

Determinação da dose absorvida na água em câmaras do irradiador de pesquisa de Cs-137

N Briggs¹, A Mantuano^{2,3}, A Pickler^{2,3}, D Cardoso¹ and A Amorim^{1,4}

¹ Instituto Militar de Engenharia (IME), Seção de Engenharia Nuclear (SE/07), Rio de Janeiro, 22290-270, Praça General Tibúrcio 80 – Urca, Brasil

² Departamento de Ciências Radiológicas, Universidade Estadual do Rio de Janeiro (UERJ), Rio de Janeiro, 20550-900, Rua São Francisco Xavier, 542 - Maracanã, Brasil

³ Instituto de Física Armando Dias Tavares, Departamento de Física Aplicada e Termodinâmica, Rua São Francisco Xavier, 542 - Maracanã, Brasil

⁴ Instituto de Defesa Química, Biológica, Radiológica e Nuclear (IDQBRN), Seção de Defesa Radiológica (SDRN), Rio de Janeiro, 23020-470, Avenida das Américas 28.705 - Guaratiba, Brasil

natashabriggs.silva@gmail.com

Abstract. The IDQBRN/CTEx has a Cs-137 research irradiator whose purpose is to promote the development of research in the area of irradiation of materials, assisting in the acquisition of data and scientific publications in the area. Because it is used for research, it is necessary to verify the distribution of dose point in the irradiator chambers. The purpose of this work is to carry out a five-point dosimetry of each irradiator chamber, using the Fricke chemical dosimeter. This dosimeter is used worldwide in several areas of medical and industrial physics, presenting relevant characteristics such as low cost, uncertainties of less than 3% in industrial applications, in addition to being an absolute and primary dosimeter. Dosimetry was performed in the IDQBRN/CTEx irradiator drawers where the materials to be irradiated are placed in the research irradiator chambers.

1. Introdução

Existem alguns cuidados necessários na utilização de um irradiador de pesquisa, entre eles está a necessidade da garantia da dose entregue pelo aparelho durante suas operações de funcionamento [1]. Dependendo do material a ser irradiado, a taxa de dose pode ser um fator a colaborar na modificação das características estruturais do material, cuidado necessário na irradiação de polímeros, por exemplo [2].

O IDQBRN/CTEx possui um irradiador de pesquisa de Cs-137, que contém duas gavetas para inserção de material, câmaras, cujas dimensões são 20 cm de altura, 68 cm no sentido transversal e 137cm no sentido longitudinal [3]. Sua atividade (A) em kCi, em função do ano de irradiação (t) pode ser descrita pela equação 1.

$$A = 108. e^{-0,023.(t-1969)} \quad (1)$$

A atividade atual do irradiador é de, $A = 31$ kCi. A alta taxa de dose do irradiador de Cs-137, exige um dosímetro que possa ser exposto de forma a obter uma resposta confiável no que tange a dosimetria do processo. O dosímetro químico Fricke tem confiabilidade na faixa de dose de 20 a 70 Gy, obtendo uma precisão melhor que 2% para uma dose de 2Gy/min [4].

A vantagem do dosímetro Fricke em relação a outros utilizados em dosimetria de alta taxa de dose é que este é um dosímetro primário e absoluto, reconhecido pelos protocolos ISO/ASTM E-1026-2015; ISSO/ASTM 51939:2017; ICRU REPORT 90; ICRU REPORT 80, não necessitando da utilização de outro dosímetro de referência [5] [6] [7].

Considerado o melhor sistema químico de dosimetria, o dosímetro químico Fricke consegue obter valores mais precisos na faixa de dose absorvida de 40 a 420Gy [8] [9], sendo ideal para a dosimetria de irradiadores industriais ou mesmo de pesquisa.

2. Materiais e Métodos

2.1. Irradiador de pesquisa de Cs-137

O irradiador de pesquisa de Cs-137 das instalações IDQBRN/CTEx é composto por duas câmaras de irradiação, com capacidade total de volume útil de 100 litros [3].

É um irradiador de cavidade, com controle pneumático que posiciona as fontes no local de irradiação e retorna com elas para um barril blindado após o término das irradiações, a fonte gama possui uma densidade de 3g/cm^3 de CsCl mais um aglutinante [3].

Para melhor posicionar os materiais, o irradiador possui uma gaveta de alumínio, elaborada pela equipe responsável pelo manuseio do equipamento. A figura 1 mostra a gaveta do irradiador com dois termômetros de mercúrio posicionados próximos ao centro da gaveta utilizados para a verificação da temperatura atingida no procedimento.



Figura 1: Gaveta de alumínio do irradiador. Gaveta de alumínio utilizada para organizar os materiais que serão posicionados no irradiador.

2.2. Dosímetro Fricke

A preparação do material químico é feita no Laboratório de Ciências Radiológicas (LCR/UERJ) de acordo com a literatura para a confecção de solução padrão de sulfato ferroso amoniacal hexahidratado (FeSO_4) [10].

Para seu preparo é utilizado: sulfato de amônio ferro (II) hexahidratado $[(\text{NH}_4)_2\text{Fe}(\text{SO}_4)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}]$ (99%), cloreto de sódio $[\text{NaCl}]$ (99,5%) e ácido sulfúrico $[\text{H}_2\text{SO}_4]$ (95,0-99%). Em um balão volumétrico de 1L é feita a solução composta de 22ml de ácido sulfúrico diluído em 250ml de água ultra pura. Essa solução é pré-irradiada com 10Gy para eliminar possíveis agentes redutores presentes no ácido usando um irradiador de raio-X, e após 1 hora é adicionado 0,06g de NaCl e 0,392g de sulfato ferroso. Para completar o volume de 1L, é adicionado água de alta pureza. O balão volumétrico é então embalado com proteção contra luz ambiente e armazenado por 24 horas antes que passe pelo Controle da Qualidade, e seja colocado para uso [4].

Ao final do processo, a densidade da solução Fricke é obtida utilizando um picnômetro, calibrado, com um valor médio de $1,023 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ a uma temperatura de 25°C [4].

O dosímetro Fricke é colocado em bolsas de polietileno esterilizadas (bags), contendo aproximadamente 1,4 g de solução, ilustrados na figura 2 [5].

As bags são separadas em três grupos:

- bags irradiadas: são posicionadas nas gavetas do irradiador e expostas por 9 minutos;
- bags de controle: servem para a aferição da radiação de fundo (Background); e
- bags de trânsito: usadas para determinar a dose de trânsito, ou seja, o tempo e dose associados ao traslado da fonte, contando desde a sua saída do cofre até seu retorno.

2.3. Irradiação das amostras

As bags foram expostas por um tempo de 9 minutos, e o experimento foi repetido 3 vezes com permanência da posição.

Bags de controle, não irradiadas, foram utilizadas durante todo o procedimento para que fosse possível retirar os valores de dose de fundo (background).

Outro fator a ser considerado, é a dependência direta da temperatura relacionada ao tempo de exposição que o material fica submetido dentro das câmaras do irradiador, já que a interação de radiação térmica vai aumentar de acordo com o aumento do tempo de exposição. Por isso todas as irradiações contaram com termômetros de mercúrio calibrado, posicionados em ambas as gavetas (superior e inferior). Os termômetros (HG - Brasil, N° 2552, Imersão Total) podem ser vistos dentro da gaveta de alumínio, na figura 1.



Figura 2: Posicionamento da gaveta.

Para facilitar a reprodução da posição, utilizou-se a medida padrão de 36 cm da borda frontal da câmara para posicionamento das gavetas no irradiador, tanto para a gaveta superior quanto para a inferior. Mantendo sempre a gaveta encostada na lateral de onde abre a porta do cofre em que fica armazenada a fonte, como mostra a figura 3.

Nesta posição foi possível que as bags centrais, T3 e T8, fossem posicionadas a 69 cm da entrada da câmara (no sentido longitudinal), e a 15 cm da lateral de onde está posicionado o cofre com a fonte (no sentido transversal).



Figura 3: molde de acrílico para posicionamento das bags.

A distribuição das bags seguiu o mesmo padrão de posicionamento das bags de trânsito para todas as irradiações feitas, tanto na gaveta superior quanto na inferior. Na figura 4, é possível visualizar o molde de acrílico utilizado para a repetição do posicionamento das bags.

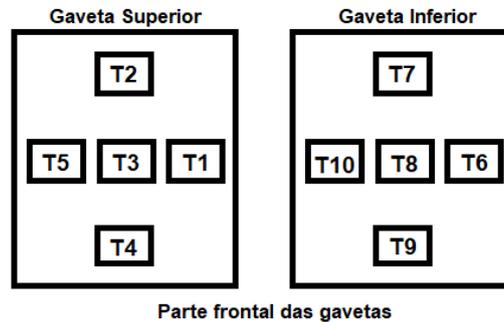


Figura 4: Configuração da distribuição das bags.

2.4. Leitura do dosímetro Fricke.

As soluções, irradiada e não irradiada, são retiradas das bags e colocada na cubeta do espectrofotômetro Varian Cary 50 BIO (Varian Australia Pty Ltd.), que faz uma leitura por meio da interação direta do feixe de luz com a cubeta e o líquido depositado, absorvância. Para tal, utiliza-se um comprimento de onda de 304nm e resolução de 1nm. Desta forma é possível obter a medida da absorvância (Abs) diretamente do espectrofotômetro.

A partir destes dados é possível fazer a aquisição da Dose Fricke, que será obtida através dos valores de variação da absorvância dividida pelos parâmetros fixos relativos à solução química Fricke [4].

Para a aquisição da Dose absorvida em água, é necessário fazer uma conversão da Dose Fricke por meio das equações 1 e 2 [11].

$$D_F = \frac{\Delta OD}{G(Fe^{3+}) \cdot l \cdot \rho \cdot \epsilon} \quad (1)$$

Onde ρ é a densidade da solução Fricke, cujo valor obtido para este trabalho foi de 1,023 g/cm³ à 25°C, calculada pelo Laboratório Fricke do LCR; ΔOD é a diferença de absorção entre a solução irradiada e a amostra de controle não irradiada; e o coeficiente de absorvidade molar dos íons férricos (ϵ), a 304 nm, vai ser 2174 M⁻¹.mol⁻¹ [11].

Para a conversão de Dose Fricke para Dose absorvida em água (D_w) é utilizada a equação 2.

$$D_w = D_F \cdot f \cdot p_{wall} \cdot k_{dd,F} = \frac{\Delta OD}{G(Fe^{3+}) \cdot l \cdot \rho \cdot \epsilon} \cdot f \cdot p_{wall} \cdot k_{dd,F} \quad (2)$$

Onde f é o fator de conversão devido à diferença da dose depositada no mesmo volume de água; p_{wall} é o fator de correção da parede onde se encontra depositada a solução; e $k_{dd,F}$ é o fator de correção devido a não uniformidade do perfil de dose lateral sobre a área apresentada pelo recipiente que contém a solução e às variações da distribuição de profundidade do feixe na direção paralela ao eixo do feixe.

Ao passar para dose absorvida em água, os valores encontrados foram tão próximos aos obtidos em Dose Fricke que uma das conclusões deste trabalho foi que as bolsas de polietileno para a solução Fricke não causa nenhuma alteração significativa nos valores encontrados (espessura micrométrica). Desta forma, é uma boa aproximação considerar os valores encontrados como dose absorvida em água.

3. Resultados e discussões

3.1. Valores de dose de trânsito

Foram adquiridos os dados para doses de trânsito, reproduzidas em três dias diferentes, com a finalidade de achar um valor confiável para o tempo e para o valor de dose Fricke no centro da gaveta. O tempo de trânsito médio encontrado foi de $(32,53 \pm 3,90)$ segundos. Os dados obtidos, em dose absorvida na água, foram reproduzidos na figura 5, com a barra de incerteza tipo A das medidas.

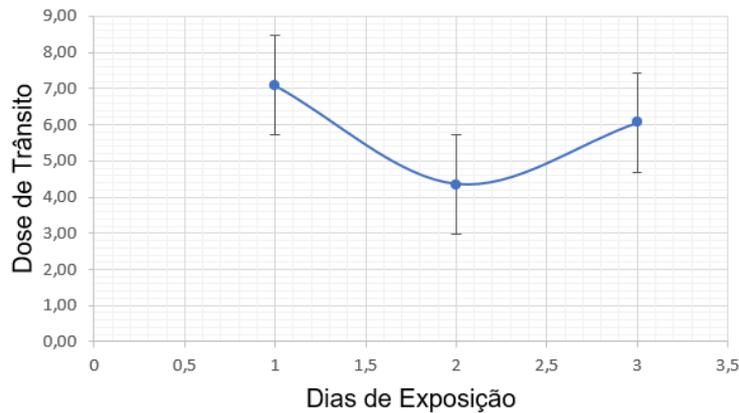


Figura 5: Dose de trânsito X Dias de exposição.

A dose de trânsito média encontrada nesta posição foi de $(5,84 \pm 1,39)$ Gy.

3.2. Valores das irradiações das duas câmaras.

Foi feita uma média entre as bags de mesma posição para que fosse possível verificar as incertezas tipo A associadas às medidas entre elas, e desta forma obter uma boa base para mapeamento das doses nestes 5 pontos de cada câmara.

A programação do irradiador permite que o processo inteiro seja concluído no tempo planejado pelo cronograma próprio do irradiador, desta forma, dentro dos 9 minutos de irradiação programados estão inclusos os $(32,53 \pm 3,90)$ segundos de tempo de trânsito da fonte. Os dados comparativos das 3 irradiações foram descritos nas tabelas 1.

Tabela 1: Média comparativa.

Bags comparadas	Média de Dose (Gy)	Incerteza tipo A (Gy)
I1, I11 e I21	224,43	18,47
I2, I12 e I22	213,47	2,61
I3, I13 e I23	214,69	9,67
I4, I14 e I24	227,83	9,45
I5, I15 e I25	215,94	8,16
I6, I16 e I26	119,32	4,39
I7, I17 e I27	123,85	6,51
I8, I18 e I28	128,14	6,24
I9, I19 e I29	122,03	7,69
I10, I20 e I30	117,63	4,98

Os tempos obtidos nas irradiações de cada conjunto de 10 bags, sendo 5 na câmara superior e 5 na câmara inferior, foram de respectivamente: 9 minutos, 9 minutos e 7 segundos e 9 minutos e 10 segundos.

3.3. Dados comparados para as irradiações nas câmaras.

Para uma melhor compreensão, a análise gráfica das médias das bags pelas posições nas câmaras superior e inferior são apresentadas nos gráficos 2 e 3.

Na figura 6 foi possível mostrar as médias relativas às 5 bags posicionadas nas gavetas superiores, segundo a ordem de:

- na posição 1 se encontram as bags I1, I11 e I21; na posição 2 se encontram as bags I2, I12 e I22; na posição 3 se encontram as bags I3, I13 e I23; na posição 4 se encontram as bags I4, I14 e I24; e na posição 5 se encontram as bags I5, I15 e I25.

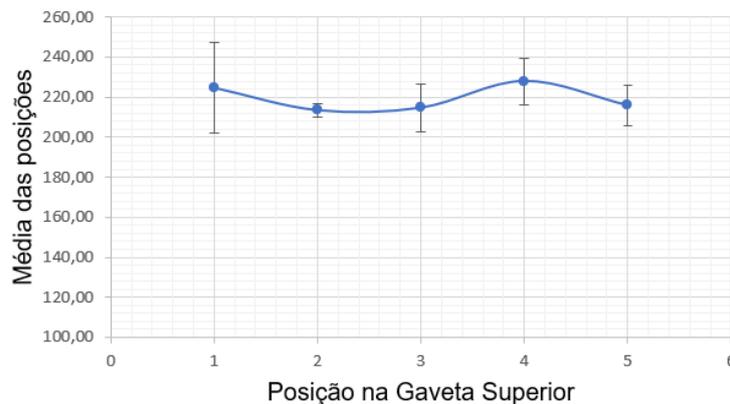


Figura 6: Média da dose absorvida na água X Posições na gaveta superior.

Na figura 7 foi possível mostrar as médias relativas às 5 bags posicionadas nas gavetas inferiores, segundo a ordem de:

- na posição 6 se encontram as bags I6, I16 e I26; na posição 7 se encontram as bags I7, I17 e I27; na posição 8 se encontram as bags I8, I18 e I28; na posição 9 se encontram as bags I9, I19 e I29; e na posição 10 se encontram as bags I10, I20 e I30.

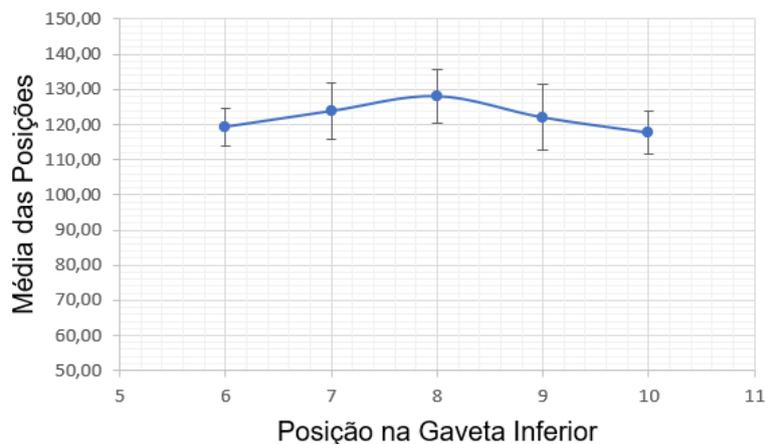


Figura 7: Média da dose absorvida na água X Posições na gaveta inferior.

A dose absorvida em cada posição dependerá diretamente da angulação do feixe de radiação em relação à distância em que se encontra cada uma das bags de solução Fricke, justificada pela relação da Lei de inverso do quadrado da distância. Como a fonte não é pontiforme e se locomove por um trilho, estes dois fatores precisam ser levados em conta também.

As bags posicionadas mais à esquerda no irradiador ficam mais próximas ao local de onde sai a fonte, e por isso são as doses mais altas das câmaras.

As menores doses da câmara inferior advêm do fato da distância entre o local de deslocamento da fonte e a altura de 18,7 cm da posição em que foram inseridas as bags.

Como a fonte não é pontual, são geradas variações que em comparação analítica de valores, precisam ser levadas em consideração como, por exemplo, o acréscimo de dose absorvida devido ao deslocamento da fonte.

Por depender de um compressor para posicionamento da fonte, em algumas irradiações ocorrem valores diferenciados de exposição, o que demanda em acréscimo de dose para casos em que a fonte demora mais tempo para se posicionar e/ou para voltar para o cofre.

Estes valores de acréscimo de dose gerados pela diferença de tempo do processo de irradiação não foram retirados no decorrer do trabalho por ser necessário precisar em qual posição a fonte ficou por mais tempo, desta forma foram obtidos os valores totais de 9 minutos na primeira irradiação; 9 minutos e sete segundos na segunda irradiação; e 9 minutos e 10 segundos na terceira irradiação.

4. Conclusões

Foi possível determinar a dose absorvida na água média para cada uma das cinco posições de cada câmara utilizando o dosímetro Fricke. Todos os valores encontrados possuem uma incerteza tipo A menor que 3%, quando retirada a diferença de tempo, em segundos, de uma irradiação para outra.

Com o desenvolvimento deste trabalho foi possível perceber que não é viável a comparação das doses da gaveta, de forma geral, inferior e superior, por serem muito discrepantes, desta forma, a melhor maneira de se verificar as doses é com uma estatística feita ponto à ponto e com uma interpolação para os valores intermediários caso seja necessária a confecção de um mapa de dose, gaveta por gaveta.

Com os dados obtidos é possível identificar a necessidade de automatização do sistema de controle pois algumas das falhas nas medidas de tempo advêm do fato da ocorrência de travamentos no deslocamento em tempos variados, ocasionado pelo uso de um compressor associado à um sistema pneumático que empurrar a fonte até o local de irradiação e recolhe ao terminar o tempo de exposição.

5. Referências

- [1] ISO/ASTM 2002. INTERNATIONAL ORGANIZATION FOR STANDARDIZATION / AMERICAN SOCIETY FOR TESTING AND MATERIALS. Standard Guide for Selection and Calibration of Dosimetry Systems for Radiation Processing. ISO/ASTM 51261:2002(E).
- [2] Sousa, A R 2008. Estudo do efeito combinado da degradação por radiação gama e fratura sob tensão ambiental (ESC) nas propriedades de polímeros vítreos. Universidade Federal de Pernambuco. Centro de Tecnologia e Geociências. Departamento de Energia Nuclear. Recife. Pernambuco. Setembro.
- [3] Oltmann, A 1969. B. P. C. D. I. Manual. BNL 13506 Brookhaven National Laboratory. New York.
- [4] Arangoa, E M, Pickler, A, Mantuano, A, Salata, C, Almeida, C E 2020. Estudo de viabilidade do dosímetro químico Fricke como sistema dosimétrico independente para a plataforma de pesquisa de radiação em pequenos animais (SARRP). Departamento de Ciências Radiológicas (DCR). Universidade Estadual do Rio de Janeiro (UERJ). Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN). Rio de Janeiro. RJ.
- [5] Mantuano, A, Salata, C, Mota, C L, Pickler, A, Magalhães, L A G, Almeida, C E 2020. Fricke dosimetry for blood irradiators. <https://doi:10.1002/MP.14487>
- [6] ISO/ASTM 51026:2015 2015. Practice for using the Fricke dosimetry system.
- [7] ASTM E1026-04 2006. Standard Practice for Using the Fricke Reference Standard Dosimetry

- System.
- [8] MDS NORDION 2001. Operator's Manual. Cobalt-60 Dry Storage Irradiator IR-214 CNEN/CDTN, IN/OM 1790 IR214, Canada.
 - [9] Mantuano, A, Mota, C L, Salata, C, Pickler, A, Magalhães, L A C, Almeida, C E 2021. "A pilot study of a postal dosimetry system using the Fricke dosimeter for research irradiators." *Physica Medica* 84 (2021): 214-219.
 - [10] McEwen, M, El Gamal, I, Mainegra-Hing, E, Cojocar, C 2014. Determinação do rendimento químico da radiação (G) para o sistema de dosimetria química Fricke em feixes de fótons e elétrons 2014:24.
 - [11] Klassen, N V, Shortt, K R, Seuntjens, J, Ross, C K 1999. Fricke dosimetry: the difference between G (Fe 3 +) for 60 Co γ -rays and high-energy x-rays. *Phys Med Biol* 1999; 44:1609–24. <https://doi.org/10.1088/0031-9155/44/7/303>.

Agradecimento

Agradecemos ao Técnico do IDQBRN/CTEx, Paulo Ricardo Teles de Vilela, pelo auxílio no manuseio do irradiador e pela disponibilidade de tempo para a confecção e conclusão do projeto.