluir que o sistema de agitação mecânico permite uma velocidade de aquecimento maior em relação ao sistema funcionando unicamente por convecção. Outro fator importante é que a curva referente ao sistema agitado se comporta de forma mais estável e sem muitos desvios em relação à tendência dos pontos. Resumindo, embora a diferença de solubilidade e mesmo da temperatura não sejam tão grandes assim ao longo do tempo, o ganho maior é devido à regularidade no aumento da temperatura. Apenas para tempos maiores que 2000 s, ou seja, cerca de 33 min a partir do início de operação da UTA, é que se nota alguma diferença razoável entre um tipo de operação e outro. É importante ressaltar que o sistema de agitação mecânico não é apenas utilizado para uniformizar a distribuição de calor quando a manta estiver operando, mas também para auxiliar a remoção do oxigênio quando o volume de água estiver sendo aquecido.

Supondo que o comportamento das curvas de aquecimento seja razoavelmente constante para diversos volumes de água (questão de simetria cilíndrica), pode-se ajustar uma curva para prever a temperatura e solubilidade de N₂ ao longo de qualquer tempo desejado sem uma medição explícita, apenas consultando a curva de temperatura no tempo desejado. Em ambas as curvas da Figura 5.15 foram ajustadas uma função exponencial cujo modelo é apresentado na Equação 5.1.

$$T (^{\circ}C) = A + Be^{Ct} \quad (5.1)$$

onde T é a temperatura, em graus Celsius, e t é o tempo, em segundos, de operação da UTA. A Tabela 5.2 apresenta os coeficientes de ajuste para ambas os modos de operação.

Tabela 5.2. Coeficientes da Equação 5.1 para estimativa da temperatura alcançada pelo volume de água em função do tempo de operação da UTA (em segundos). Os algarismos entre parênteses representam as incertezas associadas ao parâmetro apresentado. Assim, por exemplo, 62,53(36) é o mesmo que $62,53 \pm 0,36$.

	Sem agitação	Com agitação (500 rpm)
A	62,53(36) ¹	77,23(27)
B	-38,98(31)	-53,59(25)
C	-3,345(62)	-2,257(19)
R-quadrado	0,9993	0,9999

Os parâmetros obtidos da Tabela 5.2 permitem de forma relativamente rápida estimar a solubilidade de nitrogênio que se obtém em diversas temperaturas de operação da UTA; isso é especialmente interessante em análises qualitativas, ou seja, qual o impacto na solubilidade quando se requer operar com a água numa temperatura menor.

A preparação da água para uso no calorímetro consistiu do seguinte procedimento:

1. Preencher o vaso de vidro da UTA com cerca de 7 a 10 litros de água destilada por vez;
2. Ligar a manta térmica com *set-point* de 150 °C para aquecimento do líquido ao mesmo tempo em que o agitador mecânico era ligado em 500 rpm, o processo continuava até que ele alcançasse a temperatura de 30 °C;

3. Desligar o agitador mecânico e a manta térmica e então iniciar o bombeamento de gás N_2 através do dispersor de vidro, manter o processo por 15 min; a pressão é mantida constante (o gás nitrogênio é liberado para o meio externo do laboratório);
4. O registro é então parcialmente obstruído, de forma a se aumentar ligeiramente a pressão na UTA (**cuidado nesta etapa: a pressão não pode crescer livremente sem supervisão, caso contrário poderá ocorrer uma pequena explosão no vaso de vidro, potencialmente danificando o equipamento**);
5. Com a pressão ligeiramente positiva no interior do vaso de vidro, o fluxo de gás é interrompido; o registro de comunicação da UTA com o calorímetro é aberto e o líquido é escoado para o calorímetro pela diferença de pressão (para evitar o aumento da pressão interna no calorímetro, deixar as duas válvulas de fluxo de líquido abertas). Inicialmente o calorímetro é preenchido deitado até que o sistema de termistores esteja submerso; após este momento o calorímetro é mantido na posição vertical;
6. Repetir o processo até que o calorímetro tenha sido completamente preenchido com a água da UTA.

Após a montagem e caracterização da UTA e do sistema de sustentação dos termistores em plástico PLA, o próximo passo na construção foi a montagem do calorímetro em sí. Baseado nos conceitos aprendidos especialmente nas etapas de simulação e de montagem da UTA, foi construído um calorímetro com as seguintes características:

- Corpo em PMMA, com densidade de $1,18 \text{ g/cm}^3$;
- Paredes de PMMA com espessura de 5 mm;
- Vaso interno com diâmetro externo de 300 mm e diâmetro interno de 290 mm;
- Vaso externo de 350 mm e diâmetro interno de 340 mm;
- Distância lateral entre as camadas de 20 mm;
- Dois pés de plástico PLA com camadas de borracha de EVA fazendo a sustentação entre os dois vasos de acrílico (Figura 5.16a);
- Distância entre as camadas na janela de entrada de 10 mm;
- Duas válvulas de engate rápido na tampa do vaso interno de 8 mm cada (Figura 5.16b).
- Duas saídas com parafusos de polietileno e anéis de borracha para passagem da fiação dos termistores de forma a impedir vazamento de água (Figura 5.16c).
- Sistema de iluminação LED (12v DC) para visualizar melhor o interior do vaso interno de PMMA (especialmente para localizar possíveis impurezas e notar correntes de fluido, (Figura 5.17a);
- Barra magnética de 20 mm, revestida de epóxi (Figura 5.17b). Portanto além do sistema de sustentação de PLA e dos termistores (Figura 5.17c) foi adicionada no interior do vaso interno esta barra magnética (também conhecida como “peixinho”);
- Cada vaso de acrílico continha sua respectiva tampa, também em acrílico e lacrado com 12 parafusos cada (de comprimento

de 1 polegada e com cabeça sextavada n.7), dispostos uniformemente a cada 30°. Como foram utilizadas duas tampas e um anel de junção entre os dois vasos de acrílico, foram utilizados 3 x 12 conjuntos de parafusos/arruelas e porcas (Figura 5.18a). A vedação foi complementada com massa de calafetar (inclusive nos dois parafusos de polietileno);

- Sistema de aquisição de dados Omega OM-USB-5203 com 8 canais, resolução de 24 bits (incluso *software* de aquisição de dados da Omega, o TracerDAQ 2.3.3.0 e o sistema de configuração e calibração dos termistores InstaCal 6.51):
Figura 5.18b.

A Figura 5.18c apresenta um engate com um ímã para posicionamento em uma parafusadeira elétrica (que também é utilizada para abrir/apertar os 36 parafusos com porcas). Este engate permite girar a barra magnética de forma a agitar a água no interior do calorímetro sem a necessidade de abertura do meio; assim o perfil de temperatura no interior do calorímetro de água é uniformizado sempre que necessário. Note-se que foi abandonada a ideia inicial de um sistema de troca de calor ativo para operação em 4 °C (*water chiller*). A justificativa para esta mudança é que o valor do *chiller* comercial ficou muito acima do orçamento, isso devido à alta do dólar no tempo entre o projeto e a construção do equipamento (de R\$1,90 para R\$3,20). Sendo assim, o calorímetro contou apenas com barreiras passivas na troca de calor (o vácuo entre as camadas do calorímetro).

Figura 5.16. (a) Pés de plástico PLA que reforçam a sustentação do vaso interno quando estiver dentro do vaso onde se faz vácuo (minimizando a tensão sobre os parafusos que interligam os dois vasos). (b) Válvula para entrada ou saída de fluido. Há duas, uma em cada lado da tampa do vaso interno de PMMA. (c) Parafuso de polietileno para passagem da fiação dos termistores.

Figura 5.17. (a) Sistema de iluminação LED (duas faixas com cerca de 14 cm de extensão). (b) Suporte em plástico PLA para os termistores. (c) Barra magnética no interior do vaso de PMMA, junto com a água do núcleo do calorímetro.

Figura 5.18. (a) Conjunto de parafusos/arruelas/porcas de fixação das tampas e da ligação entre os dois vasos de PMMA. (b) Sistema de aquisição de dados OMEGA OM-USB-5302. (c) Acessório da parafusadeira para agitar a barra magnética (ímã fixado em um eixo de aço inox de 5 mm de diâmetro).

A Figura 5.19 apresenta o desenho esquemático do vaso de PMMA externo (corte lateral). A Figura 5.20 apresenta a parte superior (a) e inferior (b) do vaso interno.

Figura 5.19. Desenho esquemático (corte lateral) do vaso de PMMA externo. Os furos α são conjuntos de 12 furos com 4 mm de diâmetro dispostos de 30° em 30°, sempre afastados 5 mm da borda mais próxima.

Vista da tampa do vaso externo de PMMA

Fundo do vaso externo de PMMA

Figura 5.20. (a) Vista superior do vaso de PMMA externo (tampa) e (b) vista inferior do vaso de PMMA externo.

Figura 5.21. Desenho esquemático do vaso de PMMA interno. (a) Corte lateral e (b) vista superior do vaso (tampa). Os quatro furos β são para passagem de fluidos e encaixe dos parafusos de polipropileno.

A Figura 5.22 mostra o calorímetro completo (sem a camada externa de PMMA) em transporte, enquanto a Figura 5.23 mostra o calorímetro posicionado, pronto para medição.

Figura 5.22. Calorímetro com núcleo de água em transporte (sem o vaso externo para produção de vácuo). Peso aproximado: 25 kg.

Figura 5.23. Posicionamento do calorímetro para irradiação (sala 9 do LCI).

Um detalhe importante a se destacar é que todas as regiões onde o acrílico foi colado foram reforçadas com cola cianoacrilato (para evitar possíveis vazamentos).

A Tabela 5.3 apresenta o valor aproximado, em reais, no momento da compra, dos principais itens utilizados no projeto e construção do

calorímetro. Os valores indicados não foram reajustados pela inflação do período (2012-2016).

Tabela 5.3. Valores, em reais, investidos no projeto e construção do calorímetro com núcleo de água.

Item	Descrição	Valor (R\$)
1	EPIs e ferramentas básicas	70,77
2	Tubulação e válvulas de cobre 3/8" e mangueira p/ gás	304,10
3	Selo mecânico de politetrafluoretileno (Teflon)	480,00
4	Barra de aço inox (5m)	128,00
5	Mangueiras de silicone (12m), kitassato de vidro e rolhas de borracha	433,26
6	Óleo SAAE 20w40	20,00
7	Tinta emborrachada Plastifilm	74,00
8	Fita adesiva/telfon/baterias AA/Isolante	90,30
9	Rolo de plástico ABS para impressora 3D (1kg)	110,00
10	Kit multiparâmetro IMPAC	2600,00
11	Parafusadeira/furadeira	200,00
12	Manta de aquecimento 1000W	3100,00
13	Agitador mecânico FISATOM	2200,00
14	PT100 INSTRUTEMP (eletrônica inclusa)	1000,00
15	Bomba de pressão e vácuo	2000,00
16	DAQ Omega (software + hardware)	4500,00
17	Vaso de vidro borossilicado 10 L	9000,00
18	PMMA (incluindo montagem)	4000,00
TOTAL		30.310,43

5.3 Etapa 3: Irradiação e testes de uso

5.3.1 Fontes da GMR

Inicialmente o calorímetro foi testado nas fontes de cézio da GMR, a primeira contava com uma atividade de 3,3 TBq (90 Ci) e a segunda, da empresa Siemens modelo Caesa, contava com 15,54 TBq (420 Ci) e já

havia sido caracterizada do ponto de vista dosimétrico (no ar) para diversas distâncias com o *software* Dose 1.1 (disponível no LCI do IPEN).

A Figura 5.24 mostra as séries temporais da temperatura quando os termistores foram posicionados em 5,5 cm de profundidade na água destilada saturada com nitrogênio para a fonte de 3,3 TBq num intervalo de 6,5 h (após o calorímetro ficar na sala por 3 dias, com o objetivo de minimizar a interferência da condução térmica). Neste período, o calorímetro ficou os primeiros 30 min sem irradiação, e então se alternou períodos de 60 min de irradiação e de “repouso”, até que se completasse o período das 6,5 h.

A Figura 5.25 mostra série temporal da temperatura da fonte Caesa num período total de 8 h (após o calorímetro “repousar” na sala 5 por 1 dia). O equipamento foi exposto por 2,5 h (150 min) e então repousou por 5,5 h (330 min).

Nota-se que o calorímetro não estava operando no modo “quase adiabático”, ou seja, estava sem o vaso externo de PMMA com o qual se produz o vácuo. Como consequência, houve trocas de calor significativas com o ambiente, de forma que foi necessário levar em conta que a temperatura da água na posição onde os termistores foram posicionados variava não somente devido à radiação. A justificativa para operar o equipamento num modo bem mais complexo (irradiação + condução de calor entre o calorímetro e o meio externo) é que devido à energia do ^{137}Cs (662 keV) ser bem menor que a do ^{60}Co (energia média de 1250 keV), a camada adicional de PMMA para obtenção do vácuo poderia atenuar ainda mais o feixe levando a uma dificuldade muito maior na diferenciação do sinal em relação ao ruído eletrônico.

Figura 5.24. Temperatura dos termistores em função do tempo da medição de temperatura para a fonte de ^{137}Cs de 3,3 TBq (90 Ci) da sala 7 durante 6,5 h. Períodos de irradiação e de “repouso” de 1 h cada foram alternados. As regiões destacadas em verde são denominadas Segmento 1 e 2.

Figura 5.25. Temperatura dos termistores em função do tempo da medição de temperatura para a fonte de ^{137}Cs de 15,54 TBq (420 Ci) da sala 5 (Caesa) durante 8h. As primeiras 2,5 h (150 min) foram de irradiação e então o calorímetro “repousou” por 5,5 h (330 min).

Observa-se que no primeiro caso, como mostrado na Figura 5.24, a possível troca de calor por condução chegou a uma certa estabilidade já que a temperatura não parece obedecer uma exponencial simples. A equação que descreve o aumento de temperatura de um meio que troca calor com o ambiente externo somente por condução em uma dimensão é:

$$T_C(t) = M + (T_0 - M)e^{-\kappa t} \quad (5.2)$$

onde T_c representa a temperatura do meio no instante t devido à condução de calor, M é a temperatura ambiente, T_0 é a temperatura inicial do meio e κ é a condutividade térmica do meio. Este comportamento fica até mais evidente na Figura 5.25, onde o tempo de medição total foi maior e o tempo em que o calorímetro esteve estabilizando termicamente foi menor (1 dia). Ambas as curvas mostram que o calorímetro está absorvendo calor do ambiente e assim, supondo que o acréscimo de temperatura devido à irradiação da fonte de césio seja linear (proporcional à taxa de dose), a variação total de temperatura nos períodos irradiados deve obedecer ao seguinte comportamento:

$$T(t) = T_c + T_I \quad (5.3)$$

onde T_I representa a contribuição na temperatura devido a exposição à fonte de césio. Supondo uma distância fonte-detector constante e desprezível o decaimento radioativo do césio em relação ao tempo de medição, então o acréscimo T_I deve ser proporcional à dose absorvida no meio (água, neste caso, e desconsiderando o defeito de calor), tem-se:

$$\frac{dT_I}{dt} = c \Delta T_I \longrightarrow \frac{dT_I}{dt} = \frac{4,186 \times 10^6 \text{ mGy}}{h} \frac{dT_I}{dt} \quad (5.4)$$

onde D é a dose absorvida, c o calor específico da água, t é o tempo, e T_I é a temperatura que a água alcança devido a deposição de energia por irradiação.

Logo, o comportamento das Figuras 5.24 e 5.25 pode ser explicado como uma competição de fenômenos de troca de calor. O primeiro

fenômeno é o recebimento de calor externo por condução que aquece o calorímetro (esse comportamento pode variar segundo M e T_0 na Equação 5.2), o segundo fenômeno é a exclusiva deposição de calor devida à irradiação (assim esta contribuição é sempre uma função crescente e linear, diferente do comportamento da condução térmica). Sendo assim, a partir da Equação 5.3, pode-se estimar T_i mediante a remoção da contribuição do acréscimo de temperatura devido à condução de calor nas medições dos termistores e consequentemente a taxa de dose absorvida pode ser estimada no meio utilizando-se a Equação 5.4.

Foram ajustadas equações do tipo $y = y_0 + Ae^{R_0 t}$ nos intervalos onde havia somente condução de calor, obtendo-se assim a constante de condutibilidade térmica (κ), e a temperatura ambiente (M), foi considerado que estes parâmetros se mantiveram constantes ao longo da medição nas salas 5 e 7 (com grande inércia térmica, por estarem num *bunker*). Percebe-se que para tempos muito grandes, o regime de condução vai perdendo importância, visto que a diferença de temperatura entre o calorímetro e o ambiente externo diminui; neste caso, a influência da irradiação no acréscimo de temperatura fica mais relevante. Sendo assim, é preferível a realização da análise em períodos onde o calorímetro teve o máximo tempo possível para “repouso” e para estabilizar termicamente. No caso onde o calorímetro “repousou” por 3 dias, este cenário tornou-se ainda mais plausível. Assim, a função exponencial para tempos de medição muito menores em relação ao tempo em que o calorímetro ficou “repousando” no ambiente pode ser aproximada por uma reta, já que:

$$e^x \sim 1 + x \quad (5.5)$$

A Tabela 5.4 apresenta os parâmetros de ajuste da Figura 5.24 (retas) e a diferença entre as inclinações e taxa de dose estimada estão na Tabela 5.5.

Tabela 5.4. Coeficientes dos ajustes lineares da Figura 5.24. Supõe-se que a condução térmica varia a uma taxa constante.

Segmento	Período	Coef. Linear (°C)		Coef. Angular (°C/s)		R ajuste
		Valor	Incerteza	Valor	Incerteza	
1	Sob irradiação (140-190min)	21,54634	4,9E-05	2,5775E-06	4,9E-09	0,988
	Repouso (200- 250min)	21,55440	8,5E-05	1,9226E-06	6,3E-09	0,970
2	Sob irradiação (260-315min)	21,53834	8,3E-05	2,9548E-06	4,8E-09	0,991
	Repouso (320-400min)	21,54593	9,5E-05	2,5787E-06	4,4E-09	0,989

Tabela 5.5. Valores das diferenças de inclinação das retas ajustadas nas duas últimas seções de irradiação/repouso e as taxas de dose estimadas (indicados na cor verde da Figura 5.24).

Segmento	Diferença no coeficiente angular (°C/s)	Incerteza	Taxa de Dose (mGy/s)	Incerteza
1	6,549E-07	7,9E-09	2,741	3,3E-02
2	3,761E-07	6,5E-09	1,574	2,7E-02
Valor médio	5,1E-07	1,4E-07	2,158	5,8E-01

Como a fonte da sala 7 não teve suas características dosimétricas ainda determinadas (pois foi adquirida recentemente pelo LCI), não foi possível comparar este valor de taxa de dose com as respostas de equipamentos calibrados. No entanto, fica evidente a diferença de comportamento da curva de temperatura em instantes com e sem

irradiação, portanto pelo menos o calorímetro percebeu a deposição de radiação ionizante no meio.

No caso da Figura 5.25, o comportamento exponencial da condução térmica não pode ser desprezado. Sendo assim, foram ajustadas curvas exponenciais nos períodos de irradiação e de “repouso”. A Tabela 5.6 apresenta os valores dos parâmetros y_0 , A e R_0 nos momentos de “repouso” e de irradiação.

Tabela 5.6. Parâmetros ajustados da equação exponencial $y = y_0 + Ae^{R_0 t}$ para o período com e sem irradiação da Fig. 5.25.

Situação	Y_0	Incerteza	A	Incerteza	R_0	Incerteza	R (ajuste)
Sob irradiação	23,32043	2,3E-02	-1,50946	0,02269	-3,60E-05	5,71E-07	0,988
Repouso	22,63827	7,1E-04	-0,83601	6,39E-04	-7,22E-05	9,27E-08	0,999

O ajuste no intervalo de “repouso” tem um “ R ” (ajuste) melhor, visto que neste caso a equação exponencial é exatamente o padrão de comportamento no momento em que o calorímetro está “descansando”. Há aqui mais uma evidência de que o sistema é sensível à radiação, já que as exponenciais ajustadas diferem consideravelmente.

Considerando que a temperatura ambiente e a constante de condutibilidade térmica se mantêm constantes ao longo de todo o tempo de medição, foi excluído então da Figura 5.25 a exponencial referente à condução térmica (150 min em diante), ficando com apenas a contribuição pela irradiação. A Figura 5.26 apresenta as diferenças entre a temperatura da medição e a temperatura que se calcula ser devida à contribuição da condução. Um ajuste linear durante a primeira hora permitiu estimar a taxa de dose. Os parâmetros do ajuste linear estão apresentados na Tabela 5.7.

Figura 5.26. Diferença de temperatura da medição dos termistores e a da temperatura referente à contribuição da condução térmica no período de irradiação.

Tabela 5.7. Parâmetros da reta ajustada na primeira hora de medição da Figura 5.26.

Período	Coef. Linear (°C)		Coef. Angular (°C/s)		R (ajuste)
	Valor	Incerteza	Valor	Incerteza	
Sob irradiação (0- 60min)	-2,93E-05	2,0E-05	3,750E-06	3,0E-08	0,932

Portanto, a taxa de dose estimada, segundo a Equação 5.3 é de 15,69(12) mGy/s ou em outra unidade, 56,51(43) Gy/h. O *software* Dose 1.1 estima um valor 50 vezes menor no ar: 0,33 mGy/s. Esta diferença se deve ao fato de se tratarem de meios diferentes, mas a grande responsável pela diferença é a baixa energia do cézio, cuja intensidade muito provavelmente é atenuada até interagir com a região

onde os termistores estão posicionados na água, fazendo com que a relação sinal/ruído ainda seja muito baixa, mesmo com o calorímetro operando sem a camada extra de PMMA.

Foi então obtida uma primeira estimativa para a taxa de dose na água para uma profundidade de 5,5 cm com 100 cm de ar (umidade relativa de 46,5%, pressão de 93,18 kPa e temperatura ambiente de 21,6 °C).

Esta foi a forma inicial desenvolvida para, a partir da medição da temperatura registrada pelos termistores numa dada posição dentro do volume de água, estimar a dose absorvida num sistema que não pode ser adiabático devido ao tipo de fonte empregada na GMR (fontes com energia média baixa). Estimar a dose absorvida num sistema adiabático ou próximo de adiabático se torna bem mais simples, visto que o acréscimo de temperatura nos sensores se deve quase que exclusivamente à radiação.

5.3.2 Fonte panorâmica do CTR

Após os testes com as fontes de ^{137}Cs (as mais ativas disponíveis no LCI), o calorímetro foi transportado até as dependências do laboratório do CTR/IPEN. Lá foram conduzidas a irradiação do calorímetro na fonte panorâmica de ^{60}Co em duas situações distintas. Uma o calorímetro foi posicionado encostado no tubo da fonte, de forma que os termistores estavam à 6 cm de distância do tubo e outra à distância de 11 cm (5 cm de ar mais os 6 cm entre a janela do calorímetro e os termistores). A Figura 5.27 mostra a série temporal da temperatura à distância de 6 cm num período total de 8 h (7 h sob irradiação e então 1 h em “repouso”).

Figura 5.27. Temperatura em função do tempo de medição do calorímetro, no feixe de radiação da fonte panorâmica de ^{60}Co 6,9 TBq (187 Ci) do CTR à distância de 6 cm da fonte.

Novamente o calorímetro operou sem a camada externa, onde se produz o vácuo, mesmo para uma fonte de cobalto. A razão para isto é que se desejava maximizar novamente o fluxo de fótons na região dos termistores, já que no CTR a energia é maior (^{60}Co), mas o valor da atividade é neste caso menos da metade da fonte de ^{137}Cs da sala 5 da GMR.

Foi então ajustada uma exponencial para condução térmica referente a última hora de medição, quando a fonte já estava desligada. O objetivo foi novamente tentar estimar a parcela da temperatura que, neste caso diminuiu graças à perda de calor com o ambiente (a sala da fonte estava

numa temperatura menor que o calorímetro). Os parâmetros da função exponencial ajustada para os últimos 60 min estão na Tabela 5.8.

Tabela 5.8. Parâmetros da função exponencial ($y = y_0 + Ae^{R_0 t}$) na última hora de medição (sem irradiação, apenas perda de calor por condução).

	Y_0	Incerteza	A	Incerteza	R_0	Incerteza	R (ajuste)
Período (420- 480 min)	19,822	0,025	2,896	0,017	-2,329E-05	3,8E-07	0,999

Em seguida foi considerado que a temperatura ambiente e a constante de condutibilidade térmica foram constantes durante toda a medição. Assim foi calculada a diferença de temperatura entre a medição dos termistores e a parcela estimada referente a condução de calor. A Figura 5.28 apresenta estas diferenças.

Figura 5.28. Diferença de temperatura entre a medição e a parcela da temperatura referente à condução de calor (neste caso do calorímetro para o ambiente) durante as 7 h de medição no feixe da fonte de ^{60}Co no CTR.

Para o período entre 200 e 400 min, a diferença entre a medição e a parcela da temperatura devido à condução se comporta como uma reta crescente, ou seja, em um dado momento a condução começa a se tornar insignificante frente ao acréscimo de temperatura devido à radiação. Sendo assim, neste período de linearidade, a deposição de calor pela radiação predomina e o coeficiente angular da reta ajustada no período está relacionado com a taxa de dose absorvida. Os valores acima de 400 min devem ser desconsiderados já que depois deste tempo a fonte não irradia mais o calorímetro (volta para o regime de condução térmica simples, portanto esta diferença não tem mais sentido). A Tabela 5.9 apresenta os dados da reta ajustada entre 200 e 400 min.

Tabela 5.9. Parâmetros da reta de ajuste no intervalo de 200 a 400 min da Figura 5.28.

Período	Coef. Linear (°C)		Coef. Angular (°C/s)		R (ajuste)
	Valor	Incerteza	Valor	Incerteza	
Sob irradiação (200- 400min)	0,033057	1,1E-05	1,27390E-06	6,1E-10	0,997

O valor do coeficiente angular fornece uma taxa de dose de 5,3325 (26) mGy/s ou 19,1972(94) Gy/h. Um dado que deve ser considerado e que foi percebido posteriormente é que a região dos termistores ficou a uma altura de 21,5 cm em relação ao nível da mesa. Como a fonte tem extensão de 20 cm e após essa altura segue uma tampa de aço inox e chumbo de 2 cm, é certo que os termistores ficaram em uma região de penumbra ou mesmo de sombra do feixe de radiação, portanto a taxa de dose em água à distância de 6 cm foi certamente subestimada.

Em 11 cm de distância dos termistores em relação à fonte espera-se que este efeito de blindagem indesejável seja menor; nesta nova medição,

o equipamento “repousou” na sala da fonte do CTR, sendo assim espera-se um impacto da condução térmica menor (supondo estabilidade térmica do ambiente, o *Bunker* da fonte no caso). A Figura 5.29 apresenta o perfil de temperatura ao longo do tempo nesta nova medição.

Figura 5.29. Série temporal da temperatura quando os termistores estão a 11 cm da fonte (mas ainda a 21,5 cm de altura em relação à mesa). Os primeiros 20 min os termistores foram ligados, mas a fonte não estava exposta, então ocorreram as 2 h de irradiação e por fim a última hora foi de “descanso”.

Percebe-se que agora o calorímetro está esquentando, ou seja, agora ele está recebendo calor do meio, indicando que durante a noite a temperatura do *Bunker* caiu a um nível menor que a temperatura do volume de água (portanto não há tanta estabilidade térmica como se

desejaria para longos períodos). Mas como o comportamento da curva da Figura 5.29 tende à linearidade, aparentemente as trocas de calor por condução já diminuíram (pelo menos saindo da região de maior gradiente da curva exponencial). Este é um caso bem parecido com o da sala 7 do GMR (Figura 5.24 onde há a sucessão de retas com inclinações diferentes); assim, neste caso foram novamente ajustadas duas retas e foi analisada a diferença do coeficiente linear entre elas (com e sem irradiação). Novamente considerou-se que a constante de condutibilidade térmica e a temperatura ambiente estavam constantes durante a medição dos termistores. A Tabela 5.10 apresenta os parâmetros das retas ajustadas a partir da Figura 5.29.

Tabela 5.10. Dados das retas ajustadas no período de irradiação e de “repouso” da Figura 5.29.

Período	Coef. Linear (°C)		Coef. Angular (°C/s)		R (ajuste)
	Valor	Incerteza	Valor	Incerteza	
Sob irradiação (20- 140min)	20,191732	1,5E-05	6,1865E-06	3,6E-09	0,998
Repouso (140- 200min)	20,204584	6,5E-05	4,5725E-06	6,3E-09	0,994

A diferença de coeficientes angulares foi de $1,614\text{E-}6$ °C/s o que corresponde a uma taxa de dose na água de 6,756(30) mGy/s ou 24,32(11) Gy/h. Note-se que resultou em uma taxa de dose maior que quando o calorímetro estava mais perto da fonte, confirmando a suspeita de que muito próximo, à altura de 21,5 cm, os termistores estavam em uma região encoberta do feixe por obstáculos, possivelmente coletando fótons espalhados. Recomenda-se, para medições neste feixe de radiação abaixar o nível do calorímetro em relação à mesa para que os termistores não fiquem em regiões de penumbra ou sombra, afetando as medições.

Capítulo 6: Conclusão

Foi apresentado o desenvolvimento de um calorímetro com núcleo de água como detector de radiação para a dosimetria de radiação gama para o Laboratório de Calibração de Instrumentos do IPEN. Mediante simulação computacional (MCNP5 e FLUENT 14), foi iniciada a escolha, a adaptação e o planejamento do melhor modelo entre alguns disponíveis internacionalmente que atendesse às necessidades do LCI. Com os resultados das simulações, o calorímetro adiabático foi selecionado, e definidos seus parâmetros de construção, como dimensão, materiais constituintes, pressões e temperaturas de operação, gases de saturação para controlar o defeito de calor, e a metodologia de preparo da água a ser irradiada. Uma Unidade de Tratamento de Água também projetada e construída e mostrou-se um equipamento bastante versátil na elaboração de praticamente qualquer meio líquido (ácido ou alcalino) para ser posteriormente irradiado. A ideia é que embora o objetivo principal seja dosimetria em água, o usuário tenha a liberdade de utilizar a UTA; assim, este sistema poderá ser expandido como uma plataforma de dosimetria para radiação gama, expondo-se soluções orgânicas ou inorgânicas.

Em seguida foi descrita a montagem do calorímetro em sí. O equipamento contou com dois invólucros de PMMA, um interno que continha a água destilada saturada com N_2 , o suporte de plástico PLA e os dois termistores. A segunda camada, também em PMMA, que era responsável por blindar termicamente o calorímetro, garantindo um sistema quase adiabático, acabou não sendo empregada devido aos tipos

de fontes da GMR e do CTR (ou baixa energia e alta atividade ou alta energia e atividade menor); sendo assim, por uma questão de eficiência na coleta de dados, foi removida a camada externa de acrílico evitando uma atenuação maior. Ainda assim é perfeitamente possível a realização de medições com a camada externa e em regime quase adiabático, desde que esta segunda camada seja retornada para a estrutura do calorímetro.

Nas medições tanto na GMR quanto no CTR foram escolhidos então regimes onde a condução térmica era considerável e foi criada uma metodologia para se descontar esta fração indesejável de energia que não influenciava as doses absorvidas na água. As fontes da GMR mostraram-se pouco energéticas (^{137}Cs) para a profundidade de termistores considerada (5,5 cm). No CTR a fonte era mais energética (^{60}Co), mas a atividade não era tão alta quanto a da sala 5 da GMR; no entanto, em todos os casos foram obtidas as taxas de dose absorvidas na água em algumas condições específicas.

Fica comprovado que o calorímetro de água desenvolvido neste trabalho é viável do ponto de vista da utilização em dosimetria de feixes de pelo menos média atividade de ^{137}Cs e ^{60}Co . No entanto, ainda são necessários vários testes e aprimoramentos para que este detector absoluto possa um dia ser um padrão primário. Mesmo assim, este protótipo se mostrou viável do ponto de vista operacional e é o primeiro detector de radiação gama do Brasil baseado em métodos calorimétricos em um núcleo de água líquida.

Como sugestão de futuros trabalhos, pode-se listar:

- Aprimorar a metodologia de subtração de condução térmica quando o equipamento operar sem sua segunda camada (sem vácuo);

- Desenvolver uma blindagem de chumbo para proteger o sistema de aquisição de dados OM-USB-5302 de eventuais danos de radiação, especialmente em fontes panorâmicas e fontes de alta atividade;
- Testar se o semicondutor do termistor sofre danos cumulativos com as irradiações de forma a comprometer sua reprodutibilidade, especialmente em irradiadores ou fontes com altas taxas de dose;
- Avaliar a influência de impurezas na água no núcleo do calorímetro na obtenção da taxa de dose;
- Comparar as taxas de dose obtidas experimentalmente com simulações computacionais (MCNP) ou outros dosímetros, como câmaras de ionização.

Capítulo 7: Referências Bibliográficas

ATTIX, F. H. **Introduction to Radiological Physics and Radiation Dosimetry**, 2ª ed., Weinheim WILEY- VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2004.

BATTINO, R. **International Union of Pure and Applied Chemistry Commission on Solubility Data series – Nitrogen and Air**, Pergamon Press, v. 10, 1982.

BIPM. BUREAU INTERNATIONAL DES POIDS ET MESURES. **Site institucional**. Disponível em: <<http://www.bipm.org/en/home/>>. Acesso em: 15 ago. 2016.

BREDE, H. J.; HECKER, O.; HOLLNAGEL, R. An absorbed dose to water calorimeter for collimated radiation. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A**, v. 455, p. 721–732, 2000.

CNEN. COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR. **Normas em vigor**. Disponível em: <<http://www.cnen.gov.br/seguranca/normas/normas.asp>>. Acesso em 15 ago. 2016a.

CNEN. COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR. **Site institucional**. Disponível em: <<http://www.cnen.gov.br/>>. Acesso em: 15 ago. 2016b.

DAVISSON, C. M.; EVANS, R. D. Gamma-ray absorption coefficients. **Review of Modern Physics**, v.79, n. 24, 1952.

DOMEN, S. R. Absorbed dose water calorimeter. **Medical Physics**, v. 7, n. 2, p. 157 – 159, 1980.

DOMEN, S. R. An absorbed dose water calorimeter: theory, design, and performance. **Journal of Research of the National Bureau of Standards**, v. 87, n. 3, p. 211 – 235, 1982.

DOMEN, S. R. A sealed water calorimeter for measuring absorbed dose. **Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology**, v. 99, n. 2, p. 121-141, 1994.

FANO, U. Gamma-ray attenuation. Part 1: Basic processes. **Nucleonics**, v.11, n. 8, p. 8-12, 1953.

GEVANTMAN, L. H. **CRC Handbook of Chemistry and Physics**, CRC Press - Taylor & Francis Group, v. 95, Boca Raton, p. 5.149-5.152, 2014.

GMR. GERÊNCIA DE METROLOGIA DAS RADIAÇÕES – IPEN/CNEN. **Site institucional**. Disponível em: <<http://www.ipen.br/sitio/index.php?idc=136>>. Acesso em: 15 ago. 2016.

GREENING J. R. **Fundamentals of Radiation Dosimetry**, Taylor & Francis Books LTD, 2ª ed., Nova Iorque e Londres, 1985.

HAO, L.; GALLOP, J.; MACFARLANE, J.; PALMANS, H.; SANDERS, T.; DUANE, S. **Low-temperature calorimetry for ionising radiation dosimetry**, Teddington, 2006. (NPL report DEM-TQD 008).

HNT. **Handbook of Nuclear Technology: Summary of the Useful Techniques for the Application of Atomic Energy for Peaceful Purposes**, Nova Iorque, McGraw-Hill, 1962

HOLMAN J. P. **Transferência de Calor**. São Paulo, McGraw-Hill, 1983.

HUBBELL, J. H. Photon mass attenuation and energy-absorption coefficients from 1keV to 20MeV. **The International Journal of Applied Radiation and Isotopes**, n. 33, p. 1269-1290, 1969.

IAEA. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY – **Site institucional**. Disponível em: [<http://www.iaea.org/>](http://www.iaea.org/). Acesso em: 15 ago. 2016.

ICRP. INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION- **Site institucional**. Disponível em: [<http://www.icrp.org/>](http://www.icrp.org/). Acesso em: 15 ago. 2016.

ICRU. INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIATION UNITS AND MEASUREMENTS - **Site institucional**. Disponível em: [<http://www.icru.org/>](http://www.icru.org/). Acesso em: 15 ago. 2016.

IRD. INSTITUTO DE RADIOPROTEÇÃO E DOSIMETRIA – **Site institucional**. Disponível em: <http://www.ird.gov.br/index.php>>. Acessado em: 15 ago. 2016.

IZEWSKA. J.; RAJAN, G. **Radiation Oncology Physics: A Handbook for Teachers and Students**, IAEA, 2005. Cap. 3, Radiation dosimeters, quality assurance of external beam radiotherapy. p. 71-99.

KRAUSS, A. Experimental verification of calculated radiation-induced heat conduction effects in the water absorbed dose calorimeter. **Thermochimica Acta**, v. 382, n. 1-2, p. 99–107, 2002.

KRAUSS, A. The PTB water calorimeter for the absolute determination of absorbed dose to water in ^{60}Co radiation. **Metrologia**, v. 43, n. 3, p. 259–272, 2006.

KUBO, H. Absorbed dose determination with a water calorimeter in comparison with an ionisation chamber. **Physics in Medicine and Biology**, v. 28, n. 12, p. 1391–1399, 1983.

McEWEN, M. R.; DUSAUTOY, A. R. Primary standards of absorbed dose for electron beams. **Metrologia**, v. 46, n. 2, p. S59–S79, 2009.

MILLER A.; KOVACS, A. Calibration and routine dosimetry for industrial electron irradiation. In: RADIOISOTOPE APPLIANCE AND RADIATION PROCESSING IN INDUSTRY. **Proceedings of 4th Conference**, Leipzig, 1988.

NPL. NATIONAL PHYSICAL LABORATORY – **Site institucional**. Disponível em: <<http://www.npl.co.uk/>>. Acesso em: 15 ago. 2016.

NIST. NATIONAL INSTITUTE OF STANDARDS AND TECHNOLOGY – **Site institucional**. Disponível em: <<http://www.nist.gov/index.html>>. Acesso em: 15 ago. 2016.

NATH, R.; ROTHMAN, A. A model of heat production and transport in a water calorimeter. **Medical Physics**, v. 15, n. 3, p. 370 – 374, 1988.

OECD. THE ORGANISATION FOR ECONOMIC CO-OPERATION AND DEVELOPMENT. **Evolution of the ICRP Recommendations, 1977, 1990 and 2007**, Nuclear Energy Agency, Paris, 2011. Disponível em: <<http://www.oecd-neo.org/rp/reports/2011/nea6920-ICRP-recommendations.pdf>>. Acesso em: 15 ago. 2016.

OKUNO, E; YOSHIMURA, E. **Física das Radiações**, São Paulo – SP, Oficina de Textos, 2010.

OMEGA. OMEGA'S PRECISION INTERCHANGEABLE THERMISTORS. Disponível em: <http://www.omega.com/Temperature/pdf/REF_thermistor.pdf>. Acesso em: 15 ago. 2016.

PÉREZ, H. E. B. **Desenvolvimento de um Sistema Calorimétrico para Dosimetria de Feixe de Elétrons em Processos por Radiação**. 1994. Tese (Doutorado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN/CNEN, São Paulo.

PTB. PHYSIKALISCH-TECHNISCHE BUNDESANSTALT – **Site institucional**. Disponível em: <http://www.ptb.de/index_en.html>. Acesso em: 15 ago. 2016.

RADAK, B.; MARKOVIC, V. Calorimetry. In: HOLM, N. W.; BERRY, J. R. EDS. **Manual on Radiation Dosimetry**. Nova Iorque, Marcel Dekker, p. 45-81, 1970.

ROSS, C. K.; KLASSEN, N. V.; SHORTT, K. R.; SMITH, G. D. A direct comparison of water calorimetry and Fricke dosimetry. **Physics in Medicine and Biology**, v. 34, n. 2, p. 23–42, 1989.

ROSS, C. K.; KLASSEN, N. V.; SHORTT, K. R. The development of a standard based on water calorimetry for the absorbed dose to water. In: **PROCEEDINGS OF NPL WORKSHOP ON WATER CALORIMETRY**, October 12-14, 1994, Teddington, UK.

ROSS, C. K.; KLASSEN, N. V. Water calorimetry for radiation dosimetry. **Physics in Medicine and Biology**, v. 41, n. 1, p. 1–29, 1996.

ROSSER, K. E. An ice calorimeter for photon dosimetry. **Physics in Medicine and Biology**, v. 39, n. 2, p. 293–298, 1994.

SARFEHNIA, A.; CLASIE, B.; CHUNG, E.; LU, H. M.; FLANZ, J.; CASCIO, E.; ENGELSMAN, M.; PAGANETTI, H. AND SEUNTJENS, J. Direct absorbed dose to water determination based on water calorimetry in scanning proton beam delivery. **Medical Physics**, v. 37, n. 7, p. 3541 - 3550, 2010a.

SARFEHNIA, A.; KAWRAKOW, I.; SEUNTJENS, J. Direct measurement of absorbed dose to water in HDR ^{192}Ir brachytherapy: Water calorimetry, ionization chamber, Gafchromic film, and TG-43. **Medical Physics**, v. 37, n. 4, p. 1924-1932, 2010b.

SCHULZ, R. J.; WEINHOUS, M. S. Convection currents in a water calorimeter. **Physics in Medicine and Biology**, v. 30, n. 10, p. 1093–1099, 1985.

SCHULZ, R. J.; WUU, C. S.; WEINHOUS, M. S. The direct determination of dose-to-water using a water calorimeter, **Physics in Medicine and Biology**, v. 14, p. 790–796, 1987.

SEUNTJENS, J.; DUANE, S. Photon absorbed dose standards. **Metrologia**, v. 46, n. 2, p. S39–S58, 2009.

SEUNTJENS, J.; PALMANS, H. Correction factors and performance of a 4 °C sealed water calorimeter. **Physics in Medicine and Biology**, v. 44, p. 627–646, 1999.

SHARPE, P.; DUANE, S. **Progress report on Radiation Dosimetry at NPL.** Teddington - UK, 2007. (CCRI(I)/07-33). Disponível em: <[http://www.bipm.org/cc/CCRI\(I\)/Allowed/18/CCRI\(I\)07-33.pdf](http://www.bipm.org/cc/CCRI(I)/Allowed/18/CCRI(I)07-33.pdf)>.

Acessado em: 15 ago. 2016.

SHORTT, K.; SHOBE, J.; DOMEN, S. R. Comparison of dosimetry calibration factors at the NRCC and the NIST. **Medical Physics**, v. 27, n. 7, p. 1644–1654, 2000.

WILLIAMS A. J.; ROSSER K. E. **A status on the NPL Water Calorimeter**, 1998 (NPL Report CIRM 22).

WOMERSLEY, W. J. New tools for the simulation and design of calorimeters. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A**, v. 289, p. 475–481, 1990.

X-5 MONTE CARLO TEAM. **MCNP: A general Monte Carlo N-particle transport code**, versão 5, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, Novo México, 2003. (LA-CP-03-0245).