
CAPÍTULO 2

DEFINIÇÃO DOS PARÂMETROS DE IRRADIAÇÃO

CAPÍTULO 2

DEFINIÇÃO DOS PARÂMETROS DE IRRADIAÇÃO

2.1 - MATERIAIS E EQUIPAMENTO

Os dosímetros, em polimetilmetacrilato (PMMA), para controlo da dose de radiação gama absorvida (estudos dosimétricos e preparação de amostras), foram fornecidos pela *Harwell Dosimeters Limited* (Inglaterra). Foram utilizados três tipos de dosímetros de acordo com o intervalo de dose de trabalho:

- i) *Red Perspex 4034*: Lotes EV e HA; intervalo de leitura [5-50 kGy]; dimensões: 30 mm × 11 mm × 3±0,55 mm; $\lambda_{\text{(leitura)}} = 640$ nm; incerteza $\leq 2,0\%$.
- ii) *Amber Perspex 3042*: Lotes M e P; intervalo de leitura [1-30 kGy]; dimensões: 30 mm × 11 mm × 3±0,55 mm; $\lambda_{\text{(leitura)}} = 651$ nm; incerteza $\leq 2,5\%$.
- iii) *Gammachrome YR*: Lotes 6 e 63; intervalo de leitura [0,1-3 kGy]; dimensões: 30 mm × 11 mm × 1,7 mm (nominal); $\lambda_{\text{(leitura)}} = 530$ nm; incerteza $\leq 3,0\%$.

O etanol, de grau técnico, foi fornecido pela Labsolve (Portugal).

As ampolas para acondicionamento das amostras foram construídas a partir de tubo em vidro *Schott Duran* (vidro borossilicato inerte) com $\varnothing_{\text{ext}} = 30$ mm e $e = 1,5$ mm.

A leitura da absorção óptica dos dosímetros nos respectivos comprimentos de onda de leitura foi feita recorrendo a um espectrofotómetro UV-Visível da marca *Shimadzu*, modelo UV-260; $\lambda \in [190, 900$ nm]; resolução: 0,1 nm; SN: 1231721.

A espessura dos dosímetros foi medida com um micrómetro *Mitutoyo*, modelo 2046L; precisão: 0,01 mm; SN: 814286.

2.2 - UNIDADE DE IRRADIAÇÃO GAMA DO INSTITUTO TECNOLÓGICO E NUCLEAR

A unidade de irradiação gama do Instituto Tecnológico e Nuclear (ITN), *Unidade de Tecnologias de Radiação (UTR)*, é uma instalação de dimensão semi-industrial de irradiação contínua, com fonte de ^{60}Co .

Como unidade de irradiação gama transmite energia radiante, medida em dose absorvida, a qual é utilizada de forma segura, económica e fidedigna, no tratamento de uma grande variedade de produtos [Kotler, 1989].

A UTR encontra-se em funcionamento no *Campus de Sacavém* desde Novembro de 1988. A sua actividade industrial tem-se centrado particularmente na esterilização de produtos médico-cirúrgicos de uso único, matérias-primas e embalagens de uso farmacêutico, na redução da flora microbiana de especiarias, plantas medicinais e rolhas de cortiça e na desinfestação de frutos secos [Mendes *et al.*, 1990; Cavaco *et al.*, 1991; Andrade *et al.*, 1995; Polónia *et al.*, 1998]. Ao longo dos seus quase vinte anos de operação tem mantido igualmente, uma colaboração intensa com grupos de investigação nacionais e estrangeiros, nas áreas da interacção da radiação gama com os materiais, e na aplicação de métodos de Monte Carlo em simulação de geometrias de irradiação e distribuição de dose para planeamento de irradiações gama [Oliveira *et al.*, 2000a ; 2004]



Figura 2.1: Vista panorâmica da instalação de irradiação gama (UTR) do Instituto Tecnológico e Nuclear.

A unidade de irradiação gama é uma instalação de fonte auto-selável com um irradiador planar de fonte seca, cuja actividade nominal é de $1,5 \times 10^{16}$ Bq (405 kCi). O irradiador

consiste numa estrutura paralelepípedica quadrangular com uma área total de 0,864 m², que comporta trinta tubos de aço-inox com 16 mm de diâmetro interno, para acondicionamento dos lápis de ⁶⁰Co. Estes são pequenos tubos (81 mm de comprimento e 11 mm de diâmetro externo), também de aço-inox, onde se encontram os elementos de ⁶⁰Co, duplamente selados e encapsulados. A sua selagem e encapsulamento seguiram as normas ISO 1677 e ISO/TR 4826 para testes de fugas em fontes radioactivas seladas [ISO, 1977; 1979], de forma a evitar, fundamentalmente, a contaminação radioactiva. O irradiador permite o acondicionamento de duzentos e noventa e seis lápis de ⁶⁰Co com estas características. Inicialmente foi carregado com cento e cinquenta e seis lápis, os quais perfaziam uma actividade total, em Novembro de 1988, de 10,95×10¹⁵ Bq (295,65 kCi) [Mendes *et al.*, 1990; Cavaco *et al.*, 1991].

A geometria de acondicionamento dos lápis de ⁶⁰Co no irradiador foi definida com base na optimização do campo de radiação dentro da câmara de irradiação [Mendes *et al.*, 1990]. A optimização é função da geometria da câmara, da posição e movimento dos materiais em torno do irradiador, assim como da composição e densidade daqueles [Oliveira *et al.*, 2002].

Na posição de armazenamento o irradiador encontra-se recolhido num sarcófago blindado, o qual consiste num poço de betão revestido com blocos de ferro, com refrigeração por circulação de água em tubos de aço-inox. O transporte do irradiador até à posição de irradiação é assegurado por um sistema electromecânico [Mendes *et al.*, 1990].

Este conjunto faz parte integrante da câmara de irradiação (*vd.* Figura 2.2). Esta consiste numa estrutura em betão de alta densidade (2,23 g·cm⁻³), com uma área total de 30,75 m², delimitada por paredes de espessura entre 1,8 e 2,0 m, as quais funcionam como um escudo biológico contra as radiações. O escudo biológico integra ainda um labirinto com 23,3 m de extensão, através do qual se acede ao interior da câmara de irradiação [Mendes *et al.*, 1990].

O processo de irradiação de cargas industriais decorre usualmente em modo contínuo, sendo os produtos a irradiar transportados através de um monocarril, a uma velocidade constante de 6,7 m·min⁻¹, em trinta e oito contentores. Estes contentores são carregados e descarregados automaticamente através de um sistema robótico electropneumático, podendo acomodar na vertical quatro caixas de 40×40×40 cm³ (caixa padrão), ou duas de 40×40×85 cm³ [Andrade *et al.*, 1995]. No interior da câmara de irradiação os contentores dispõem-se em quatro filas paralelas, duas de cada lado do irradiador, de sete contentores cada, totalizando vinte e oito posições de irradiação. Os restantes contentores encontram-se ao longo do trajecto em posições de espera (*vd.* Figura 2.2) [Mendes *et al.*, 1990].

Um ciclo de irradiação completo engloba duas entradas dos materiais dentro da câmara, o que perfaz um total de cinquenta e seis posições de irradiação diferentes. No primeiro semi-ciclo, o produto percorre as vinte e oito posições disponíveis nos dois níveis superiores dos contentores. No segundo semi-ciclo, o produto passa para os dois níveis inferiores, sendo colocado novo produto (não irradiado) nos outros dois níveis (superiores), e volta a percorrer as vinte e oito posições de irradiação. Durante o percurso no interior da câmara as caixas com produto vão “mostrando” sucessivamente as faces anterior e posterior à fonte, sofrendo uma rotação forçada de 180° entre a 14ª e a 15ª posições [Mendes *et al.*, 1990]. Estes procedimentos têm por objectivo assegurar uma melhor distribuição de dose no produto.

Na situação em que as cargas industriais não preenchem o total de posições disponíveis são utilizadas caixas simuladoras de produto a irradiar, *dummies*. Estas caixas são cheias com um material (normalmente papel de jornal), cujo coeficiente de absorção mássico de radiação é idêntico ou muito próximo ao dos produtos tratados na unidade. O peso das *dummies* corresponde ao peso médio das caixas que os diferentes produtos a irradiar apresentam.

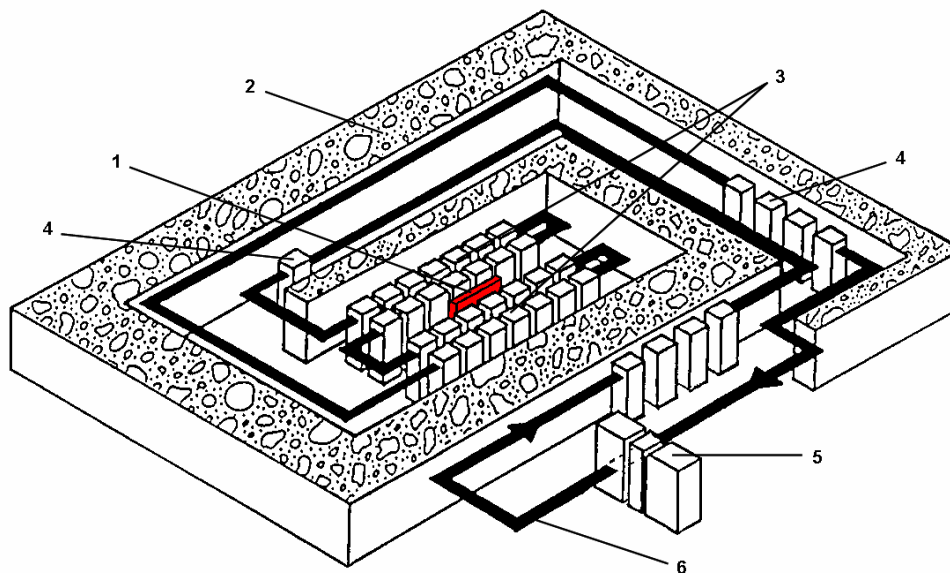


Figura 2.2: Diagrama 3D da câmara de irradiação e labirinto da UTR (adaptado de [Mendes *et al.*, 1990]).
1 - Irradiador; 2 - Escudo biológico; 3 - Posições de irradiação em ciclo; 4 - Posições de espera;
5 - Sistema electropneumático de carga, rearranjo e descarga dos contentores; 6 - Trajectória dos produtos em ciclo de irradiação.

O tempo de exposição dos produtos à radiação, em cada uma das vinte e oito posições disponíveis, *Dwell-Time*, é calculado de acordo com a dose final de radiação pretendida e com as características de cada produto (densidade e coeficiente de absorção mássico de radiação) [Hubbell, 1992; McLaughlin *et al.*, 1989].

A irradiação de pequenas cargas industriais (em quantidade e/ou dimensão) pode decorrer extraordinariamente em regime estacionário. Neste caso, os produtos são irradiados nos contentores frontais ao irradiador e posicionados manualmente. Este modo de operação origina paragens frequentes e a alteração dos parâmetros normais de irradiação, factores que tornam muito difícil conciliar a irradiação de produtos diferentes.

O controlo automático da operação da câmara de irradiação é assegurado por três autómatos que sincronizam os sistemas bases de operação: *processo de irradiação* (movimento do irradiador, movimentação de cargas), *condicionamento de produto nos contentores* e *sistemas de segurança*. A interface para o utilizador é feita através de um PC, localizado na sala de comando, a partir do qual é possível monitorizar todas as operações em curso, assim como pôr em prática medidas de intervenção correctivas quando necessárias [Mendes *et al.*, 1990; Andrade *et al.*, 1995].

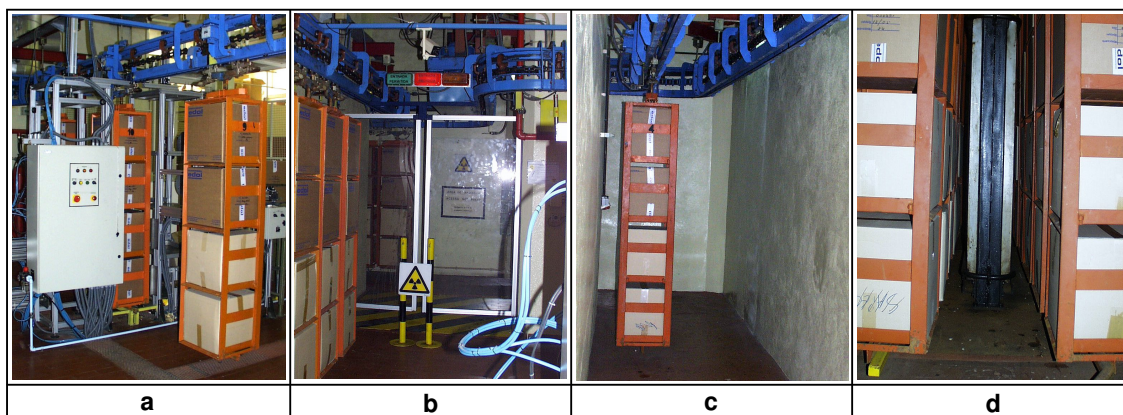


Figura 2.3: Movimentação de cargas para a câmara de irradiação.

a) Sistema de carga, rearranjo e descarga de contentores; **b)** Entrada do labirinto; **c)** Contentor em trânsito no labirinto; **d)** Contentores em posição paralela ao irradiador.

O funcionamento seguro e eficaz da UTR é garantido através da existência de um sistema de segurança radiológica redundante, associado a um protocolo operacional bem definido.

O sistema de segurança radiológica engloba detectores de radiação no interior da câmara de irradiação (duas câmaras de ionização), no labirinto de acesso à câmara (dois detectores de *Geiger Müller*) e à entrada do labirinto (dois detectores de *Geiger Müller*), os quais são monitorizados a partir da sala de comando. A informação sobre o estado do irradiador

(funcionamento e posição na sua trajectória) é fornecida por indicadores luminosos e mecânicos. Existem ainda sistemas integrados de segurança que previnem a entrada inadvertida de pessoas dentro da câmara de irradiação. Estes consistem em duas portas em vidro acrílico de actuação hidráulica e uma plataforma de contacto à entrada do labirinto, e um conjunto de cinco células fotoeléctricas colocadas imediatamente a seguir. Estes sistemas ao serem accionados com o irradiador em posição de operação, fazem-no recolher de imediato, por acção da gravidade, à posição de armazenagem, e põem em funcionamento alarmes sonoros e luminosos. Ao longo do labirinto existem ainda três interruptores de pressão que permitem ao operador a recolha manual do irradiador em caso de emergência.



Figura 2.4: Sistemas de segurança e controlo da UTR.

a) Sala de comando (monitorização dos níveis de radiação, consola de comando principal e interface de controlo via PC); **b)** Câmaras de ionização instaladas na câmara de irradiação.

O controlo da temperatura no sarcófago de armazenagem do irradiador é assegurado por dois sistemas redundantes de circulação de água refrigerada em circuito fechado. Dois sistemas de ventilação forçada (extracção e injeccção de ar arrefecido), também em modo de funcionamento redundante, asseguram a renovação permanente da atmosfera dentro da câmara, extraindo o ozono que se forma durante o processo de irradiação gama. Estes dois sistemas em conjunto permitem manter a temperatura dentro da célula de irradiação a uma temperatura adequada à operação (não superior a 25 °C) [Mendes *et al.*, 1990].

Relativamente às normas de segurança de operação, a regra fundamental está associada ao seu início. Existe uma chave única com a qual são accionados dois interruptores que permitem dar início ao processo de irradiação. O primeiro interruptor é actuado pelo operador

dentro da câmara, após inspecção da mesma e verificação da sua conformidade (correcto posicionamento dos materiais para irradiar e inexistência de pessoas dentro da câmara). O segundo interruptor é actuado na sala de comando, passado no máximo um minuto após ligação do primeiro interruptor. Entre a ligação dos dois interruptores, um forte sinal sonoro avisa sobre a proximidade de entrada em funcionamento do irradiador. Se a actuação dos dois interruptores demora mais de um minuto, o procedimento de início de operação tem de ser repetido. No início de operação, as portas em acrílico à entrada do labirinto são igualmente actuadas por esta chave.

A chave única encontra-se presa a um detector de radiação portátil (detector de operação) que acompanha sempre o operador, nas suas deslocações ao interior da câmara de irradiação. Este detector é testado à entrada do labirinto numa fonte de referência de cézio 137 com 3.7×10^8 Bq (10 mCi) (actividade reportada a Novembro de 1988) [Mendes *et al.*, 1990; Andrade *et al.*, 1995; Ferreira *et al.*, 1999].

Os procedimentos básicos para entrar na câmara de irradiação, os quais se encontram afixados em local bem visível, podem ser resumidos da seguinte forma: i) ser portador de dosímetro pessoal; ii) ter atenção à sinalização mecânica, sonora e luminosa; iii) verificação dos níveis de radiação no interior da câmara de irradiação e no labirinto, e v) verificação do funcionamento do detector de operação na fonte de referência.

Durante os seus quase vinte anos de actividade, a UTR foi sendo submetida a processos de melhoramento tecnológico que permitiram a sua modernização progressiva. Desta forma a unidade foi sendo capaz de dar uma resposta com qualidade às novas solicitações e exigências no processamento de materiais (indústria e investigação) por radiação gama.

No início de 2003, a UTR, ao abrigo de um contrato de Cessão de Exploração, passou para administração privada da empresa CHIP (Centro de Higienização por Ionização de Produtos, S.A.). Em Novembro desse mesmo ano, o irradiador da UTR, então com uma actividade de $15,22 \times 10^{14}$ Bq (41,08 kCi), o que tornava inviável a sua exploração comercial, recebe novo carregamento de ^{60}Co . A sua actividade de operação passou então a ser de $10,91 \times 10^{15}$ Bq (294,92 kCi), praticamente a mesma com que iniciou a seu funcionamento em Novembro de 1988.

A UTR continua a ser uma unidade única no nosso país e, ainda que sob exploração privada, continua a ser intensivamente utilizada em irradiações com objectivos de investigação.

2.3 - DEFINIÇÃO DAS GEOMETRIAS DE IRRADIAÇÃO

O plano de trabalho proposto exigia a realização de um grande número de sessões de irradiação gama, em condições conciliáveis com o modo de funcionamento em contínuo da unidade. Estas irradiações requeriam geometrias de irradiação fixa, com débitos de dose baixos ($<1,0 \text{ kGy}\cdot\text{h}^{-1}$), boa uniformidade de dose, a possibilidade de efectuar irradiações de réplicas em simultâneo e, como imperativo, sem interferência com o sistema de irradiações industriais em modo contínuo (sob rotina).

Para a definição das geometrias de irradiação tomou-se como referência alguns estudos já realizados na UTR, relativos à irradiação de amostras poliméricas de pequena dimensão em geometrias especiais [Ferreira, 1994; Ferreira e Casimiro, 1998]. Estes dados permitiram fazer uma escolha mais selectiva dos locais dentro da câmara, onde seria possível conjugar as condições experimentais de irradiação exigidas. A definição das geometrias de irradiação envolveu assim duas fases fundamentais:

- i) Projecto e construção de estruturas suporte e porta-amostras em madeira, e de sistemas de acondicionamento das amostras, adaptáveis aos locais seleccionados e,
- ii) Estudo dosimétrico das posições de irradiação disponíveis em cada local seleccionado.

O facto de no decorrer do trabalho experimental o irradiador da UTR ter recebido novo carregamento de ^{60}Co , implicou a realização de dois estudos de definição de geometrias de irradiação. Este “episódio”, não previsto inicialmente, obrigou a um trabalho acrescido de cerca de cinco meses para estudo de novas geometrias de irradiação.

2.3.1 - Locais e Estruturas Suporte para Acondicionamento e Irradiação das Amostras Poliméricas

Os estudos iniciais de definição das geometrias de irradiação foram realizados com o irradiador ainda com o carregamento original de ^{60}Co . A sua actividade, em Maio de 2003, era de $16,26 \times 10^{14} \text{ Bq}$ ($\cong 44 \text{ kCi}$).

A principal referência dosimétrica para definição das novas grelhas de irradiação com débitos de dose inferiores a $1,0 \text{ kGy}\cdot\text{h}^{-1}$ foi uma geometria, **G1**, localizada numa posição paralela ao irradiador, no corredor esquerdo, entre as filas de contentores e a parede do escudo biológico. Como estrutura suporte nas irradiações realizadas neste local era utilizada uma estante em madeira com cinco prateleiras (níveis), às quais foram adaptados cinco porta-amostras com capacidade para quatro amostras cada. Estas estruturas, construídas em contraplacado marítimo, foram concebidas de forma a só poderem ser deslocadas horizontalmente, sempre em posição paralela ao irradiador, mantendo as amostras em posição fixa e reprodutível durante as irradiações. Este conjunto definia uma grelha com vinte posições de irradiação (vd. Figuras 2.5 a 2.9), em que os contentores e respectiva carga funcionavam como barreira física absorvente da radiação. Os valores de débito de dose nesta geometria foram obtidos por *dosimetria de Fricke*, com a câmara totalmente preenchida com *dummies* cheias com 6,5 kg de papel de jornal [Ferreira, 1994].

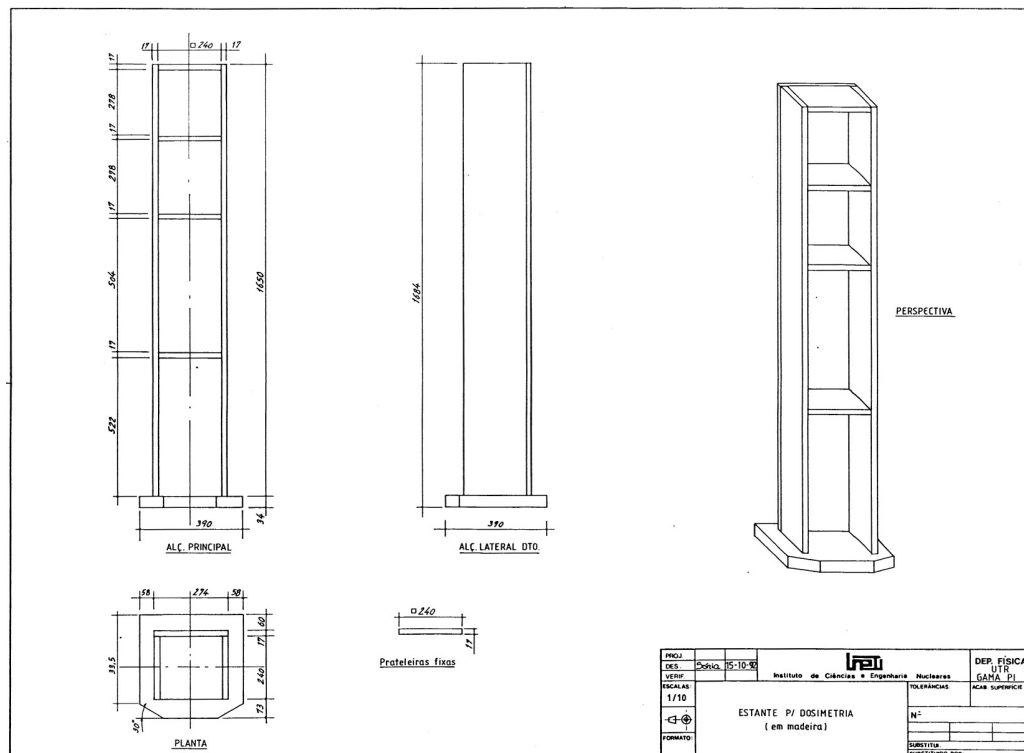


Figura 2.5: Diagrama da estante utilizada como estrutura suporte na geometria de irradiação G1.

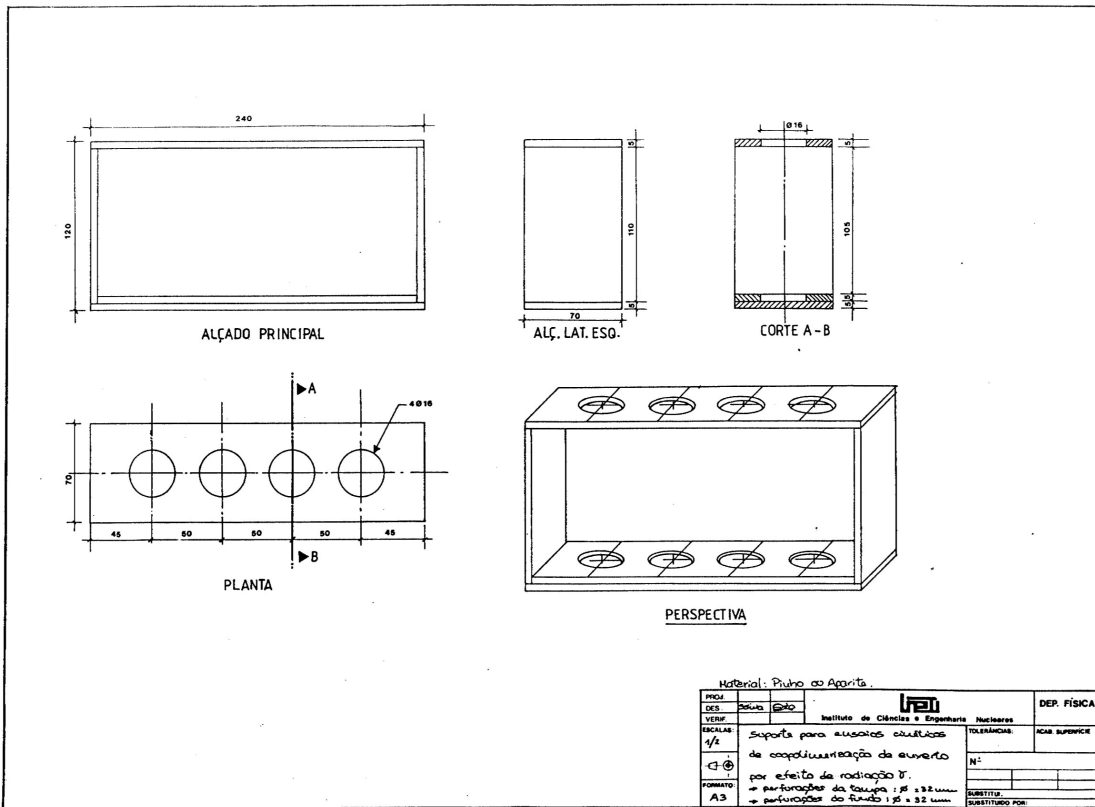


Figura 2.6: Diagrama dos porta-amostras adaptados às prateleiras da estante.

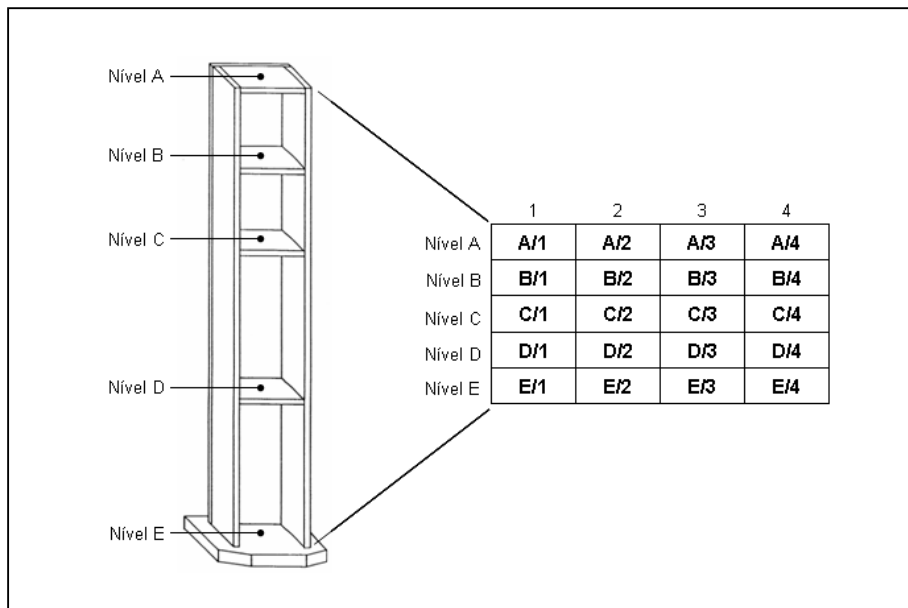


Figura 2.7: Identificação das posições de irradiação na estante em G1.

Para acondicionamento das amostras a irradiar foram utilizadas ampolas de vidro, propositadamente fabricadas na *Oficina de Vidro do ITN*, a partir de tubo em *pyrex*. As ampolas foram projectadas com forma e dimensão adaptadas aos porta-amostras utilizados em *GI*. Foram construídas dois tipos de ampolas:

i) Ampolas para irradiação em atmosfera normal (na presença de oxigénio):

$\varnothing_{ext}= 30 \text{ mm}$; $\varnothing_{int}= 27 \text{ mm}$; $e= 1,5 \text{ mm}$; $h= 125 \text{ mm}$.

ii) Ampolas para irradiação em atmosfera rarefeita (na ausência de oxigénio):

$\varnothing_{ext}= 30 \text{ mm}$; $\varnothing_{int}= 27 \text{ mm}$; $e= 1,5 \text{ mm}$; $h= 200 \text{ mm}$.

As ampolas para irradiação das amostras em atmosfera rarefeita apresentam dois estrangulamentos de secção na parte superior, as quais permitem a sua selagem à chama e posterior abertura. Estas ampolas terminam com um esmerilado macho 19/26 para conexão com a linha de vazio.



Figura 2.8: Ampolas em *pyrex* para irradiação das amostras em atmosfera normal e em atmosfera rarefeita.

As ampolas para irradiação em atmosfera normal foram também utilizadas nos estudos dosimétricos para caracterização das geometrias de irradiação, suportando no seu interior os dosímetros em posição central vertical. O volume de enchimento equivalente ao acondicionamento das amostras poliméricas foi preenchido com cilindros de poliestireno expandido (esferovite).

Em consequência do decaimento do ^{60}Co , e da necessidade de dispor continuamente de posições de irradiação com os débitos de dose seleccionados, procedeu-se ao estudo de mais geometrias de irradiação. Mesmo pretendendo-se posições de irradiação com débitos de dose $<1,0 \text{ kGy}\cdot\text{h}^{-1}$, a baixa actividade do irradiador obrigou à procura de locais de irradiação mais próximos do irradiador.

Foram então estudados mais dez locais de irradiação, sempre em posições paralelas ao irradiador, cinco dos quais ao nível do solo por baixo dos contentores de transporte de cargas, e os outros cinco sobre a rede de protecção do irradiador (vd. Figuras 2.9 e 2.10).

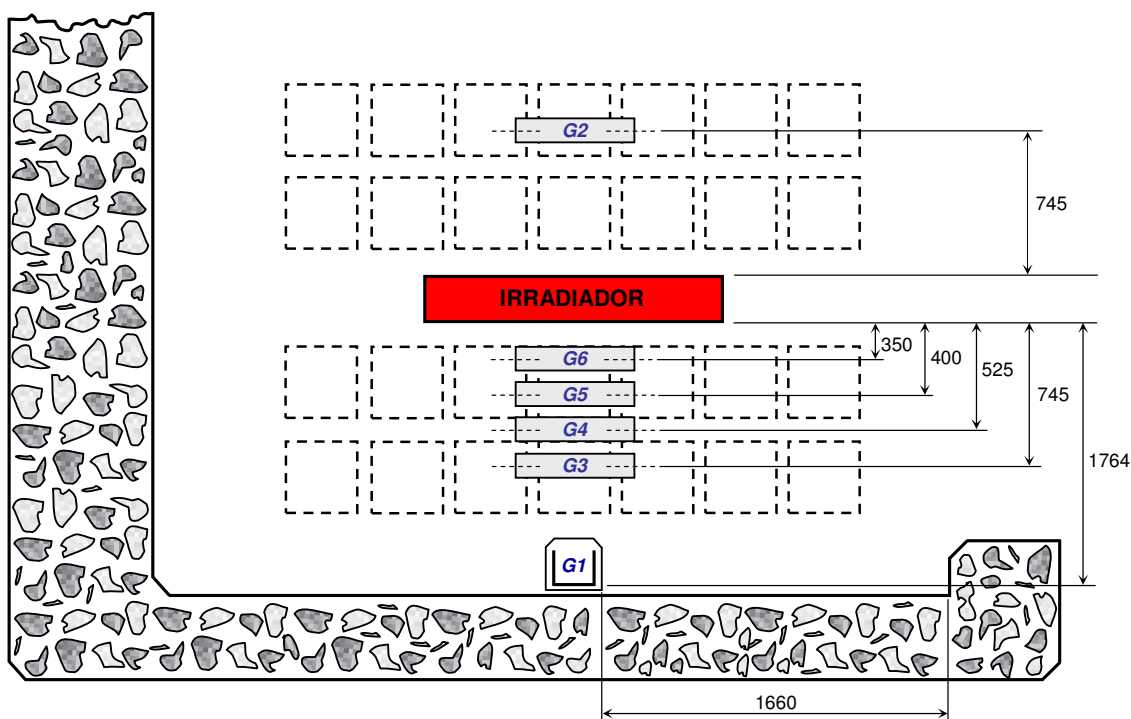


Figura 2.9: Diagrama de localização das geometrias de irradiação no solo; (G1 a G6: Geometrias de irradiação 1 a 6).

Em ambas as situações foram utilizados os mesmos porta-amostras e ampolas para acondicionamento das misturas reagentes. Os porta-amostras, em grupos de três, foram alinhados horizontalmente, definindo doze posições de irradiação cada. Para as irradiações sobre a rede foram projectados outros suportes, construídos em madeira de pinho, os quais permaneciam suspensos horizontalmente em posição fixa sobre a rede (vd. Figura 2.11).

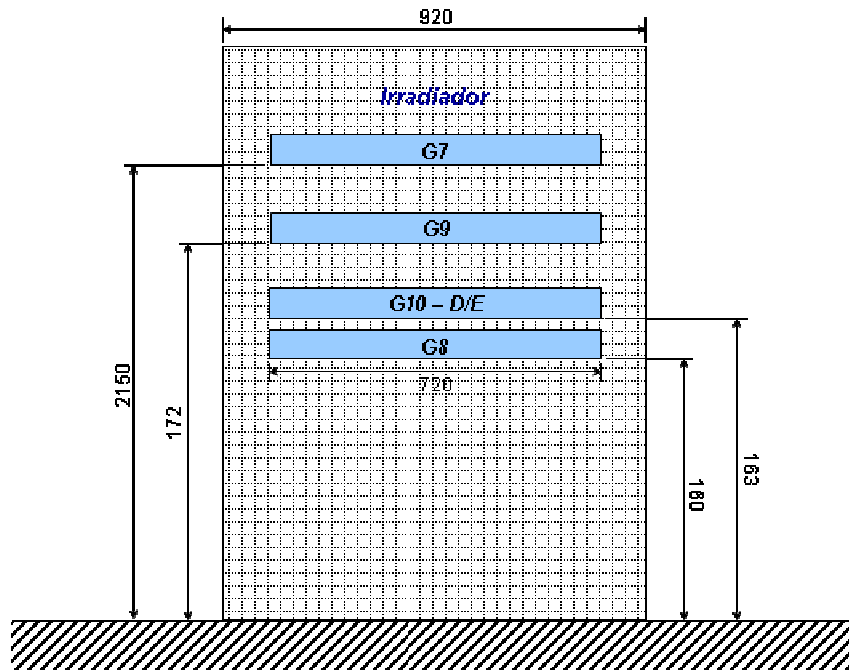


Figura 2.10: Diagrama de localização das geometrias de irradiação sobre a rede de protecção do irradiador; (**G7** a **G9**: Geometrias de irradiação 7 a 9 do lado direito do irradiador; **G10-D/E**: Geometria de irradiação 10, do lado direito e do lado esquerdo do irradiador, respectivamente).



Figura 2.11: Estruturas suporte (para suspensão sobre a rede de protecção do irradiador) e porta-amostras utilizadas na primeira fase das irradiações.

Após o recarregamento da fonte de ^{60}Co , houve que proceder ao estudo de novas geometrias de irradiação. A reposição da sua actividade para 294 kCi (aprox.) obrigou então à procura de locais bastante afastados do irradiador, e sempre interpondo os contentores e respectiva carga como barreira física absorvente da radiação.

Nestas condições, os débitos de dose em cada posição de irradiação definida são função do coeficiente de absorção mássico de radiação do produto em irradiação normal. Em consequência, as geometrias de irradiação não seriam reprodutíveis com cargas de natureza diferente a funcionarem como barreira absorvente.

Com base nesta condicionante, todas as novas geometrias de irradiação foram estudadas tendo como barreira absorvente o produto mais intensivamente tratado na UTR após a recarga do irradiador, *rolhas de cortiça*. Como *dummies* a UTR passou a utilizar caixas com a mesma dimensão (caixa padrão) e peso das caixas com rolhas, mas cheias com desperdício de aglomerado de cortiça. Assim, carga e *dummies* têm a mesma densidade e natureza, logo coeficientes de absorção mássico de radiação idênticos.

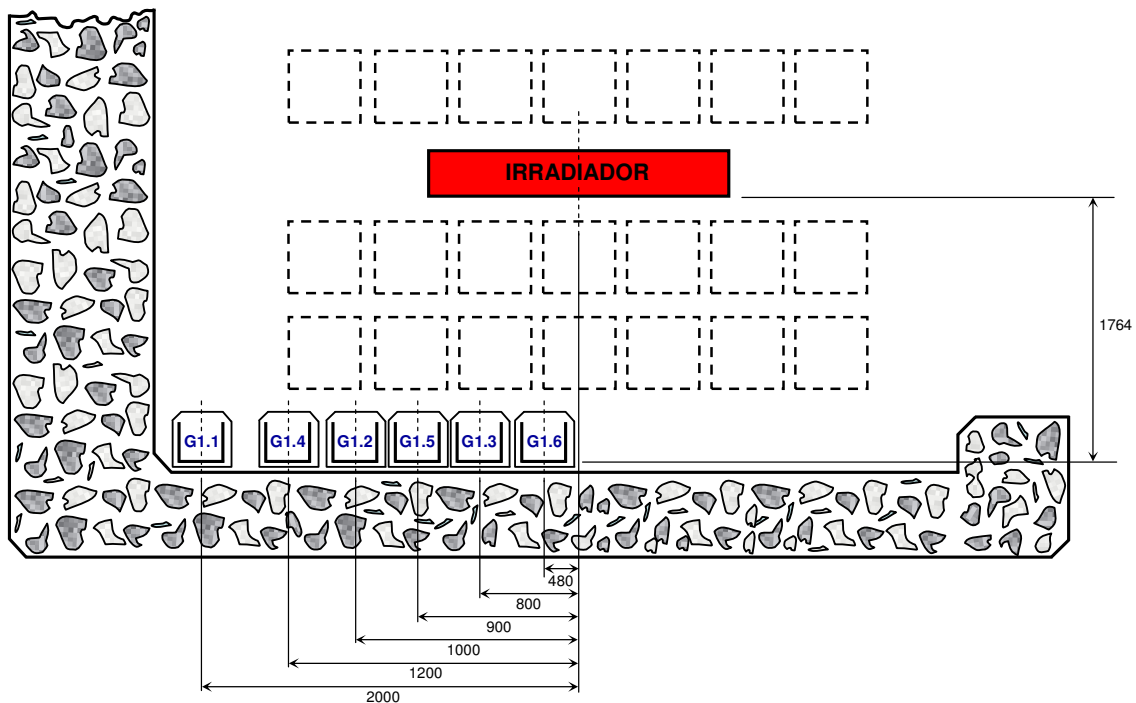


Figura 2.12: Diagrama de localização das geometrias de irradiação estudadas após recarregamento do irradiador de ^{60}Co ; (**G1.1 – G1.6:** Geometrias de irradiação 1.1 a 1.6).

Sob estas condições de operação foram estudados seis locais, em que se utilizou novamente a estante de *GI* como estrutura suporte para as irradiações. As seis novas geometrias de irradiação, com vinte posições cada, permitiram dispor continuamente de posições para as irradiações pretendidas até ao final da execução do plano de trabalho experimental proposto.

2.3.2 - Estudos Dosimétricos

A determinação do débito de dose nas posições definidas em cada geometria foi feita recorrendo a dosímetros de rotina do tipo polimetilmetacrilato (PMMA) sensível à radiação, produzidos pela *Harwell Dosimeters Limited*. Nestes estudos foram usados dosímetros do tipo, *Amber Perspex 3042* (Lote M) e *Gammachrome YR* (Lotes 6 e 63).

Um dosímetro de rotina é um dosímetro que, embora com qualidades metrológicas normalmente não tão boas quanto a de um dosímetro de referência, apresenta um custo e facilidade de utilização que o tornam adequado para as medidas do dia-a-dia em unidades de processamento por radiação. A sua calibração, relativamente a um padrão primário ou de referência, é específica de um determinado ambiente de irradiação uma vez que a resposta do dosímetro depende dos factores ambientais de irradiação (temperatura, humidade, débito de dose) [McLaughlin *et al.*, 1989; Miller *et al.*, 2000; ASTM, 2005].

Os dosímetros fabricados pela *Harwell* consistem em pequenas peças rectangulares coloridas (*vd.* Figura 2.13), opticamente transparentes, seladas individualmente em saquetas de filme de poliéster/folha de alumínio/poliéster/polietileno opaco. Os dosímetros são mantidos dentro das respectivas saquetas durante e após a irradiação, só sendo abertos no momento da sua leitura. Este procedimento é justificado pela necessidade de preservar o material rádio-sensível da sujidade, abrasão e das condições ambientais (luz e humidade), factores que podem influenciar a sua qualidade de resposta.

A exposição dos dosímetros à radiação induz a sua mudança de cor (escurecimento), a qual, medida de forma precisa por espectrofotometria de UV-Visível, é função da dose de radiação absorvida.



Figura 2.13: Dosímetros do tipo *Red Perspex*, *Amber Perspex* e *Gammachrome YR*, fabricados pela *Harwell Dosimeters Ltd*, utilizados nos estudos dosimétricos.

Estes dosímetros têm como substâncias activas pigmentos de natureza orgânica com grupos cromóforos (azo compostos) dispersos na matriz polimérica do PMMA, em qualidade e concentração específicos de cada tipo de dosímetro¹. Por exposição à radiação gama ocorre a ionização/excitação das moléculas do PMMA e do pigmento, com o conseqüente aparecimento de radicais livres primários (de curta duração), electrões livres e iões positivos. Os processos de transferência electrónica que se seguem, responsáveis particularmente pela desexcitação das moléculas de PMMA, resultam na fragmentação da cadeia principal de algumas das suas moléculas, dando origem à formação de radicais livres secundários. São estes radicais que por ataque às moléculas ionizadas do pigmento geram um novo composto que, embora com actividade óptica na região do visível, é instável. A sua estabilização ocorre por processos de oxidação, resultantes do ataque do oxigénio disperso na matriz do polímero base, o qual actua igualmente ao nível da extinção do excesso de radicais livres secundários do PMMA. O novo composto estabilizado mantém a sua actividade óptica na região do visível embora diferente da do material original [Farah *et al.*, 2004; Fernandez *et al.*, 2003].

A leitura espectrofotométrica da absorvância dos dosímetros é feita no comprimento de onda no qual o efeito de *fading*² pós-irradiação sobre o valor de absorvância é minimizado ou negligenciável, devendo a sua leitura ser efectuada no espaço de uma semana [Farah *et al.*, 2004].

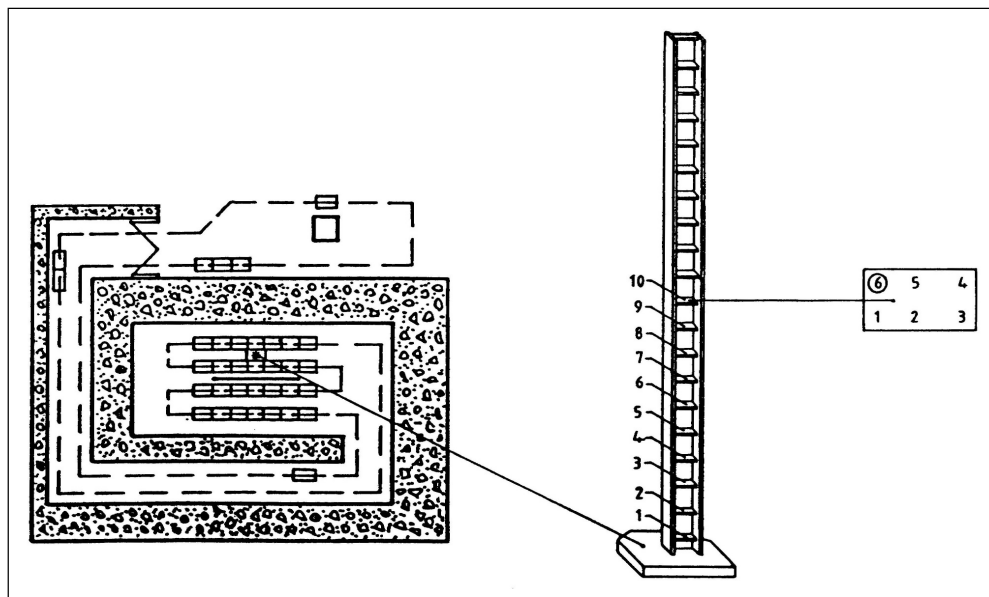
¹ Os pigmentos e respectivas concentrações utilizados na preparação dos dosímetros estão protegidos comercialmente pelo fabricante.

² Descoloração gradual do material pós-irradiação devido à estabilização deficiente de algumas moléculas do novo composto corado.

Tabela 2.1: Especificações dos dosímetros fabricados pela *Harwell Dosimeters Ltd*, [Harwell, 1999].

<i>DOSÍMETRO</i>	<i>DOSE (kGy)</i>	$\lambda_{\text{leitura}} \text{ (nm)}$	<i>INCERTEZA</i>
Red 4034	[5 - 50]	640	$\leq 2,0\%$
Amber 3042	[1 - 10]	603	$\leq 2,5\%$
	[10 - 30]	651	
Gammachrome YR	[0,1 - 3]	530	$\leq 3,0\%$

A calibração dos lotes de dosímetros *Harwell* utilizados na UTR é da sua responsabilidade técnica e segue a norma ISO/ASTM 51276-02 [ISO, 2002]. Os dosímetros são calibrados relativamente ao *Dosímetro de Fricke*, dosímetro de referência. Este procedimento, realizado para cada novo lote de dosímetros adquirido, requer o traçado de uma curva experimental de *Absorvância específica vs Dose de Radiação*, no intervalo de dose de utilização de cada tipo de dosímetro, nas condições operacionais da UTR. A irradiação a tempos diferentes dos dosímetros, em triplicado, é feita num local calibrado com dosímetros primários (calorímetro e câmara de ionização), cujo débito de dose é previamente confirmado por *Dosimetria Fricke*.

**Figura 2.14:** Diagrama do local e estrutura suporte para calibração de dosímetros na UTR.

A determinação da dose de radiação absorvida pelos dosímetros é feita indirectamente por espectrofotometria de UV-Visível, através da medida da absorvância no comprimento de onda específico, característico de cada tipo de dosímetro, tendo como referência a absorção no ar à temperatura ambiente. A variável “percurso da radiação” na *Lei de Beer-Lambert* corresponde à espessura de cada dosímetro.

A curva assim obtida é então ajustada a um polinómio do 4º grau,

$$D = a + b \cdot x + c \cdot x^2 + d \cdot x^3 + e \cdot x^4 \quad (2.1)$$

onde:

D - Dose de radiação absorvida

a, b, c, d, e - Coeficientes do polinómio

x - Absorvância específica (absorvância óptica/espessura do dosímetro)

A qualidade de resposta do dosímetro é avaliada por comparação da curva de calibração obtida nas condições de trabalho com a curva de calibração fornecida pelo fabricante, a qual é obtida em condições padrão de irradiação gama¹. Entre as duas não deverá existir, em toda a amplitude de doses, uma divergência superior a $\pm 5\%$ [ISO, 2002].

As condições de utilização destes dosímetros são extremamente importantes, podendo introduzir erros sistemáticos significativos, principalmente no limite inferior de dose de utilização dos mesmos.

Um dos factores que pode ser fonte de erros consideráveis na leitura de dose é a quantidade de água absorvida no PMMA. Trata-se de um material ligeiramente higroscópico que pode absorver até 2% (*P/P*) de água se exposto à humidade atmosférica. Entre 0,6 e 1,0% (*P/P*), a resposta do dosímetro é praticamente independente da concentração de água, mas fora deste intervalo condiciona a sua resposta espectrofotométrica.

Para temperaturas de armazenamento, irradiação e leitura entre 20 °C e 50 °C, os dosímetros são razoavelmente estáveis, sendo a sua temperatura ideal de trabalho os 25 °C. Relativamente à estabilidade pós-irradiação o dosímetro mais estável é o *Amber Perspex*,

¹ A rastreabilidade da calibração da *Harwell Dosimeters Ltd* é feita relativamente aos padrões de dose absorvida do Reino Unido, no *National Physical Laboratory (NPL)*. A qualidade da calibração de cada lote é verificada por estudos de intercomparação sob responsabilidade do *NPL*.

seguido do *Red Perspex* e do *Gammachrome YR* [Farah *et al.*, 2004], sendo aconselhável proceder à leitura de cada conjunto de dosímetros utilizado no mesmo intervalo de tempo.

Os efeitos das condições de trabalho podem no entanto ser minimizados através de métodos de calibração nas próprias instalações, em condições similares às de uso em rotina [Farah *et al.*, 2004; Fernandez *et al.*, 2003].

Não possuindo na sua composição elementos químicos de elevado número atómico, e com densidade próximo da unidade, os dosímetros de PMMA são considerados como materiais com coeficiente de absorção mássico de radiação equivalente à água [Hubbell, 1992], e similar à dos materiais poliméricos de uso mais comum. Desta forma, mesmo atendendo a que se tratam de dosímetros de rotina, o seu uso na monitorização e controlo do processo de irradiação de materiais poliméricos, ainda que sob condições de operação mais exigentes, constitui uma mais-valia associada à sua já comprovada simplicidade de utilização e qualidade de resposta [McLaughlin *et al.*, 1989].

A caracterização dosimétrica das geometrias de irradiação foi feita através da irradiação de dosímetros PMMA a tempos diferentes, em triplicado, nas posições de irradiação definidas em cada geometria. O tipo de dosímetro utilizado em cada ensaio e respectivos tempos de irradiação, dependeu do tempo de utilização da câmara e do tipo de dosímetro calibrado disponibilizados pela UTR.

Os dosímetros foram irradiados dentro das ampolas para irradiação das misturas poliméricas (irradiações em atmosfera normal), com estas colocados nos compartimentos definidos nos porta-amostras. Os dosímetros foram mantidos em posição central no interior das ampolas, com o auxílio de pequenos cilindros de poliestireno expandido (esferovite), os quais tinham igualmente a função de simuladores de enchimento das ampolas. Este procedimento teve como objectivo a determinação dos débitos de dose entrando em conta principalmente com a retenção de radiação por parte do vidro das ampolas. Assim, a medida do fluxo de energia no interior das ampolas estaria mais próximo do valor real, relativamente à irradiação das misturas poliméricas.



Figura 2.15: Ensaios de irradiação dosimétricos.

a) Porta-amostras preparado com as ampolas e dosímetros; **b)** Dosimetria de geometria em local com barreira física absorvente.

A necessidade de definir todas estas geometrias de irradiação resultou não só do grande número de irradiações realizadas, mas também do decaimento radioactivo da fonte de ^{60}Co . O conseqüente decréscimo dos débitos de dose resultante do decaimento do ^{60}Co , tornava impeditivo a utilização de algumas posições de irradiação. Porém, com o avançar do tempo foi possível utilizar posições que inicialmente apresentavam débitos de dose superiores aos pretendidos. Assim, ao se dispor de um número razoável de geometrias de irradiação bem caracterizadas, foi possível assegurar de forma quase contínua as condições de irradiação pretendidas, ficando a progressão dos trabalhos de irradiação sobretudo dependente dos tempos disponibilizados pela UTR.

O decaimento natural da fonte de ^{60}Co exigiu que a planificação de cada ensaio de irradiação fosse antecedido pela actualização dos débitos de dose nas diferentes geometrias de irradiação disponíveis, com base na lei de decaimento radioactivo:

$$N = N_0 \cdot e^{-\lambda t} \quad (2.2)$$

onde: N_0 - Débito de dose na data de referência dosimétrica;

N - Débito de dose na data de irradiação pretendida;

λ - Constante de desintegração radioactiva do ^{60}Co , e

t - Intervalo de tempo decorrido entre a data de referência dosimétrica e a data de irradiação pretendida.

Desta forma foi possível seleccionar as posições de irradiação das amostras em cada ensaio, de acordo com os débitos de dose pretendidos, assim como prever o tempo de utilização de cada grelha de posicionamento.

2.4 - BIBLIOGRAFIA

Andrade, M.E., Coelho, N. and Oliveira, J.E., Upgrading of a gamma radiation facility, *Radiat. Phys. Chem.*, **46** (4-6), 503-506, 1995.

ASTM E170-05 Standard Terminology Relating to Radiation Measurements and Dosimetry.

Cavaco, M.C., Almeida, J.C., Andrade, M.E. and Kovács, A., Dosimetry commissioning for an industrial cobalt-60 gamma-radiation facility, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, **42** (12), 1185-1188, 1991.

“Dosimetry Systems for Radiation Processing”, *Harwell Dosimeters Limited ed.*, Didcot, Oxfordshire, 1999.

Farah, K., Kuntz, F., Kadri, O. and Ghedira, L., Investigation of the effect of some irradiation parameters on the response of various types of dosimeters to electron Irradiation, *Radiat. Phys. Chem.*, **71**, 337-341, 2004.

Fernandez, F.A., Brichard, B., Ooms, H. and Bergmans, F., Gamma dosimetry using Red 4034 Harwell dosimeters in mixed gamma-neutron environments, in *Proceedings of RADECS 2003: Radiation and its Effects on Components and Systems*, Noordwijk, The Netherlands, 517-521, 2003.

Ferreira, L.M., Casimiro, M.H., “Dosimetry and Gamma Irradiation Tests of Insulator Materials”, Inter-institutional report under CERN service request, ITN, Sacavém, 1998.

Ferreira, L.M., Portugal, L. e Coelho, N., “Manual de Qualidade da Unidade de Tecnologias de Radiação – Descrição de Procedimentos – Versão 0.2”, ITN, Sacavém, 1999.

Ferreira, L.M., Preparação de Suportes Poliméricos com Aplicação Prática na Indústria, Utilizando a Técnica de Copolimerização de Enxerto por Radiação Gama, Tese de Licenciatura em Química Tecnológica, Faculdade de Ciências da Universidade de Lisboa, 1994.

Hubbell, J.H., Photon mass attenuation and energy-absorption coefficients from 1 keV to 20 MeV, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, **33**, 1269-1290, 1992.

ISO 1677:1977: Sealed radioactive sources – General (revised by ISO 2919:1999).

ISO/ASTM 51276-02 Practice for Use of a Polymethylmethacrylate Dosimetry System.

ISO/TR 4826:1979: Sealed radioactive sources – Leak test methods.

Kotler, J.G., “Design and Costs Considerations for a Multipurpose Irradiator”, ed. Nordion International Inc., Hsichu, Taiwan, 1989.

McLaughlin, W.L., Boyd, A.W., Chadwick, K.H., McDonald, J.C. and Miller, A., “Dosimetry for Radiation Processing”, Taylor and Francis, London, 1989.

Mendes, C.M., Almeida, J.C., Botelho, M.L., Cavaco, M.C., Almeida-Vara, E. And Andrade, M.E., The Portuguese gamma irradiation facility, *Radiat. Phys. Chem.*, **35** (4-6), 576-579, 1990.

Miller, A., Sharpe, P. and Chu, R., Dosimetry for industrial radiation processing, in *ICRU News*, Maryland, 2000.

Oliveira, C., Ferreira, L.M., Gonçalves, I.F. and Salgado, J., Monte Carlo studies of the irradiator geometry of the Portuguese gamma irradiation facility, *Radiat. Phys. Chem.*, **65**, 293-295, 2002.

Oliveira, C., Salgado, J., Botelho, M.L. and Ferreira, L.M., Dose determination by Monte Carlo – a useful tool in gamma radiation process, *Radiat. Phys. Chem.*, **57** (3-6), 667-670, 2000a.

Oliveira, C., Yoriyaz, H., Oliveira, M.V. and Ferreira, L.M., Monte Carlo simulation for dose distribution calculations in a CT-based phantom at the Portuguese gamma irradiation facility, *Nucl. Instr. Meth. B*, **213**, 662-665, 2004.

Oliveira, C., Salgado, J., Botelho, M.L. and Ferreira, L.M., Monte Carlo studies for irradiation planning at the Portuguese gamma irradiation facility, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, **53**, 867-875, 2000b.

Polónia, I., Portugal, L. and Andrade, M.E., Dose mapping of dried figs treated by gamma radiation, *Radiat. Phys. Chem.*, **52** (1-6), 569-573, 1998.