

INSTITUTO DE ENGENHARIA NUCLEAR

CAROLINE MATTOS BARBOSA

DETERMINAÇÃO DE SALINIDADE EM MEIO AQUOSO EMPREGANDO RADIAÇÃO
GAMA PARA PREDIÇÃO DE FRAÇÕES DE VOLUME

Rio de Janeiro
2016

CAROLINE MATTOS BARBOSA

DETERMINAÇÃO DE SALINIDADE EM MEIO AQUOSO EMPREGANDO RADIAÇÃO
GAMA PARA PREDIÇÃO DE FRAÇÕES DE VOLUME

Dissertação de Mestrado apresentada ao Programa de Pós-graduação em Ciência e Tecnologia Nucleares do Instituto de Engenharia Nuclear da Comissão Nacional de Energia Nuclear como parte dos requisitos necessários para a obtenção do Grau de Mestre em Ciência e Tecnologia Nucleares.

Orientadores: Prof. Dr. César Marques Salgado e Prof. Dr. Luis Eduardo Barreira Brandão

Rio de Janeiro
2016


BARB Mattos Barbosa, Caroline
Determinação de Salinidade em Meio Aquoso Empregando Radiação
Gama para Predição de Frações de Volume / Caroline Mattos Barbosa -
Rio de Janeiro: CNEN/IEN, 2016
x, 66 f.: il:30 ; 31 cm
Orientadores: Prof. Dr. César Marques Salgado.
Prof. Dr. Luis Eduardo Barreira Brandão.
Dissertação (mestrado) - Instituto de Engenharia Nuclear, PPGIEN, 2016
1. Radiação gama. 2. Salinidade. 3. Código MCNP-X

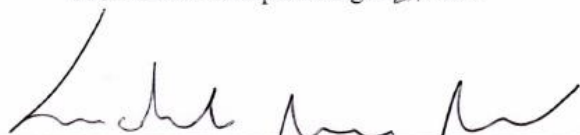
“DETERMINAÇÃO DE SALINIDADE EM MEIO AQUOSO EMPREGANDO
RADIAÇÃO GAMA PARA PREDIÇÃO DE FRAÇÕES DE VOLUME”


Caroline Mattos Barbosa

DISSERTAÇÃO SUBMETIDA AO CORPO DOCENTE DO PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM CIÊNCIA E TECNOLOGIA NUCLEARES DO INSTITUTO DE ENGENHARIA NUCLEAR COMO PARTE DOS REQUISITOS NECESSÁRIOS PARA A OBTENÇÃO DO GRAU DE MESTRA EM CIÊNCIA E TECNOLOGIA NUCLEARES.

Aprovada por:


Prof. César Marques Salgado, D.Sc.


Prof. Luís Eduardo Barreira Brandão, D.Sc.


Prof. Rubens Souza dos Santos, D.Sc.


Prof. Ademir Xavier da Silva, D.Sc.

RIO DE JANEIRO, RJ - BRASIL

FEVEREIRO DE 2016

A Deus, por permitir que eu chegasse até o fim.

Agradecimentos

Agradeço à minha família, pelo apoio e compreensão durante o curso. Ao meu companheiro, Cesar Raitz Junior, um agradecimento especial pelo incentivo, auxílio e carinho em todos os momentos difíceis que passei neste mestrado.

Aos meus orientadores César Marques Salgado e Luis Eduardo Barreira Brandão, pela oportunidade oferecida em um momento tão delicado, pela paciência, puxões de orelha, pelo voto de confiança e pela amizade.

Aos amigos da turma de 2013, por todas as loucuras que passamos juntos, em especial ao meu BFF (*Best Friend Forever*) Sérgio Dias Costa, Alexander Debossan, Franciana Rosa e Pâmela Nolasco.

Aos companheiros do grupo de ATN, Eddie Puertas, Eduardo Ramos, Hericka Kenup, Raoni Affonso e Umberto Cassará, pelas conversas, ajuda no laboratório e amizade.

Não poderia me esquecer da primeira pessoa a acreditar que eu era capaz de ser admitida no mestrado, Dona Claudia Coelho, sempre disposta a ajudar e muito carinhosa com os alunos.

Agradeço à CAPES, pelo apoio financeiro para o desenvolvimento desta pesquisa.

Resumo

Na extração *offshore*, a água produzida pode apresentar características geoquímicas que correspondem à mistura de água de formação (água conata) e da água do mar (água de injeção) e o comportamento físico-químico da água injetada permite variação considerável no índice de salinidade alterando a relação água/óleo e tornando-se difícil prever por cálculos do balanço de massa devido à grande anisotropia dos reservatórios. Um dos métodos para se avaliar o comportamento da água de injeção é determinar o índice de salinidade (cloretos) da água produzida em cada poço. Os fluidos oriundos desta extração são separados nas suas diferentes frações: líquida (hidrocarbonetos e compostos orgânicos e água) e gasosa (gás natural). Para a predição das frações de volume em regimes multifásicos torna-se necessário um monitoramento em tempo real da qualidade da água (índice de salinidade). A densitometria gama é uma técnica não invasiva indicada para medir o índice de salinidade da água e determinar sua interferência no sinal registrado por um detector cintilador. No entanto, essa técnica mostra alta dependência na composição química da fase aquosa, o que afeta consideravelmente a interação da radiação gama de baixa energia com a água salinizada. Este trabalho apresenta uma metodologia baseada nos princípios de atenuação de raios gama, por meio de simulações de Monte Carlo para calcular a influência da salinidade em medidas utilizando meios aquosos. O sistema de detecção utiliza um detector NaI(Tl) e duas fontes de radiação gama (^{137}Cs e ^{241}Am) para calcular o feixe transmitido visando obter os coeficientes de atenuação mássico em amostras salinas. Os sais NaCl, KCl e MgCl_2 foram investigados variando o percentual de concentração em 2%, 6%, 10% e 14%, na faixa de energia de 20 a 800 keV. A validação experimental utilizou a amostra de cloreto de sódio (concentrações de 2,5; 2,0; 1,5 e 1,0 Molar) utilizando os valores de radioisótopos conhecidos, com 59,54 keV (^{241}Am); 356,02 keV (^{133}Ba); 662 keV (^{137}Cs); 1,27 MeV (^{22}Na) e 1,33 MeV (^{60}Co). O código computacional MCNP-X foi utilizado para desenvolver a geometria apropriada a ser implementada experimentalmente. Os resultados obtidos na simulação foram validados experimentalmente e comparados valores teóricos do NIST e XCOM apontando boa concordância. Os resultados indicam que é possível utilizar esta metodologia para correção do índice de salinidade em cálculos de frações de volume ou ainda para diferenciar a água de produção da água de injeção utilizando fontes de baixa energia.

Palavras-chave: Radiação gama; Salinidade; Código MCNP-X.

Abstract

In the offshore extraction, the produced water can present geometric characteristics that correspond to the mixture of forming water and the sea water (injection water) and the physical-chemical behavior of the injected water to allow the considerable variation of the salinity index. Altering the water / oil ratio and making it difficult to predict mass balance calculations due to the large anisotropy of the reservoirs. One of the methods to evaluate the behavior of the injection water is to determine the salinity index (chlorides) of the water produced in each well. The fluids derived from this extraction are separated into their different fractions: liquid (hydrocarbons and organic compounds and water) and gas (natural gas). A real-time monitoring of water quality (salinity index) is required for pre-editing volume fractions in multiphase regimes. Densitometry is a noninvasive technique indicated to measure the water salinity index and determine its unsigned interference recorded by a scintillator. However, this technique shows high dependence on the chemical composition of the aqueous phase, which considerably affect the interaction of low energy gamma radiation with saline water. This work presents a methodology with our principles of gamma ray attenuation, using Monte Carlo simulations to calculate an influence of salinity on measurements using aqueous medium. The detection system uses a NaI(Tl) detector and two gamma radiation sources (^{137}Cs and ^{241}Am) to calculate the transmitted beam to obtain the maxima attenuation coefficients in salt samples. The NaCl, KCl and MgCl_2 salts were investigated by varying the concentration percentage by 2%, 6%, 10% and 14%, in the energy range of 20 to 800 keV. Experimental validation uses a sample of sodium chloride (concentrations of 2.5, 2.0, 1.5 and 1.0 molar) using the known radioisotope values with 59.54 keV (^{241}Am); 356.02 keV (^{133}Ba); 662 keV (^{137}Cs); 1.27 MeV (^{22}Na) and 1.33 MeV (^{60}Co). The MCNP-X computational code was used to develop an appropriate geometry to be implemented experimentally. The results obtained in the simulation were experimentally validated and the theoretical values of NIST and XCOM were compared with good agreement. The results indicate that the methodology for the correction of salinity index in calculations of volume fractions or to differentiate one from the production of injection water in low energy sources.

Keywords: Gamma radiation; Salinity; MCNP-X code

Lista de Figuras

Figura 1: Tipos de água na exploração petrolífera offshore.	14
Figura 2: Classificação das águas associadas ao óleo segundo sua concentração de sais insolúveis.	16
Figura 3: Esquema da composição média da água do mar e a concentração de 35 g/l.	16
Figura 4: Histórico da salinidade medida na água produzida no poço G.	17
Figura 5: Histórico da salinidade medida na água produzida no poço M.	18
Figura 6: Diferentes possibilidades de interação de fótons gama com a matéria.	24
Figura 7: Espalhamento Coerente: absorção de fótons gama pelo átomo e remissão com a energia igual a energia incidente.	25
Figura 8: Efeito fotoelétrico: emissão de elétron e radiação característica.	26
Figura 9: Efeito Compton: espalhamento de um fóton por um elétron livre.	26
Figura 10: Produção de pares, evidenciando também a aniquilação do par pósitron-elétron.	28
Figura 11: Curva que apresenta a região de predominância do tipo de interação da radiação incidente em relação aos valores de número atômico e de energia do gama incidente.	29
Figura 12: Interação do feixe de radiação gama por um material absorvedor.	29
Figura 13: Geração de um pulso elétrico a partir da incidência de um fóton em um detector cintilador NaI(Tl).	32
Figura 14: Esquema do sistema de detecção.	34
Figura 15: Espectro teórico (linha cheia) da distribuição de energia e espectro de altura de pulsos (linha tracejada) para um detector cintilador NaI(Tl).	35
Figura 16: Espectro de uma fonte de empregando um detector cintilador NaI(Tl).	38
Figura 17: Matéria em diferentes estados e as possibilidades de mudança de estado.	41
Figura 18: A matéria e suas variações.	41
Figura 19: Solução salina de NaCl: distribuição iônica.	43
Figura 20: Esboço representativo de geometria para cálculo do coeficiente de atenuação.	50
Figura 21: Modelagem desenvolvida do arranjo experimental.	54
Figura 22: Comparação entre o código MCNP-X e NIST para amostra de água pura.	55
Figura 23: Coeficiente de Atenuação linear em função do número de eventos gerados.	56
Figura 24: Coeficiente de atenuação mássico para solução de cloreto de sódio (NaCl).	57
Figura 25: Coeficiente de atenuação mássico para solução de cloreto de magnésio (MgCl ₂).	57
Figura 26: Coeficiente de atenuação mássico para solução de cloreto potássio (KCl).	58
Figura 27: Amostra de cloreto de sódio com diferentes energias.	58
Figura 28: Espectros da solução para as concentrações com energia de 59,54 keV.	60
Figura 29: Espectros da solução para as concentrações com energia de 662 keV.	61
Figura 30: Coeficiente de Atenuação Mássico para diferentes concentrações para 59,54 keV e 662 keV.	62

Lista de tabelas

Tabela 1: Densidade da água para diferentes temperaturas.....	44
Tabela 2: Propriedades Físico-Químicas do Cloreto de Sódio.....	46
Tabela 3: Densidade Específica de Soluções Aquosas de Cloreto de Sódio.....	46
Tabela 4: Atividade das fontes de radiação.	51
Tabela 5: Coeficiente de Atenuação Mássico para a água e variação de temperatura usando a energia da fonte de ^{241}Am	59
Tabela 6: Coeficiente de Atenuação Mássico para a água e variação de temperatura usando a energia da fonte de ^{137}Cs	59
Tabela 7: Transformação da concentração molar em percentual.	60

Sumário

1	Introdução	13
1.1	Motivação e viabilidade.....	15
1.2	Objetivo	19
1.3	Revisão Bibliográfica	19
2	Fundamentos Teóricos.....	23
2.1	Interação da radiação eletromagnética com a matéria	23
2.1.1	Espalhamento Coerente ou Efeito Rayleigh.....	24
2.1.2	Efeito Fotoelétrico	25
2.1.3	Efeito Compton ou espalhamento inelástico	26
2.1.4	Produção de pares.....	27
2.2	Atenuação de radiação gama e coeficiente de atenuação	29
2.3	Detecção de radiação ionizante e detectores cintiladores.....	31
2.3.1	Sistema de Detecção	34
2.4	Espectros registrados por um detector cintilador NaI(Tl).....	35
2.5	Resolução em energia em um detector cintilador NaI(Tl).....	37
2.6	Misturas e soluções químicas.....	40
2.7	Espalhamento de radiação gama por misturas e soluções	44
2.7.1	Cálculo do coeficiente de absorção usando Beer-Lambert	45
2.7.2	Cálculo do coeficiente de absorção usando a Lei de Beer	48
2.7.3	Cálculo do coeficiente de absorção usando Monte Carlo.....	49
3	Materiais e Métodos	51
3.1	Materiais	51
3.2	Métodos	52
3.2.1	Potencialidade do Código.....	52
3.2.2	Salinidade	52
3.2.3	Arranjo experimental.....	53
3.2.4	Modelagem do experimento	53

4	Resultados.....	55
4.1	Avaliação dos parâmetros utilizados em simulações.....	55
4.1.1	Simulando no código MCNP-X	55
4.1.2	Estudo do melhor valor para NPS	55
4.1.3	Coeficientes de atenuação mássicos para diferentes concentrações de sal	56
5	Conclusão	63

1 Introdução

A invenção dos motores a gasolina e óleo diesel e o grande interesse da sociedade em usufruir desse modal de transporte transformou profundamente a matriz energética no mundo na transição entre os séculos XIX e XX estabelecendo uma das mais ricas atividades industriais, a de processamento de petróleo e uso de seus derivados. Motivado por esse grande interesse econômico e associado com a necessidade do desenvolvimento de novos produtos e processos fabris, o estímulo a novas pesquisas empregando diferentes tecnologias foi e tem sido muito estimulado pela indústria de prospecção de óleo e petroquímica.

No início da indústria petrolífera, a extração de óleo era quase que totalmente em bacias territoriais, chamada de tecnologia *onshore* ou *in land*, mas na década de 1930 no Golfo do México até a década de 1950 na Venezuela teve início a exploração de óleo na plataforma continental usando uma nova tecnologia denominada *offshore*. No Brasil, já no final de 1950, análises geológicas e geotécnicas demonstravam a possibilidade de o país ter reservas de óleo na plataforma continental e a confirmação ocorreu pela descoberta do primeiro poço *offshore* em 1968, no Campo de Guaricema (SE). A primeira perfuração de um poço *offshore* foi realizada em 1968, na Bacia de Campos, no Campo de Garoupa (RJ). No ano seguinte foram descobertos o Campo de São Mateus e posteriormente no campo de Ubarana, ambos no estado do Espírito Santo, contudo tais descobertas não surtiram maior efeito, pelo fato das tecnologias existentes não serem condizentes com a realidade brasileira. Em função de sua produção diária, a bacia de Campos é reconhecida como a mais produtiva do país e uma das maiores produtoras de petróleo de águas profundas do mundo (Lucchesi, 1998).

Nesse contexto, novas tecnologias foram, e são, desenvolvidas e incorporadas à exploração *offshore*, principalmente nas áreas que se referem ao projeto de plataformas, ao desenvolvimento de mecanismo de perfuração e a evolução dos dispositivos e dos processos de transferência do óleo de poços em grandes profundidades até a plataforma. Em síntese, pode-se considerar que a produção de um poço basicamente é um processo de escoamento de fluidos desde as profundezas do poço até a superfície, onde estes fluidos são separados nas suas diferentes frações: líquida (hidrocarbonetos e compostos orgânicos e água) e gasosa (gás natural). Em todos os poços sempre há produção de água, inicialmente em quantidades pequenas e, à medida que a produção continua, a pressão interna do poço diminui, o que provoca uma alteração nos fluidos. Para manter a pressão do reservatório, água é injetada e essa movimentação de fluidos altera a relação água/óleo e mais água é transportada até a plataforma. Assim, a água está fortemente ligada ao processo de extração do óleo, e ela recebe diferentes

designações dependendo de sua origem, de localização e de suas características físico-químicas como salinidade e concentração de constituintes dissolvidos, conforme mostrado na Figura 1.

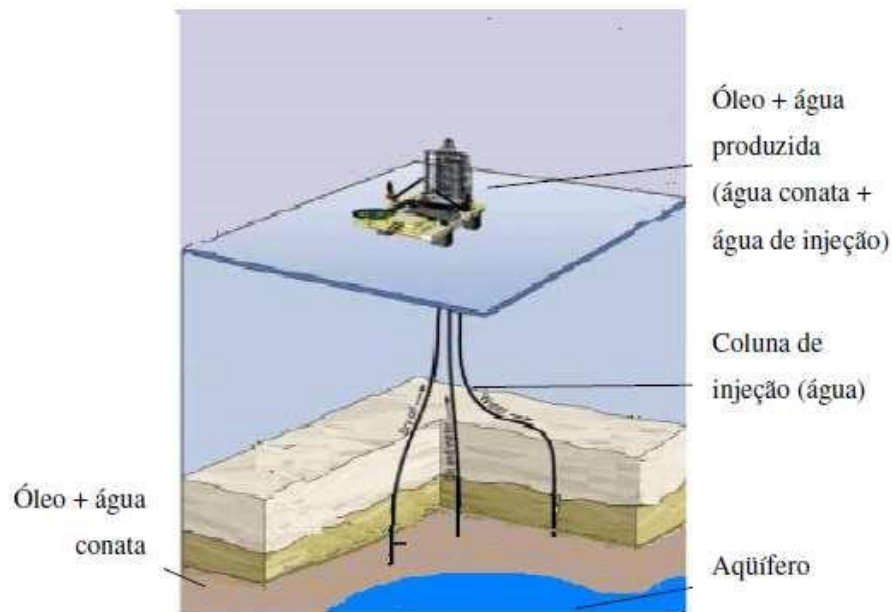


Figura 1: Tipos de água na exploração petrolífera offshore.

Assim, para o processo de extração tem-se as seguintes definições (USBM, 1968):

- **Água Conata:** água de origem continental ou marítima, que está associada aos poros e fissuras da rocha. Esta água está contida desde a formação sedimentar da rocha e pode ser remanescente da antiga água do oceano, mas com sua composição química muito alterada. Normalmente, elas são pobres em bicarbonato e sulfato e muito mais salinas do que a água do mar. A salinidade para muitas águas aumenta com a profundidade e com a idade. Também conhecida como água de formação.
- **Aquífero:** é uma região abaixo da superfície da Terra capaz de produzir água, a partir de um poço. Fica localizada abaixo do contato óleo-água e é produzida em virtude de seus movimentos dentro da parte saturada em óleo.
- **Água injetada:** água utilizada nos processos convencionais de recuperação do petróleo, mantendo a pressão do reservatório alta para que haja elevação do petróleo, levando do poço até a superfície. Esta água pode ter várias origens. São elas: água subterrânea, água de superfície (retirada de lagos, rios, etc.), água do mar e água produzida.
- **Água produzida:** é a água associada à produção de petróleo.

- **Zona de transição:** é a região onde há uma conexão entre um aquífero e um aglomerado de hidrocarbonetos, em que percorrem toda a água até o local saturado de óleo através da camada de rocha porosa.
- **Água dissolvida na fase de hidrocarbonetos:** durante o processo de extração do petróleo, as alterações na pressão e temperatura podem ocorrer, fazendo a água condensar ou evaporar. Esse processo pode alterar a concentração de sais no fluido.

Para a indústria de prospecção/produção de petróleo e gás é evidente a necessidade de dispositivos que possibilitam a avaliação correta do perfil de fluxo no interior dos dutos. Devido a crescente atividade exploratória nas plataformas *offshore*, onde o espaço disponível é muito restrito, dispositivos que sejam compactos e eficientes são extremamente úteis e, este fato tem motivado intensa pesquisa objetivando criar medidores que forneçam resultados acurados para cada uma das fases presentes no meio. As mais diferentes tecnologias são empregadas nos dispositivos existentes no mercado, mas a necessidade crescente de novos métodos que permitam a avaliação em tempo real das frações de volume dos diferentes componentes do meio abriu um campo promissor para a associação das técnicas nucleares não invasivas e uma alternativa mais atrativa é o emprego de técnicas de densitometria gama que são fundamentadas na incidência de raios gama colimados que penetram o duto e interagem com o meio interno e são registrados por detectores de radiação adequadamente posicionados.

No entanto, esse método mostra alta dependência na composição química da fase aquosa, pois a mistura da água conata e da água de injeção permite variação considerável no índice de salinidade, o que afeta consideravelmente a interação da radiação gama com o meio.

Um método para resolver esta questão seria medir regularmente a salinidade na água e usar esse dado para corrigir essa interferência no sinal registrado pelo detector, essa solução nem sempre é viável devido a dificuldades técnicas de obter-se o valor a salinidade da água em situações onde não é possível acessar a linha de produção (Backstrom e Eicken, 2006). Esse efeito ocorre principalmente em baixa energia. Assim, é altamente indicado um procedimento não invasivo que possibilite medir o índice de salinidade da água e permita corrigir o sinal do espalhamento de raios gama.

1.1 Motivação e viabilidade

Para caracterizar um reservatório, é muito importante o conhecimento da composição química da água conata principalmente a variação da concentração de íons como Ca^{2+} , Ba^{2+} ,

Sr^{2+} , Mg^{2+} , Ba^{2+} , Na^+ , Cl^- , SO_4^{-2} , HCO_3^- , pois esse resultado permite estudar a mistura de águas de formação e determinar a contribuição de diferentes zonas no poço para o total da água produzida e identificar a zona de produção de água de um determinado poço (Bath *et al.*, 2006). Muita água é necessária na extração de petróleo, calcula-se que para cada barril de óleo extraído são gerados de 1,5 a 2,0 barris de água de produção e, como a composição da água de formação é extremamente variável, pois depende da geologia do reservatório e o conhecimento da composição da água de produção é extremamente necessário para assegurar a integridade dos dutos de extração. A variação da sua composição química pode favorecer a formação de incrustação devido a deposição de sais insolúveis que se formam pela incompatibilidade química entre a água de formação e a água injetada. Assim, torna-se necessário um monitoramento em tempo real da qualidade da água em cada reservatório (Bezerra, 2006). Com relação à salinidade das águas associadas ao óleo são classificadas como águas doce, salobra, salgada e salmoura de acordo com o intervalo no índice de salinidade como mostrado na Figura 2 (Kharaka e Hanor, 2013).

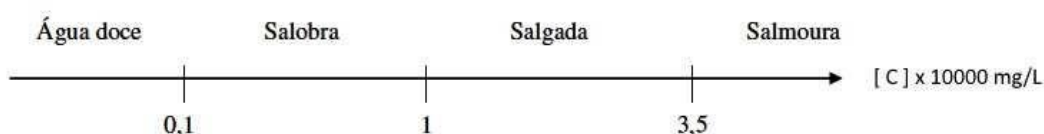


Figura 2: Classificação das águas associadas ao óleo segundo sua concentração de sais insolúveis.

Considera-se que, em média, a salinidade da água do mar seja maior que 35 g/ℓ, em sólidos dissolvidos totais, cuja composição pode ser vista na Figura 3.

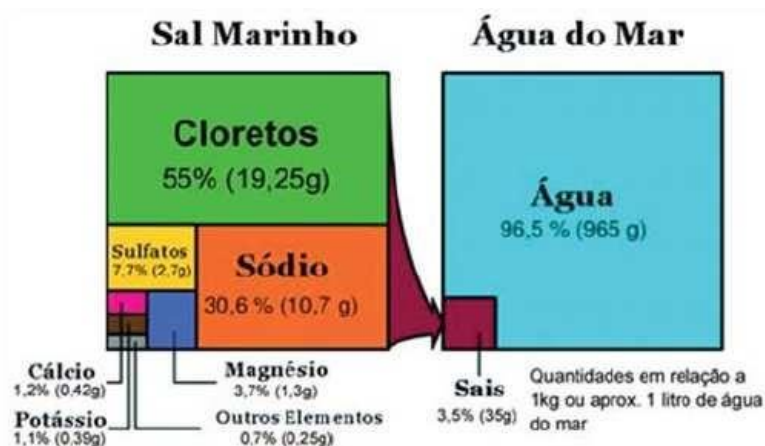


Figura 3: Esquema da composição média da água do mar e a concentração de 35 g/ℓ.

Na extração *offshore*, inicialmente a injeção de água para manter a pressão no poço é realizada utilizando-se água do mar e, em uma etapa posterior, essa água produzida pode ser reinjetada no poço. Assim, com o tempo a água produzida começa a apresentar características geoquímicas que corresponde a mistura de água de formação e da água do mar e o comportamento químico dessa água injetada torna difícil de ser previsto por cálculos do balanço de massa devido à grande anisotropia dos reservatórios. Um dos métodos para se avaliar o comportamento da água de injeção é a determinar o índice de salinidade (cloretos) da água produzida em cada poço. Zandonade e Sanjombi (2015) em seu trabalho realizaram o acompanhamento da variação temporal para dois poços, denominados G e M e o resultado é mostrado nas Figura 4 e 5 respectivamente para os poços G e M. Para o poço G, a redução da salinidade registrada antes de julho de 2012 mostra um possível indício que a água produzida tem uma maior concentração de água reinjetada pois a salinidade tem uma variação e decresce. A partir de novembro 2012 a salinidade da água produzida se mantém praticamente constante. Já para o poço M, há o registro de um valor constante da ordem de 140 g/ℓ, bem diferente da concentração média da água do mar. A grande variação apresentada em maio de 2013, salinidade em torno de 100 g/ℓ, indica a maior contribuição da água do mar na água de injeção.



Figura 4: Histórico da salinidade medida na água produzida no poço G.

As Figuras 4 e 5 demonstram a complexidade do processo e a necessidade de uma monitoração constante do índice de salinidade da água de produção (Zandonade e Sanjombi, 2015).



Figura 5: Histórico da salinidade medida na água produzida no poço M.

Um fator que dificulta a instalação de dispositivos nas linhas de transporte de óleo do reservatório até a plataforma é que o fluido que se desloca dentro dos dutos é extremamente abrasivo e qualquer sensor instalado para monitorar a salinidade que fique em contato direto com o meio é fortemente corroído pelo contato direto da sua superfície sensível e o meio e, em pouco tempo, tem que ser substituído. Assim, o ideal para medida direta da salinidade do fluido é que o dispositivo seja não invasivo.

Esta é uma das características que diferenciam os sensores fundamentados na técnica de densitometria gama, já que neste tipo de equipamento tanto a fonte de radiação gama como o detector que registra o sinal do feixe transmitido são posicionados externamente ao duto e não sofrem a ação abrasiva do meio. O grupo de Aplicações de Técnicas Nucleares do Instituto de Engenharia Nuclear (IEN/CNEN-RJ) no Rio de Janeiro possui uma linha de pesquisa voltada para o desenvolvimento de dispositivos que empregam fontes de Cs^{137} na avaliação do perfil de fluxos multifásicos (água/óleo/gás) e na medição de vazão de petróleo e derivados. Este dispositivo é composto por um conjunto contendo uma fonte de radiação e detectores cintiladores NaI(Tl) coplanares e posicionados externamente a unidade de medida (Salgado, 2010). Nos estudos realizados no grupo de técnicas nucleares do IEN ficou demonstrado que a respostas desses dispositivos tem uma dependência relacionada com o índice de salinidade da água e a proposta desse trabalho de pesquisa é estudar correção necessária para minimizar a interferência da salinidade da água no sinal registrado pelo detector cintilador.

1.2 Objetivo

O objetivo desse trabalho é desenvolver uma metodologia para medição do índice de salinidade de soluções aquosas, empregando-se a técnica de densitometria gama.

Como objetivos secundários pode-se destacar:

- Calcular o coeficiente de atenuação mássico de soluções salinas empregando-se uma técnica nuclear;
- Utilizar o código MCNP-X para simular os procedimentos experimentais de densitometria gama para soluções salinas.

1.3 Revisão Bibliográfica

Em 1969, Hubbell calculou o coeficiente de atenuação para 23 elementos entre 10 keV e 100 GeV, e calculou também o coeficiente de absorção de energia para o ar, água e 18 elementos entre 10 keV e 10 MeV, e para o ar, água e 7 elementos com energia acima de 100 MeV. Calculou a seção de choque para processos predominantes entre 10 keV e 100 GeV para 23 elementos, 13 compostos e misturas.

Abouelwafa e Kendall (1980) descreveram uma metodologia para determinação *in situ* de fração de volume do fluxo de materiais em oleodutos. O método desenvolvido é uma forma simples e precisa de determinar *in situ* as frações de volume em qualquer circunstância em oleodutos multifásicos.

Rebgetz (1991) utilizou a técnica de transmissão de raios gama para duas energias, o *Dual energy γ -ray transmission* (DUET), para determinar a fração de volume de cada componente de misturas contendo óleo/água/gás em oleodutos. A técnica possui um erro relativo de 5%, incluindo o efeito causado pela concentração de NaCl na água entre 5,0 e 5,2% de salinidade.

Roach (1994) utilizou um medidor de vazão multifásico (MFM), que foi desenvolvido para determinar a fração mássica do fluxo de óleo, água e gás nos oleodutos. O MFM foi testado em ensaios em uma plataforma de petróleo *offshore*. Os calibres de transmissão de raios gama foram montados sobre um oleoduto que liga o coletor de teste ao separador de teste.

Johansen e Abro (1999) apresentam um método para medição do fluxo de fluidos abaixo da superfície do mar em oleodutos, utilizando uma fonte de baixa energia (^{241}Am), pois oferece as

vantagens de tamanho reduzido devido às exigências de redução de blindagem, detectores compactos, e menor dependência do regime de escoamento.

Johansen (2000) utilizou a densitometria de dois modos como um novo método para medir a fração de volume de gás em tubulações contendo gás/óleo/ água independente da salinidade da componente água. A resposta diferente na atenuação fotoelétrica e espalhamento Compton para mudanças na salinidade foi utilizada. O coeficiente de atenuação total é encontrado através de medições de transmissão tradicionais com um detector posicionado fora da parede da tubulação diametralmente oposta à fonte. A resposta do espalhamento é medida com um segundo detector posicionado entre a fonte e o detector de transmissão. A viabilidade do método é demonstrada para fluxos misturados homogeneamente. É possível medir a fração de volume do gás independente da salinidade da água.

Mi (2001) identificou o regime de fluxo vertical com base na simulação teórica de fluxo bifásico com sistemas de redes neurais supervisionadas e de auto-organização, evitando assim, quaisquer erros de instrumentação e julgamentos subjetivos.

Em 2002, Lund Bo & Nyfors desenvolveu um sensor de salinidade da água, cujo objetivo é detectar a condutividade e salinidade da água em fluxos multifásicos. O sensor é baseado na espectroscopia de micro-ondas e mede a atenuação diferencial e desvio de fase de radiação eletromagnética propagado na mistura. Este trabalho apresenta princípios básicos, modelos físicos e *design* do sensor de salinidade, bem como resultados experimentais obtidos a partir de teste de circuito fechado de fluxo.

Singh (2002) estudou o uso de feixe colimadíssimo (*narrow beam*) para medir o coeficiente de atenuação mássico para o vidro contendo boro e bismuto, e assim determinar o número atômico efetivo das amostras de vidro, e com isso, verificou-se que a concentração de bismuto é constante. Os números atômicos efetivos quase tendem a ser constantes como uma função de energia. Isto pode ser devido ao predomínio do espalhamento incoerente e produção de pares em suas respectivas regiões de energia.

Salinas (2006) mediu a densidade e coeficiente de atenuação mássico para materiais de construção comumente utilizado no Brasil, utilizando o código MCNP-4B, entre 50 e 3000 keV, para raios gama e experimentalmente. Os resultados estavam de acordo quando comparados com materiais similares encontrados na literatura.

Rettschlag (2007) utilizou o método de transmissão de feixe colimado para determinar o coeficiente de atenuação mássico para o plutônio, na energia de 60 a 2615 keV, utilizando um detector de germânio. Os resultados foram comparados com resultados anteriores experimentais e com valores teóricos e obtiveram ótimos resultados entre 240 e 800 keV.

Em 2008, Mincong *et al.* discutiu um método que utiliza raios X para medir a espessura do absorvedor. Utilizou um filtro para absorver baixas energias e fótons característicos de modo que o espectro de raios X tenha um pico de distribuição de energia. Foram utilizados uma energia de raio X equivalente que define a atenuação num material de interesse e o código EGSncr (*Eletron Gama Shower*) para examinar o efeito sobre o espectro de raios X com diferentes filtros. Os resultados experimentais estão de acordo com os valores teóricos.

Também em 2008, Singh *et al.* mediu experimentalmente o coeficiente de atenuação linear para formas regulares e irregulares, de *flyash* (cinzas voláteis) mesmo quando a espessura é irregular, utilizando uma nova técnica, *two media method*, ou método de dois meios. Os valores foram comparados com os valores teóricos obtidos através do código winXCOM. Na parte experimental, o autor utilizou uma fonte puntiforme de ^{137}Cs com atividade de 5 mCi.

Salgado (2009) apresenta uma metodologia baseada em técnica nuclear e rede neural artificial para a predição de fração de volume em regimes anular, estratificado e homogêneo em mistura de óleo, gás e água. Para obtenção de dados, utilizou uma geometria composta por três detectores e uma fonte de raios gama de dupla energia. Utilizou também o código MCNP-X para fornecer dados para treinar a rede neural. Nos três regimes investigados, a simulação no MCNP-X mostrou se satisfatória em cada material (água/óleo/gás), indicando que a metodologia pode ser aplicada.

Akkurt (2010) mensurou o coeficiente de atenuação linear de fótons em concretos contendo barito em diferentes proporções, entre 1 keV e 1 GeV, e comparou com medidas feitas utilizando espectrômetro de raios gama, detector de NaI(Tl) para as energias 662 keV, 1173 keV e 1332 keV. Os valores foram comparados com o Pb. Os autores concluíram que o chumbo é o material ideal para blindagem e que suas propriedades podem ser melhoradas com a inserção de bário no concreto.

Sidhu (2012) fez um estudo sobre o coeficiente de atenuação mássico, número atômico efetivo e densidade do elétron para alguns compostos de número atômico baixo de interesse

dosimétrico para energia de fóton incidente de 59,54 keV. Os resultados obtidos experimentalmente foram calculados teoricamente com o XCOM e FFAST. O resultado revelou que os valores obtidos de materiais compostos com baixo número atômico têm comportamento de espalhamento incoerente e, com isso, podem ser representados independente da energia e a composição única dependente significam o número atômico nesta energia do fóton incidente.

Em 2013, Akar Tarim *et al.* desenvolveu um código de Monte Carlo para determinar o coeficiente de atenuação mássico de amostras de tipos de solo, para nove diferentes energias utilizando radiação gama. Os resultados foram comparados com os valores obtidos teoricamente através do XCOM e com resultados obtidos experimentalmente de outras pesquisas para os mesmos tipos de amostra. Esse método encontrou valores muito próximos dos valores teóricos e dos resultados experimentais. O modelo desenvolvido tornou-se viável por ser versátil para qualquer atenuador e energia.

Em 2014, Abd propôs um método para determinação do coeficiente de absorção mássico para raios gama para compostos, ligas e misturas, se baseando na simulação do processo de interação de raios gama cujo alvo são elementos contendo número atômico entre 1 e 92 usando o software MCSHAPE. A partir das relações matemáticas resultantes entre as intensidades de raios gama do espalhamento Compton e coeficiente de atenuação mássico, pode-se determinar o coeficiente de absorção mássico para qualquer material. Os valores encontrados por meio desse método foram satisfatórios quando comparados com valores obtidos teoricamente através do winXCOM.

SitaMahalakshmi (2015) mensurou o coeficiente de atenuação mássico total para os elementos La, Nd, Sm, Gd e Dy, que são encontrados na região de terras raras, para energias de fóton na faixa de 30 a 55 keV, empregando o método de excitação seletiva. Esse método facilita a seleção de energias de excitação perto da camada eletrônica K. Os resultados encontrados foram comparados com os valores teóricos do XCOM e foram satisfatórios.

2 Fundamentos Teóricos

2.1 Interação da radiação eletromagnética com a matéria

Define-se como uma radiação ionizante a radiação com energia suficiente para que, durante a interação com um átomo do meio, possa remover elétrons ligados a órbita do átomo, fazendo com que o mesmo se torne carregado ou ionizado. Raios gama são ondas eletromagnéticas ionizantes cuja localização no espectro das radiações se estende desde 5×10^{19} Hz até aproximadamente 1022 Hz (ou comprimentos de onda entre 6×10^{-12} m e aproximadamente 3×10^{-14} m); têm energia discreta E , que determina a forma com que o raio gama interage com a matéria. Estas partículas não possuem carga elétrica, têm massa de repouso igual a zero e são conhecidas pelo nome de fótons. A forma de relacionar a frequência ν , ou comprimento de onda λ , com a energia E do fóton é dada pela relação da Equação 1.

$$E = h\nu = \frac{hc}{\lambda}$$

Equação 1

Onde:

h é a constante de Planck ($6,626070040 \times 10^{-34} \text{ J} \cdot \text{s}$)

c é velocidade da luz ($299.792.458 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$)

ν é frequência da radiação

λ é comprimento de onda

A radiação eletromagnética de energia $E < 40 \text{ keV}$ é denotado como raio X. Os raios gama compreendem parte do espectro eletromagnético onde $E > 40 \text{ keV}$. O conhecimento dos processos básicos pelos quais um fóton interage com a matéria é essencial para a compreensão da resposta de um detector de radiação. Embora muitos processos estejam envolvidos na cadeia de eventos que produz um impulso elétrico na saída do detector, as principais características do espectro diferencial de altura de pulsos resultante da detecção dos raios gama podem ser interpretadas em termos de interações básicas que ocorrem dentro do detector. A maneira com que cada material interage com a radiação gama é relacionado com as propriedades de matéria que compõe o meio com o qual vai interagir e também da energia da onda eletromagnética incidente, ou seja, existe determinada probabilidade que está relacionada com a energia do fóton incidente, o número atômico e a densidade do meio para o fóton realizar um dos processos possíveis de interação. Quando um fóton penetra a matéria podem ocorrer três processos básicos, como mostrado na Figura 6:

- **Transmissão do fóton:** não ocorre interação e a energia do fóton emergente é a mesma do fóton incidente;
- **Absorção total do fóton:** há transferência total de sua energia para o meio;

- **Espalhamento do fóton:** o fóton resultante pode ter ou não a mesma energia do fóton incidente, porém percorre uma direção diferente da direção de incidência.

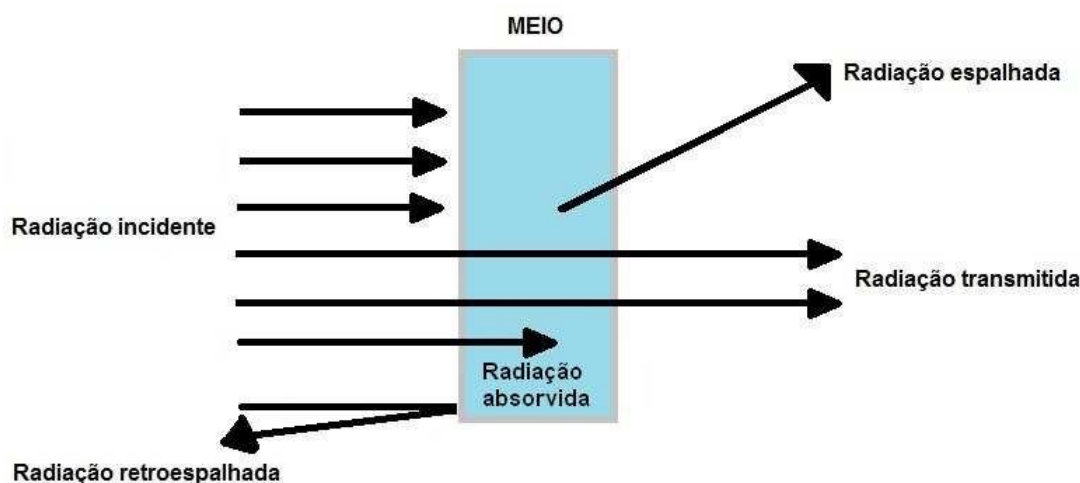


Figura 6: Diferentes possibilidades de interação de fótons gama com a matéria.

A maneira com que um fóton “traça” o seu “caminho” através de um material é um processo probabilístico, sendo assim, não há como prever com precisão o quão longe ele vai chegar antes de se “envolver” em uma interação, como também, não é possível prever com exatidão o tipo de interação que irá ocorrer dentro do material do detector. Três são os processos de interação do fóton com a matéria e são eles: o efeito fotoelétrico, o espalhamento Compton por elétrons do material fotoelétrico, e a produção de um par pósitron-elétron. Um tratamento detalhado destes processos está além do escopo deste trabalho e será apresentada uma breve discussão sobre as características essenciais de cada um dos processos para a compreensão da resposta de um detector de cintilação NaI(Tl).

2.1.1 Espalhamento Coerente ou Efeito Rayleigh

Corresponde à absorção e reemissão da radiação pelo átomo em uma direção que pode não coincidir com a de incidência conforme ilustrado na Figura 7. Neste caso não ocorre deposição alguma de energia dentro da região sensível do detector. Neste processo a radiação é considerada onda; em todos demais a radiação é considerada constituída de fótons.

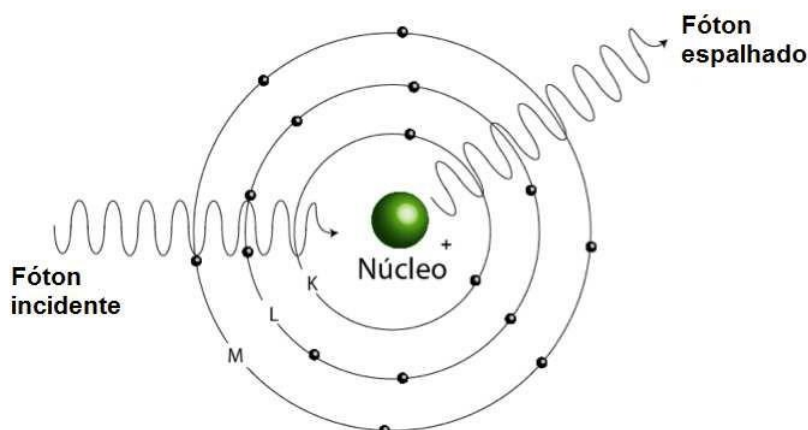


Figura 7: Espalhamento Coerente: absorção de fótons gama pelo átomo e remissão com a energia igual a energia incidente.

2.1.2 Efeito Fotoelétrico

O fóton é absorvido pelo átomo e um elétron é liberado para se mover no material. Neste processo toda a energia do fóton incidente é absorvida por um elétron do cristal do detector, o qual é "arrancado" da camada eletrônica do átomo. A energia do fóton é transformada em energia cinética do elétron, sendo a energia do elétron igual à diferença entre a energia do fóton incidente e a energia de ligação do elétron na camada eletrônica. O núcleo do átomo também absorve uma pequena quantidade de energia (energia de recuo), mas é desprezível comparada com a energia do elétron. Como resultado o átomo fica com uma vacância na camada eletrônica na qual o elétron foi ejetado. Essa vacância é preenchida pelo elétron próximo de uma camada acima e resultando na emissão de um fóton característico, com energia igual a diferença de energia entre o nível do elétron inicial e o que cedeu o segundo elétron. O resultado é que estes fótons gerados podem ser absorvidos por um segundo efeito fotoelétrico, sendo que nestes casos, a energia do fóton incidente totalmente absorvida pelo cristal do detector. Uma característica importante do efeito fotoelétrico num detector de cintilação é que fótons monoenergéticos produzirão uma distribuição monoenergética dentro do volume do detector, denominada fotopico no espectro de energia da fonte. O efeito fotoelétrico é mostrado na Figura 8.

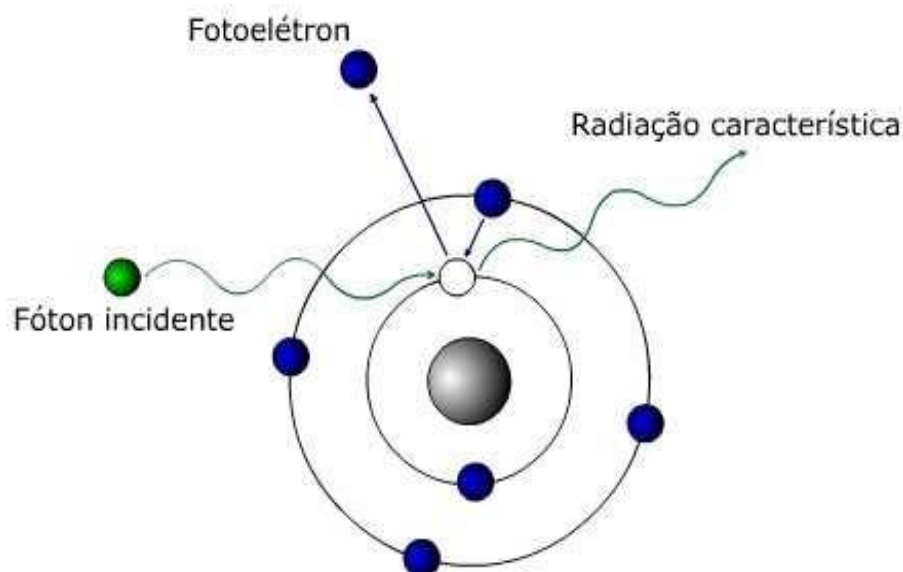


Figura 8: Efeito fotoelétrico: emissão de elétron e radiação característica.

2.1.3 Efeito Compton ou espalhamento inelástico

Espalhamento de um fóton por um elétron livre do material. Nesta interação existe a transferência de parte da energia e do momentum do fóton incidente para o elétron livre, e a energia restante é emitida em forma de outro fóton com direção diferente do fóton inicial, como mostrado na Figura 9.

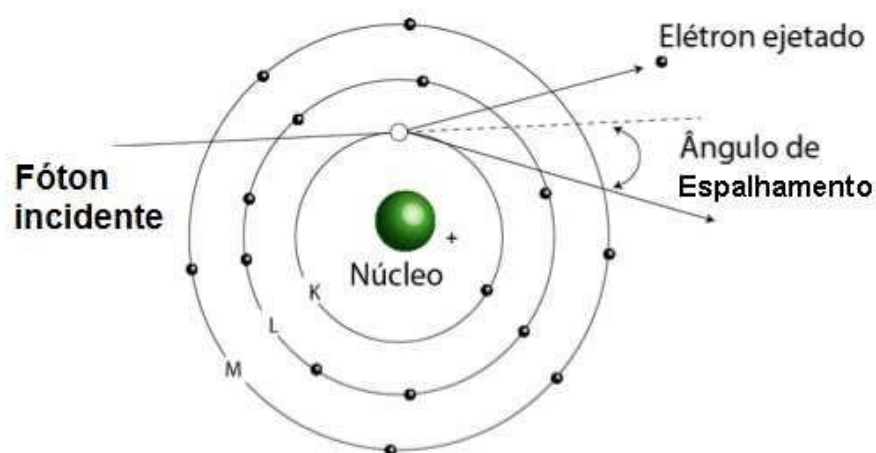


Figura 9: Efeito Compton: espalhamento de um fóton por um elétron livre.

Para espalhamentos com fótons de baixa energia, o átomo permanece praticamente no seu estado inicial, sendo considerada nula a perda de energia do fóton incidente, ocorrendo somente uma mudança na direção de propagação. À medida que a energia aumenta, o efeito

do espalhamento Compton é mais evidente. Os valores das energias do fóton espalhado e do elétron são dados, respectivamente, pelas Equações 2 e 3:

$$E_{\gamma}^1 = \frac{E_{\gamma}^0}{1 + \frac{E_{\gamma}^0}{m_0 c^2} (1 - \cos\theta)}$$

Equação 2

$$E_e = E_{\gamma}^0 - E_{\gamma}^1$$

Equação 3

Onde:

E_{γ}^0 é a energia do fóton incidente;

E_{γ}^1 é a energia do fóton espalhado;

E_e é a energia do elétron livre espalhado;

$m_0 c^2$ é a energia de repouso do elétron;

θ é o ângulo de espalhamento.

As relações mostram que a energia do fóton espalhado pode variar de um valor nulo ($\theta = 0^\circ$) até um valor máximo ($\theta = 180^\circ$), ou seja, uma fonte monoenergética de radiação gama produz uma distribuição de energia contínua, como resultado das várias possibilidades de interação pelo espalhamento Compton. Esta situação gera no espectro da fonte uma estrutura denominada “Joelho Compton”.

2.1.4 Produção de pares

O fóton é absorvido pelo campo coulombiano de núcleos pesados e toda sua energia é convertida em massa de repouso e energia cinética de um par partícula-antipartícula (elétron + pósitron). Se a energia do fóton incidente exceder a massa de repouso do par pósitron-elétron (1,02 MeV), a produção de pares torna-se possível. Neste processo, o fóton incidente desaparece e um par pósitron-elétron é gerado. A energia total do par de partículas é igual à energia total do fóton incidente (energia cinética + energia gama) menos a massa de repouso do par. Uma vez que o pósitron possui um tempo de vida muito curto, o processo de aniquilação ocorre no interior do detector gerando dois fótons gama de 511 keV colineares em direções opostas, conforme ilustrado na Figura 10.

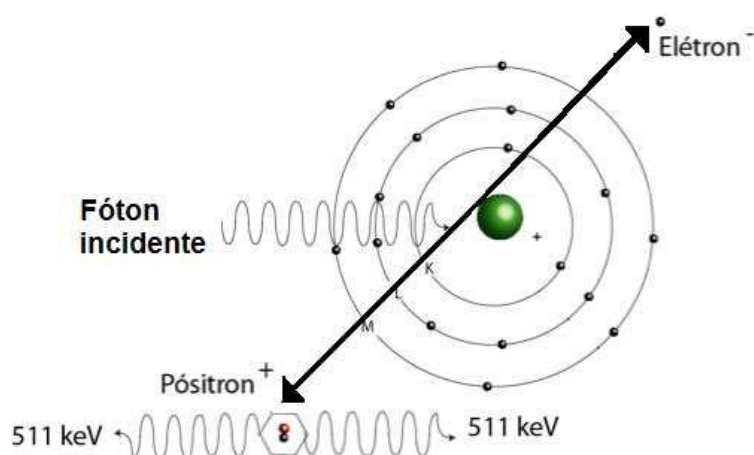


Figura 10: Produção de pares, evidenciando também a aniquilação do par pósitron-elétron.

Sob o ponto de vista de probabilidades de ocorrência, a ordem de prevalência de cada efeito é função dependente da energia de fóton incidente. É possível dizer que os efeitos de espalhamento coerente e efeito fotoelétrico ocorrem com maior probabilidade para baixas energias, enquanto o efeito Compton tem maior probabilidade de ocorrer para energias intermediárias. Enquanto que a produção/aniquilação de pares só acontece acima de um limiar de energia, sendo necessário que o fóton tenha no mínimo 1,022 MeV de energia (equivalente a duas massas de repouso de elétron) para que toda sua energia se converta em massa de repouso e energia cinética do par (e^+/e^-). A probabilidade total de detecção de um fóton é expressa pelo coeficiente de absorção total, dado pela Equação 4.

$$\mu_T = \mu_F + \mu_C + \mu_P$$

Equação 4

Onde:

μ_T é o coeficiente de absorção total;

μ_F é o coeficiente de absorção para o efeito fotoelétrico;

μ_C é o coeficiente de absorção por espalhamento Compton;

μ_P é o coeficiente de absorção para a produção de pares.

A Figura 11 mostra a distribuição de probabilidades destes efeitos para diferentes materiais em função da energia de radiação incidente. Os fótons ao passarem através da matéria podem envolver-se em interações fotoelétricas ou de espalhamento Compton com os elétrons do

material. A combinação desses três tipos de interações produz a atenuação total do feixe incidente.

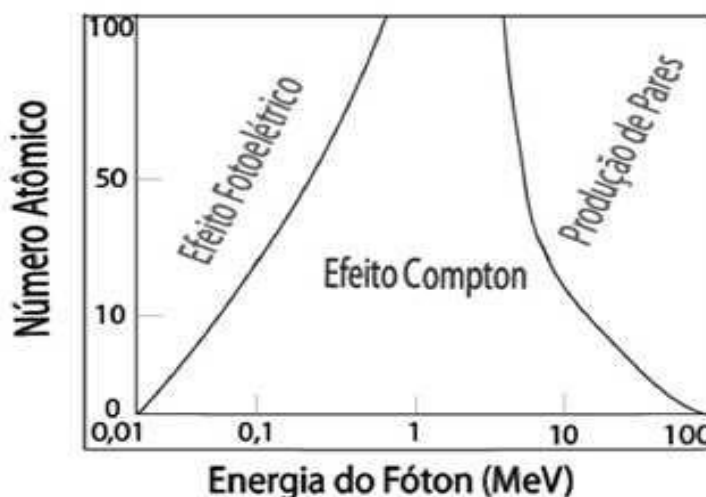


Figura 11: Curva que apresenta a região de predominância do tipo de interação da radiação incidente em relação aos valores de número atômico e de energia do gama incidente.

2.2 Atenuação de radiação gama e coeficiente de atenuação

A radiação gama pode não ser completamente absorvida, mas reduzida em intensidade ao passar através da matéria (fenômeno chamado blindagem). Considerando um feixe de radiação gama monoenergético estreito (*pencil beam*) e garantindo as condições de blindagem e colimação adequadas, como ilustrado na Figura 12.

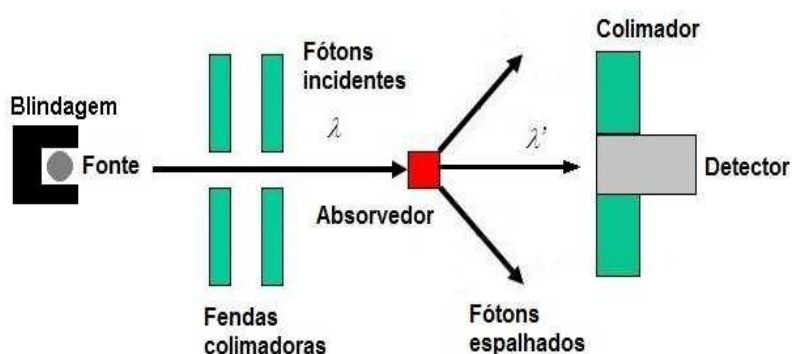


Figura 12: Interação do feixe de radiação gama por um material absorvedor.

Quando um feixe de raios gama incide sobre um material com espessura x , uma parte desse feixe consegue atravessar o material, feixe transmitido. Se n for a densidade de partículas espalhadas (fótons espalhados/cm²), considerando-se um material espalhador com

espessura x , então a densidade de fótons incidentes que serão espalhados em um elemento de volume de espessura dx será $n \cdot dx$. Se σ for a secção de choque de espalhamento do material do absorvedor, I_0 for a intensidade do feixe incidente e I a intensidade do feixe espalhado, podemos definir a probabilidade P de ocorrer um espalhamento na espessura dx como mostrado na Equação 5:

$$dP = \frac{I}{I_0} = \frac{\sigma I_0/S}{I} (S n dx)$$

Equação 5

Onde:

S é a área do material absorvedor “vista” pelo fóton;

I_0/S é a densidade de fótons (fótons/unidade de área);

$n = \rho N_0/A$;

ρ é a densidade do material;

N_0 é o número de Avogadro;

A é o número de massa do material absorvedor.

Considerando $I(x)$ o fluxo de fótons, para cada distância x dentro do material absorvedor, o decréscimo na intensidade dos fótons é diretamente proporcional à probabilidade de que ocorra um espalhamento em um comprimento x dentro do material e é dada pela Equação 6:

$$-dI(x) = dP \cdot (I(x) = n \cdot \sigma \cdot I(x) dx)$$

Equação 6

Considerando I_0 a intensidade do feixe incidente, tem-se:

$$I(x) = I_0 e^{-n\sigma x}$$

Equação 7

A Equação 7 é a chamada lei de Beer-Lambert. Define-se o coeficiente de atenuação μ como sendo o produto $n \cdot \sigma$, logo a equação de Beer-Lambert é dada por:

$$I(x) = I_0 e^{-\mu x}$$

Equação 8

Uma vez que o produto $\mu \cdot x$ da Equação 8 é adimensional, e considerando que a espessura do absorvedor é medida em centímetros, então o coeficiente de atenuação tem dimensão $[\text{cm}^{-1}]$ e é chamado coeficiente de atenuação linear μ_l . A espessura x pode ser expressa em unidades de $[\text{g} \cdot \text{cm}]$, neste caso o coeficiente de atenuação é chamado coeficiente de atenuação mássico μ_m , e tem unidades de $[\text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}]$. A relação entre os coeficientes é dada pela Equação 9:

$$\mu_l = \mu_m \rho$$

Equação 9

2.3 Detecção de radiação ionizante e detectores cintiladores

Detectores de radiação ionizante são dispositivos que, quando são inseridos em um meio onde exista campo de radiação, são capazes de indicar e registrar sua presença. São basicamente constituídos por um elemento ou material sensível à radiação e um sistema que transforma os efeitos gerados em seu interior quando da interação da radiação em uma grandeza que permite o registro e a medição da intensidade da radiação incidente. O mecanismo fundamental subjacente ao funcionamento de todos os detectores de radiação nuclear é a dissipação de energia pela partícula incidente no detector. A radiação pode interagir de diversas formas com o meio material dependendo de suas características, e os processos mais utilizados na detecção são os que envolvem a geração de cargas elétricas, a geração de luz, a sensibilização de películas fotográficas, a criação de traços no material, a geração de calor e alterações da dinâmica de certos processos químicos (Tauhata *et al.*, 2003).

Cristais de iodeto de sódio são utilizados como detectores devido à sua alta densidade ($3,67 \text{ g/cm}^3$) e ao número atômico do Iodo que torna alta a secção de choque para a interação do cristal com fótons de raios gama. Além disso, o iodeto de sódio possui uma alta eficiência luminosa. A fração de energia depositada no cristal que é convertida em luz e a presença de átomos de Tálcio eleva de maneira significativa a emissão de luz pelo cristal (Tsoulfanidis, 1995). Como resultado, um cristal dopado converte um percentual maior da energia do gama incidente em energia cinética dos elétrons do meio. Quando a radiação ionizante passa através de determinados cristais, pode excitar os átomos da rede cristalina.

Os materiais em que o tempo de vida do estado excitado é inferior a 10^{-9} s e o processo de relaxamento para o estado fundamental ocorre via emissão de um fóton de luz visível (com energia mais baixa que a energia de absorção pelo meio) são denominados cintiladores (ou

fosforescentes). Um contador de cintilação em sua operação envolve uma série de processos físicos fundamentais, como indicado na Figura 13. A quantidade de luz produzida em um cintilador é muito pequena, necessitando ser amplificada de modo a permitir que a intensidade da radiação incidente no material possa ser registrada como um pulso elétrico. Esta amplificação de sinal ou multiplicação da intensidade da luz é obtida por um dispositivo chamado fotomultiplicador, sendo projetado e construído de forma a aceitar a pequena quantidade de luz gerada no material cintilador, amplificar várias vezes a intensidade deste pulso de energia e gerar um pulso de sinal intenso na sua saída.

Estas amplificações são da ordem de 100 vezes em dispositivos convencionais.

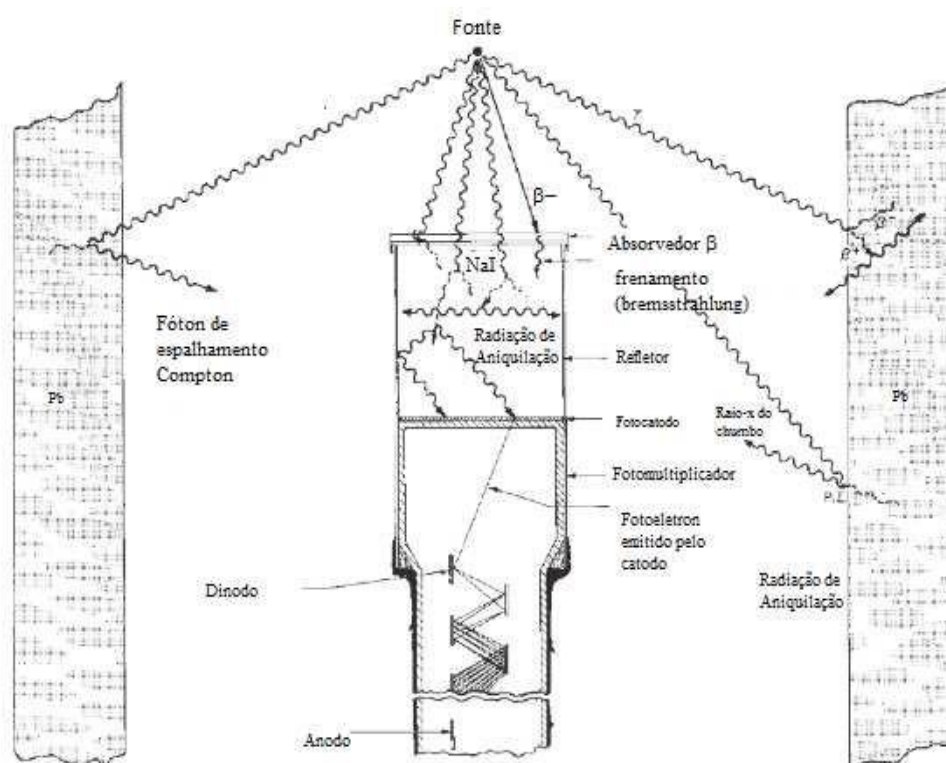


Figura 13: Geração de um pulso elétrico a partir da incidência de um fóton em um detector cintilador NaI(Tl).

A geração de um sinal com um detector cintilador é dividida em duas etapas:

- **1ª etapa:** absorção da energia da radiação incidente e produção de fótons de luz visível;
- **2ª etapa:** amplificação do sinal luminoso no tubo fotomultiplicador e geração de um pulso elétrico na sua saída.

Os parâmetros mais importantes de um detector cintilador são: densidade do material cintilador; número atômico médio; tamanho do cristal; pureza; índice de refração; máximo da emissão de fluorescência; qualidade da transmissão óptica; rendimento na produção de luz; linearidade entre a energia da partícula incidente e intensidade de cintilação e a sua resolução. Em um sistema de medição real, o cintilador está acoplado diretamente ou por meio de um dispositivo especial (guia de acoplamento óptico) no tubo fotomultiplicador. O índice máximo de emissão e de refração do material cintilador são parâmetros importantes na decisão da forma de acoplamento óptico e do tipo do tubo fotomultiplicador: o máximo de emissão do cintilador deve estar perto do máximo de absorção do fotocátodo do tubo fotomultiplicador. As principais características de um meio cintilador, para que possa ser empregado como detector de radiação nuclear, são:

- Alta probabilidade de transformação de uma radiação incidente em um ou mais elétrons rápidos;
- A energia cinética das partículas carregadas no material luminescente deve ser convertida de forma tão eficiente quanto possível em energia de excitação e ionização dos átomos do cintilador;
- A desexcitação dos átomos deve resultar em emissão de radiação fluorescente (luz de cintilação) e esta radiação deve ser transmitida tão livremente quanto possível através do material luminescente;
- A radiação deve ser de tal comprimento de onda que corresponda com a característica da curva espectral do fotomultiplicador;
- A fotossensibilidade do catodo do tubo deve ser elevada, de modo que a emissão máxima de fotoelétrons seja garantida;
- A quantidade de radiação luminosa emitida (e a fração que atingir o catodo) deve ser proporcional à energia da radiação incidente;
- Número de fotoelétrons liberados deve ser diretamente proporcional à energia da radiação incidente.

Os cristais cintiladores exigem um processo complexo de produção para garantir a linearidade do processo de conversão da energia da radiação incidente em luz visível. Devem ser transparentes, sem apresentar danos ou rachaduras, com a finalidade de evitar que a radiação luminosa gerada seja refletida fora da área do fotomultiplicador (Knoll, 2010).

2.3.1 Sistema de Detecção

Quando um feixe de radiação interage com um detector de radiação (HPGe ou NaI(Tl)) e, dependendo do processo de interação ocorrido (efeitos fotoelétrico, Rayleigh, Compton ou formação de pares), toda ou parte de sua energia é absorvida dentro do volume sensível do detector, a energia transferida pela radiação é utilizada para a geração de luz, portadores de cargas, etc. Para cada fóton detectado é gerado um pulso de carga, cuja altura fornece a energia transferida pelo fóton e a contagem destes pulsos corresponde ao número de interações. A medida do campo de radiação em função da energia baseia-se na coleta da carga produzida pela interação da radiação com o detector. Como a carga é função da energia depositada, a informação primária obtida é a distribuição da energia depositada e, com isso, após um tratamento, é possível obter informações do espectro de energia incidente. Para efetuar a espectrometria, o sinal proveniente do detector necessita ser processado. O sistema de medição pode ser observado na Figura 14 e consiste basicamente de:

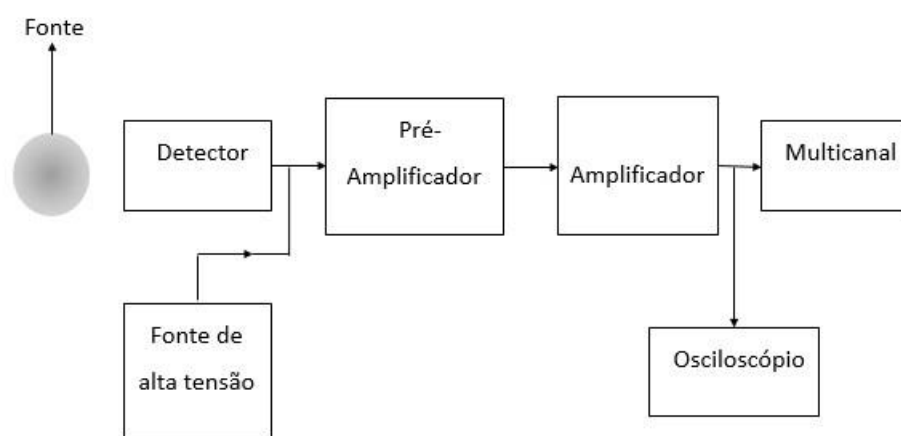


Figura 14: Esquema do sistema de detecção.

- i) **Um pré-amplificador** sensível à carga cuja função é integrar a carga elétrica, gerando um sinal de tensão cuja amplitude é proporcional à carga integrada, realizando, ainda, o “casamento de impedâncias” entre o detector e o amplificador;
- ii) **Um amplificador** cuja finalidade básica é aumentar a amplitude do sinal proveniente do pré-amplificador (normalmente menor que 1,0 V) para faixas de tensão mais convenientes (de 0 a 10 V) para análise posterior e, por meio de conformação dos pulsos, maximizar a relação sinal-ruído;

- iii) **Um analisador multicanal (AMC)** que classifica e conta os pulsos conforme suas amplitudes e armazena a contagem dos pulsos em canais.

2.4 Espectros registrados por um detector cintilador NaI(Tl)

Suponha que uma fonte monoenergética de radiação gama com energia E_0 (abaixo do limiar de formação de pares) incida sobre a combinação de um cristal NaI(Tl) com uma fotomultiplicadora, conforme mostrado na

Figura 13. Os raios gama vão interagir com o detector por meio de espalhamento Compton e do efeito fotoelétrico e, se forem detectados um número suficiente de raios gama para obter uma amostra estatística razoável, será produzido, no interior do volume do detector NaI(Tl), uma distribuição de energia para os elétrons semelhante à mostrada pela curva de linha cheia (espectro teórico) na Figura 15. Nota-se uma linha monoenergética de fotoelétrons e uma distribuição contínua de elétrons Compton de energia zero, até um corte com uma energia um pouco abaixo da linha monoenergética. Na mesma Figura 15, também é mostrada uma distribuição de altura de pulsos para um detector NaI(Tl) real. Embora o espectro tenha um comportamento semelhante, observa-se uma distribuição de energia, tipo uma função de Gauss, em torno do valor E_0 .

Este fenômeno deve-se à natureza estatística dos processos que ocorrem na fotomultiplicadora.

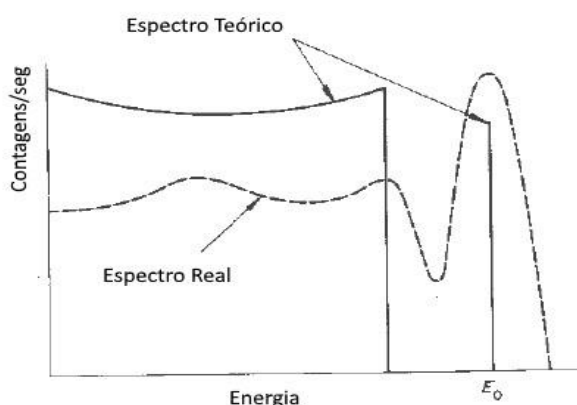


Figura 15: Espectro teórico (linha cheia) da distribuição de energia e espectro de altura de pulsos (linha tracejada) para um detector cintilador NaI(Tl).

O pico resultante da perda de energia total (fotopico) é característico para cada fonte de radiação gama. A amplitude e a largura a meia altura (FWHM, *full width at half maximum*) do pico, são utilizadas para determinar a eficiência e a resolução em energia para o cristal. Esse alargamento do espectro, em torno de E_0 , demonstra que uma fração muito maior que o

número total de eventos para E_0 do que seria previsível a partir da relação das seções de choque para os efeitos fotoelétrico e Compton. Em um detector real, a probabilidade de que um raio gama que sofreu um espalhamento Compton escape do volume do detector é reduzida a medida que o tamanho do cristal aumenta e muitos eventos múltiplos, como por exemplo espalhamento Compton seguido por um evento de fotoelétrico, podem ocorrer resultando na absorção da energia total. Uma vez que esta cadeia de eventos ocorre bem dentro do tempo de resposta do cristal e considerando-se a perda de energia de todos os eventos, a soma das energias absorvidas irá produzir um impulso com energia igual, ou mesmo levemente superior, ao pico de energia E_0 (efeito de pico soma). Com o aumento da energia do raio gama, a distribuição altura de pulso torna-se mais complicada. À medida que a energia dos raios gama de aumenta, a fração de impulsos no fotopico é reduzida pois secção de choque do efeito Compton se torna mais dominante. Ocorre a presença de vários picos satélites sobrepostos a distribuição de Compton. Se a energia do raio gama incidente excede o valor de 1,02 MeV, limiar para a produção de pares, aparece no espectro de altura de pulsos a contribuição da energia cinética do par de pósitron-elétron resultando em um pico que aparece na amplitude igual à energia do raio gama incidente menos 1,02 MeV. Aniquilação subsequente do pósitron vai criar dois fótons de 0,511 MeV dentro do volume do detector. Se ambos os fótons de aniquilação escapam da região sensível do cristal apenas a energia cinética do par de pósitron-elétron será cedida para o detector e igual a $E_0 = 1,022$ MeV e aparecerá no espectro um pico com esta energia e é chamado de pico de escape duplo. Se um dos fótons de aniquilação é detectado no cristal por efeito fotoelétrico ou por qualquer combinação de vários processos, um pico aparece na energia correspondente a $E_0 = 0,511$ MeV e é chamado pico de escape simples. Se ambos os fótons de aniquilação forem detectados, primeiro com a absorção total da energia, um pico correspondente à energia E_0 do gama incidente será registrado; caso contrário, pico correspondente será igual a diferença entre a energia de aniquilação do par e um possível espalhamento pode ser registrado. A forma e intensidade de um espectro de altura de pulsos observado seria dependente apenas da energia do raio gama, as propriedades físicas da fonte e do detector e da relação geométrica entre os dois, se o conjunto fonte-detector pudesse ser totalmente isolado do ambiente.

Na prática, fatores relacionados ao ambiente do sistema fonte-detector interferem na distribuição de altura de pulsos e essa contribuição relativa destes diferentes tipos de interações identificados num espectro experimental. É possível que a radiação gama emitida pela fonte fora da região sensível do sistema fonte-detector sofra um espalhamento em algum

material da blindagem do detector e seja direcionado para a região sensível do cristal ou então que a formação do par pósitron-elétron ocorra na região externa do cristal. Nestes dois casos, o espectro pode registrar a presença de um pico com uma amplitude que corresponde deposição da energia desses gamas. Estes picos não resultam da detecção um fóton dentro do cone de ângulo sólido compreendido pelo detector e não devem ser considerados como parte da resposta do detector de raios gama originários da fonte, mas um efeito estranho devido a possíveis espalhamentos do ambiente externo. Outros dois são os fenômenos externos que mais interferem num espectro são:

- **Raios X de escape do Iodo:** Nos processos de interação da radiação gama de baixa energia com o cristal NaI(Tl), predomina o efeito fotoelétrico com o iodo. A energia cinética do elétron expulso do átomo de iodo é absorvida pelo cristal cintilador, mas o elétron expulso deixa uma lacuna na camada K e o preenchimento desta lacuna por um elétron externo produz um raio X característico de 28 keV. Normalmente, o raio X do iodo é absorvido pelo cristal mas se o raio gama proveniente da fonte interagir próximo da superfície do cristal, existe possibilidade desse raio X escapar resultando no espectro um pico cuja energia corresponde à energia E_0 menos 28 keV do raio X do iodo, chamado pico de escape do iodo.
- **Espalhamento no material da blindagem:** material da blindagem sempre é usado para minimizar a contribuição da radiação de fundo e esse material pode representar uma fonte considerável de radiação dispersa. Quando um raio gama interage com a blindagem construída com chumbo, pode provocar o aparecimento do raio X característico do chumbo de 72 keV. Também pode ocorrer que um gama proveniente da fonte sofra um retroespalhamento no material da blindagem e atinja o cristal de NaI(Tl) sendo registrado um pico que é denominado pico de retroespalhamento (Knoll, 2010; Tsoulfanidis, 1995).

2.5 Resolução em energia em um detector cintilador NaI(Tl)

Quando se calcula um espectro teórico de uma fonte radioativa os pulsos gerados pela deposição da energia no cristal cintilador pelos diferentes processos são exatamente proporcionais à energia dos raios gama incidentes. No caso do registro de um espectro experimental isso não ocorre pois não só a conversão da radiação em pulsos de luz no cristal está envolvida no processo de resposta do detector, ocorrem também outros fenômenos de natureza estatística como a conversão da luz em fotoelétrons e a emissão secundária na válvula

fotomultiplicadora que provocam uma flutuação no valor da intensidade registrada pelo conjunto cristal NaI(Tl) e a fotomultiplicadora, como mostrado na Figura 16.

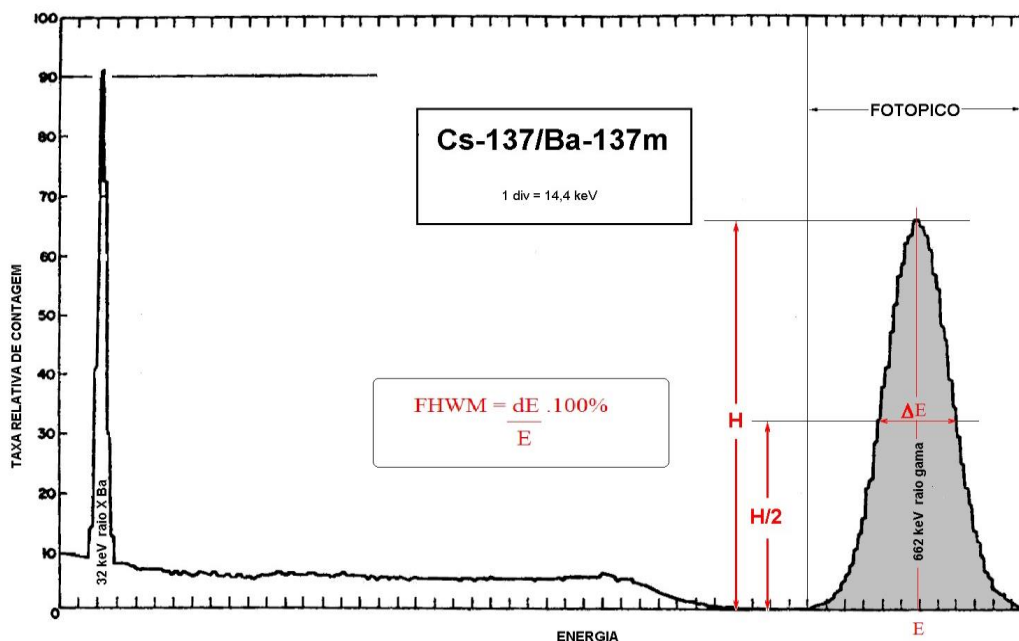


Figura 16: Espectro de uma fonte de empregando um detector cintilador NaI(Tl).

Este alargamento do fotopico é chamado de *resolução em energia*, e é usado para caracterizar o detector cintilador. Este parâmetro, que avalia a capacidade do detector cintilador para distinguir dois raios gama com energias próximas, é dado pela Equação 10:

$$R = \frac{\Delta E}{E_0}$$

Equação 10

Sendo:

$$R = \frac{FWHM}{c}$$

Equação 11

Onde:

FWHM é a largura a meia altura do fotopico (em canais);

c é o número do canal onde localiza-se o centro do fotopico.

Em uma situação real de medida nem todas as partículas emitidas pela fonte radioativa vão entrar no volume sensível do detector assim é necessário relacionar o número de impulsos registrados com o número de fótons incidentes no detector. Esse parâmetro é denominado

eficiência de um detector e é a medida da quantidade de pulsos registrados pelo cristal devido a um determinado número de raios gama incidentes. Várias definições de eficiência são de uso comum para os detectores de raios gama:

- **Eficiência absoluta:** é a razão entre o número de contagens produzidas pelo detector e o número de raios gama emitido pela fonte em todas as direções;
- **Eficiência intrínseca:** é a razão entre o número de pulsos produzidos pelo detector e o número de raios gama que incidem no detector;
- **Eficiência relativa:** depende das propriedades do detector, das propriedades da fonte radioativa e da relação geométrica do sistema fonte-detector.

Para qualquer detector, a eficiência é função das características do sistema de contagem (fonte + detector) e depende das dimensões da fonte e do detector; da composição do cristal cintilador; da distância da amostra a partir do detector e da energia dos fótons. Normalmente, a incerteza no valor da eficiência é o principal fator que influencia a incerteza dos resultados calculados para a atividade de uma amostra, dessa forma a medição e ou cálculo da eficiência de para um detector deve ser feito com o maior cuidado e precisão. Quando uma fonte pontual de radiação se situa no eixo de um detector cilíndrico, a expressão matemática para o cálculo da eficiência absoluta para a energia E_0 é dada pela Equação 13:

$$\epsilon = \frac{\text{número de pulsos registrados pelo detector cintilador}}{\text{número de pulsos emitidos pela fonte}}$$

Equação 12

$$\epsilon = \frac{N}{p} \cdot \frac{1}{A_0 \exp(-\lambda t_c)} \cdot 100$$

Equação 13

Onde:

N_p é o número de contagens registrado no fotopico de Energia E_0 ;

p é a probabilidade de decaimento para a energia E_0 (valor tabelado);

A_0 é a atividade da amostra padrão (valor tabelado);

λ é a constante de decaimento para o radionuclídeo estudado (valor tabelado);

t_c é o tempo decorrido entre a medida da atividade A_0 e a medida realizada da contagem para E_0 .

2.6 Misturas e soluções químicas

Como foi mostrado no item anterior, quando um feixe de raios gama passa através de qualquer matéria, a sua intensidade diminui progressivamente, como consequência de uma série complexa de interações entre os fótons de raios gama e os átomos do meio de atenuação segundo a Lei de Beer-Lambert, Equação 8. Os valores precisos para o coeficiente de atenuação dos materiais são parâmetro essenciais na física nuclear e na dosimetria de radiação sendo aplicado a várias áreas do conhecimento como a radiografia médica e industrial, a espectrometria ambiental, a dosimetria. A matéria, em determinadas condições de temperatura e pressão, pode existir em um dos quatro estados físicos, sólido, líquido, gasoso e plasma, sendo este último estado não é natural na superfície da terra e ocorre em altas condições de temperatura e pressão. Os estados físicos da matéria estão diretamente relacionados com as forças de interação entre suas partículas sendo possível alterar o estado de agregação da matéria, bastando para isso submetê-las a diferentes condições de temperatura e ou pressão. Podemos sintetizar as seguintes características para cada um dos estados físicos da matéria:

- **Estado Sólido:** as moléculas da matéria se encontram muito próximas, sendo assim possuem forma fixa, volume fixo e não sofrem compressão.
- **Estado Líquido:** as moléculas estão mais afastadas do que no estado sólido e os elementos que se encontram nesse estado possuem forma variada, mas volume constante. Além dessas características, possui facilidade de escoamento e adquirem a forma do recipiente que os contém.
- **Estado Gasoso:** a movimentação das moléculas nesse estado é bem maior que no estado líquido ou sólido. Se variarmos a pressão exercida sobre um gás podemos aumentar ou diminuir o volume dele, sendo assim, pode-se dizer que sofre compressão e expansão facilmente. Os elementos gasosos tomam a forma do recipiente que os contém.

Quando uma substância muda de estado físico sofre alterações nas suas características microscópicas (arranjo das partículas) e macroscópicas (volume, forma), sendo que a composição continua a mesma. Cada mudança de estado recebe um nome característico como mostrado na Figura 17.

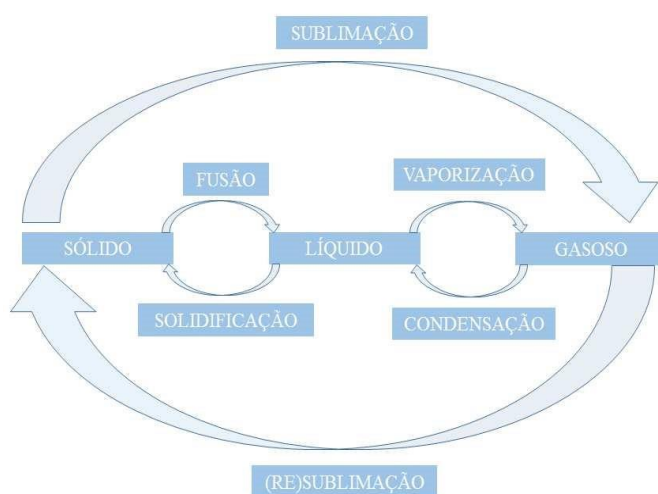


Figura 17: Matéria em diferentes estados e as possibilidades de mudança de estado.

A matéria pode se agrupar através dos átomos e formar os mais variados produtos que se classificam em substâncias e misturas e nas suas variações conforme mostrado na Figura 18.

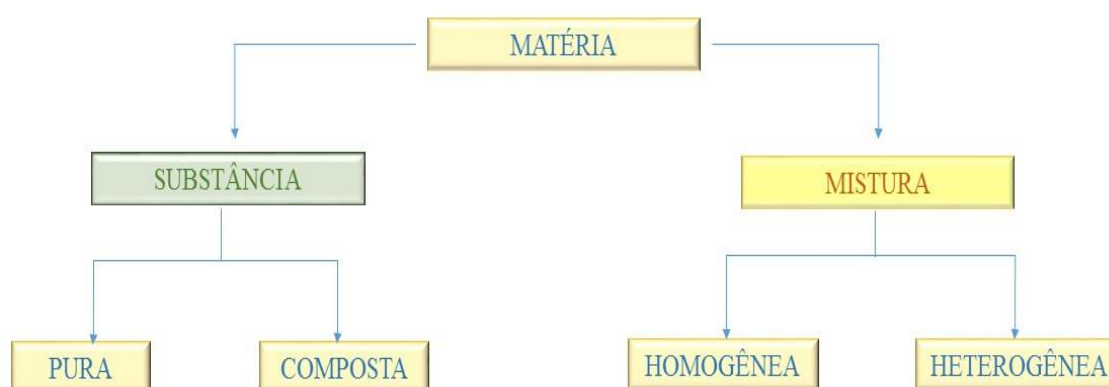


Figura 18: A matéria e suas variações.

Assim, pode-se definir como:

- **Substância pura:** é um conjunto de moléculas quimicamente iguais
- **Substância pura simples:** é um conjunto de moléculas quimicamente iguais e composta de apenas um elemento químico.
- **Substância composta:** é um conjunto de moléculas quimicamente iguais composta por mais de um elemento.

- **Mistura:** é a associação de duas ou mais substâncias cujas propriedades permanecem inalteradas, ou seja, é possível separar seus componentes por um método adequado de fracionamento de misturas.
- **Mistura homogênea:** é aquela mistura que apresenta uma única fase (único aspecto).
- **Mistura heterogênea:** é aquela mistura que apresenta mais do que uma fase.

Uma mistura homogênea nem sempre é homogênea a olho nu, existem situações em que a fase dispersa encontra-se em tamanhos tão reduzidos que não conseguimos distinguir a não ser com uso de microscópios, como por exemplo o leite ou a maionese. As misturas homogêneas podem ser classificadas em:

- **Coloidais:** são sistemas nos quais um ou mais componentes apresentam dimensões dentro do intervalo de 1 nm a 1 μm ;
- **Emulsões:** mistura homogênea entre dois líquidos imiscíveis em que um deles (fase dispersa) encontra-se na forma de finos glóbulos no seio do outro líquido (fase contínua) formando uma mistura homogênea e estável;
- **Suspensões:** mistura formada por duas ou mais fases, composta por uma fase externa, que normalmente é um líquido, e uma fase interna formado por partículas sólidas insolúveis. Uma solução é uma mistura homogênea de substâncias puras (átomos, moléculas ou íons) na qual não há precipitação. Também chamada de dispersão, é composta por duas ou mais substâncias, onde uma é o solvente e outras recebem o nome de soluto. Os solutos estão presente em menor quantidade, enquanto que o solvente está presente em maior quantidade. Suas propriedades físicas e químicas podem não estar relacionadas com aquelas das substâncias originais.
- **Solubilidade de líquidos em líquidos:** Quando uma substância se dissolve em outra, partículas do soluto (tanto moléculas como íons, dependendo da natureza do soluto) devem ser distribuídas através do solvente e, de certo modo, as partículas do soluto na solução ocupam posições que são normalmente ocupadas por moléculas do solvente.
- **Solubilidade de sólidos em líquidos:** Em um sólido, as moléculas ou íons estão arrumados em um arranjo muito regular e as forças atrativas estão no seu máximo e para as partículas do soluto entrarem numa solução, as forças de atração soluto-solvente deverão ser suficientemente fortes para superar as forças atrativas que mantêm o sólido ligado. Quando uma substância iônica se dissolve em água, os íons adjacentes no sólido tornam-se separados e são cercados por moléculas do soluto.

Para o caso de soluções salinas com cloreto de sódio dissolvido em água, temos íons positivos Na^+ e íons negativos Cl^- . Nas proximidades imediatas de um íon positivo, as moléculas circunvizinhas de água estão orientadas de tal forma que as extremidades negativas de seus dipolos apontam na direção da carga positiva, enquanto que, cercado um íon negativo, as moléculas de água têm suas extremidades positivas dirigidas para o íon. Um íon preso dentro desta “gaiola” de moléculas de água é considerado hidratado e, em geral, quando uma partícula de soluto fica cercada por moléculas de um solvente, dizemos que está “solvatada”; a hidratação é um caso especial do fenômeno mais geral de solvatação. Este fenômeno está mostrado na Figura 19.

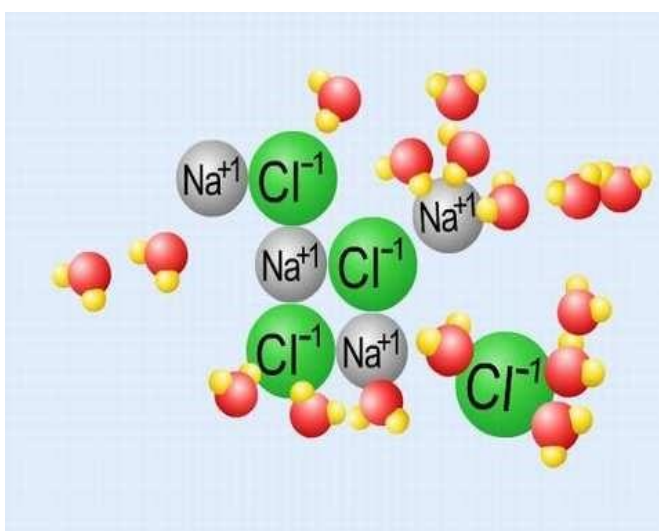


Figura 19: Solução salina de NaCl: distribuição iônica.

Essa distribuição iônica altera a composição pontual do meio que por sua vez modifica a forma de interação da radiação gama com o meio. A probabilidade de ocorrer um espalhamento Compton é fortemente dependente da distribuição iônica do meio. Assim ao submetermos uma amostra de solução salina a um feixe de radiação gama, a intensidade do feixe emergente terá uma relação direta com a concentração da solução.

A densidade ρ de um material é definida como a razão entre a massa m e o volume V a uma dada temperatura e pressão, sendo, então, calculada pela fórmula (Equação 14):

$$\rho = \frac{m}{V} \left[\frac{\text{Kg}}{\text{m}^3} \right]$$

Equação 14

A densidade de um corpo depende de vários fatores. O primeiro, e o mais importante, é de qual ou quais elementos o corpo é constituído e outro fator que afeta a densidade é a temperatura. Para os gases, além da temperatura, a densidade também sofre influência da pressão. Mudanças de estado físico também provocam alterações no valor de densidade de uma substância. Na Tabela 1 são listadas a variação da densidade da água em função da temperatura¹.

Tabela 1: Densidade da água para diferentes temperaturas.

Temperatura (°C)	Densidade da água (g/ml)	Volume da água (cm ³) ²
-10	0,99815	1,00186
-5	0,99930	1,00070
0	0,99987	1,00013
4	1,0000	1,00000
5	0,99999	1,00001
10	0,99973	1,00027
15	0,99913	1,00087
20	0,99823	1,00177
25	0,99707	1,00294
30	0,99567	1,00435
35	0,99406	1,00598
50	0,98870	1,01207
90	0,96534	1,03273

2.7 Espalhamento de radiação gama por misturas e soluções

A maioria das determinações experimentais dos coeficientes de atenuação para fótons de raios gama foram realizadas com amostras cristalinas em forma sólida, mas com o desenvolvimento de sondas densitométricas para aplicação na indústria, vários trabalhos foram realizados usando soluções diferentes soluções como meio absorvedor da radiação gama (Singh & Gerward, 2004). A utilização de material absorvedor sob a forma de soluções tem algumas vantagens concretas, em comparação com materiais absorvedores sólidos como: o critério de homogeneidade do meio é satisfeito sem problemas; a capacidade de o meio absorver ou espalhar fótons gama pode facilmente ser variada mudando-se a quantidade relativa de soluto e de solvente e por último, mas não menos importante, algumas substâncias

¹ Fonte: Handbook of Chemistry and Physics, The Chem. Rubber Publishing, 41th Edt.

solúveis podem não estar disponíveis na forma de cristais puros. A primeira consideração a ser postulada é que o volume de uma solução nem sempre é igual à soma dos volumes de seus constituintes e que a densidade de uma solução também não é igual a média ponderada das densidades dos constituintes. Somente no caso de misturas solidas homogêneas podemos usar a regra da média ponderada quando os seus componentes forem substancias puras.

2.7.1 Cálculo do coeficiente de absorção usando Beer-Lambert

Para o cálculo do coeficiente de absorção da água do mar, considera-se que o único sal presente na água seja o NaCl. O coeficiente de atenuação linear μ é definido pela Lei de Beer-Lambert (Equação 7) para um experimento hipotético onde um feixe de raios gama perfeitamente paralelo, monocromático com energia E , e intensidade I_0 , atravessa um meio absorvedor de espessura uniforme x , e é transmitido de intensidade I , paralelo ao feixe incidente. Neste caso, conforme mostra as Equações 15, 16 e 17, tem-se:

$$\frac{I}{I_0} = e^{-\mu x} \quad \text{Equação 15}$$

$$\ln \frac{I}{I_0} = -\mu x \quad \text{Equação 16}$$

$$\mu = \frac{1}{x} (\ln I_0 - \ln I) \quad \text{Equação 17}$$

Considerando a solução salina como o meio absorvedor e como uma mistura formada por dois compostos, água pura (H_2O) e cloreto de sódio ($NaCl$), o coeficiente de atenuação mássico, $(\mu/\rho)_{\text{solução}}$ é dado pela soma ponderada de contribuição de cada uma das componentes conforme Equação 18:

$$\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{\text{solução}} = \left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{\text{sal}} w_{\text{sal}} + \left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{\text{água}} w_{\text{água}} = \left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{\text{água}} + \left[\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{\text{sal}} - \left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{\text{água}}\right] w_{\text{sal}} \quad \text{Equação 18}$$

Onde:

w_{sal} e $w_{\text{água}}$ são as frações molares do sal e da água, respectivamente, com $w_{\text{sal}} + w_{\text{água}} = 1$;

$\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{\text{sal}}$ e $\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{\text{água}}$ são os coeficientes de atenuação mássico para o sal e água respectivamente.

Na Tabela 2, são listadas as características físico-químicas do NaCl.

Tabela 2: Propriedades Físico-Químicas do Cloreto de Sódio

Propriedades	Valores
Fórmula Molecular	NaCl
Massa Molar	58,443 g/mol
Densidade	2,165 g/cm ³
Ponto de Fusão	801° C
Ponto de Ebulição	1465° C
Solubilidade em água	356 g/ℓ (0° C)
	359 g/ℓ (25° C)
	391 g/ℓ (100° C)

Na Tabela 3, estão listados os valores para a densidade específica ρ de soluções aquosas de cloreto de sódio² a 20° C.

Tabela 3: Densidade Específica de Soluções Aquosas de Cloreto de Sódio.

Densidade Específica (g/ℓ)	Concentração NaCl (%)	Concentração NaCl (g/ℓ)
1,0053	1	10,05
1,0125	2	20,25
1,0268	4	41,07
1,0707	10	107,1
1,0857	12	130,3
1,1009	14	154,1
1,1478	20	229,6
1,1640	22	256,1
1,1804	24	283,3

² Fonte: Handbook of Chemistry and Physics, The Chem. Rubber Publishing 41th Edt

Uma possibilidade para medir o coeficiente linear de absorção de uma solução aquosa de cloreto de sódio é usar a equação de Beer-Lambert (Equação 8) para calcular o coeficiente de absorção linear “ μ ” e o valor da densidade específica “ ρ ” da Tabela 3 e combinar estes valores com a Equação 18. O problema de usar este método, é que só poderão ser calculados valores do coeficiente de atenuação mássico para as soluções cujos dados encontram-se tabelados. Outro fator que interfere no cálculo do coeficiente de absorção mássico das soluções, é que a regra da mistura está fundamentada em que o valor do volume da solução é igual ao volume de cada um dos seus constituintes, conforme a Equação 19:

$$V = n_A v_A + n_S v_S \quad \text{Equação 19}$$

Contudo, para soluções reais temos que $V < (n_A v_A + n_S v_S)$ e Moore (1983) sugere que, para soluções aquosas de cloreto de sódio, o volume V de uma solução contendo 1 kg de água pura e *moles* de NaCl pode ser dado pela Equação 20:

$$V = 1001,38 + 16,6253n + 1,7738n^{3/2} + 0,01194n^2 \text{ [cm}^3\text{]} \quad \text{Equação 20}$$

Assim, para cada solução, a densidade ρ é calculada pela Equação 21:

$$\begin{aligned} \rho &= \frac{\text{massa da solução}}{\text{volume da solução}} \\ &= \frac{m_A + m_S}{V} \\ &= 1000 + \frac{nM_S}{V} \end{aligned} \quad \text{Equação 21}$$

Onde:

M_S é a massa molar do NaCl (58,443 g/mol).

A fração mássica do NaCl para a solução é dada pela Equação 22:

$$w_S = \frac{nM_S}{1000 + nM_S} \quad \text{Equação 22}$$

Combinando as Equações 20, 21 e 22, pode-se calcular o coeficiente de atenuação linear “ μ ” para qualquer solução aquosa de NaCl.

2.7.2 Cálculo do coeficiente de absorção usando a Lei de Beer

Lambert desenvolveu a equação para a atenuação de um feixe de fótons em função da espessura de um meio homogêneo, e Beer desenvolveu sua equação para cálculo da absorção de radiação UV ou visível considerando o efeito da concentração da solução usada como meio absorvente. Pela Lei de Beer, a densidade de radiação está diretamente relacionada com a variação da intensidade do feixe incidente e o feixe transmitido e a constante de proporcionalidade é denominada coeficiente de extinção molar é a capacidade que um mol de substância em absorver um fóton de radiação com energia E . A equação da lei de Beer (Singh e Gerward, 2004) é dada por:

$$\log_{10} \frac{I}{I_0} = RD = \epsilon C x I = I_0 10^{\epsilon C x}$$

Equação 23

Onde:

I_0 é a intensidade da radiação incidente;

I é a intensidade da radiação emergente;

C é a concentração molar do soluto na solução (mol/ ℓ);

x é a distância percorrida pelo feixe de fótons;

ϵ é o coeficiente de extinção molar ($\ell \text{mol}^{-1} \text{cm}^{-1}$);

RD : é a absorbância.

O coeficiente de extinção molar ϵ é uma secção de choque análogo ao coeficiente de atenuação mássico μ/ρ e, quanto maior for ϵ , maior será a sua capacidade para bloquear a passagem da radiação incidente. Para uma solução com concentração C , pode-se escrever a Equação 24:

$$n = N_0 C$$

Equação 24

A equação de Beer-Lambert (Equação 7), pode ser escrita como na Equação 25:

$$I = I_0 e^{-N_0 C \sigma x}$$

Equação 25

Comparando as Equações 23 e 25, obtém-se:

$$\epsilon = \sigma N_0 \log_{10} e = 0,4343 N_0 \sigma = 0,4343 M \frac{\mu}{\rho}$$

Equação 26

O mesmo raciocínio é desenvolvido considerando a solução como uma mistura entre água pura e NaCl e é válida a seguinte relação:

$$\log_{10} \frac{I}{I_0} = RD = \epsilon_A C_A x + \epsilon_S C_S x$$

Equação 27

Onde:

ϵ_A e ϵ_S são os coeficientes de extinção molar para a água pura e NaCl, respectivamente;

C_A e C_S são as concentrações molares da água e do NaCl.

O valor de ϵ_A é calculado usando água pura e ϵ_S é calculado para diferentes concentrações de NaCl. Singh usou um detector NaI(Tl) (1,5''×1,5'') e resolução 12% para a energia de 662 keV do Cs^{137} e foi medida a intensidade do feixe espalhado para várias soluções com várias concentrações de maltose ($\text{C}_{12}\text{H}_{22}\text{O}_{11}$) e foi verificado que a densidade de radiação se mantém praticamente constante com a variação da concentração da solução e os resultados apresentados forneceram uma base para o estudo do espalhamento de fótons gama em soluções (íons hidratados) (Singh e Gerward, 2004).

2.7.3 Cálculo do coeficiente de absorção usando Monte Carlo

O Monte Carlo n-Particle eXtended (MCNP-X) trata-se de um código computacional que simula o transporte e a interação da radiação com a matéria. Foi desenvolvido baseado no método estatístico de Monte Carlo. O código fornece o valor de I/I_0 , que é utilizado no cálculo do coeficiente de atenuação, na equação de Beer-Lambert. É necessário fornecer a energia (em MeV) e o tipo de fonte (de raios gama, para este caso) ao código, além de descrever o material absorvedor e superfície de detecção. A geometria apropriada para a medição destes coeficientes requer uma fonte monoenergética e um feixe monodirecional, conforme mostrado na Figura 20.

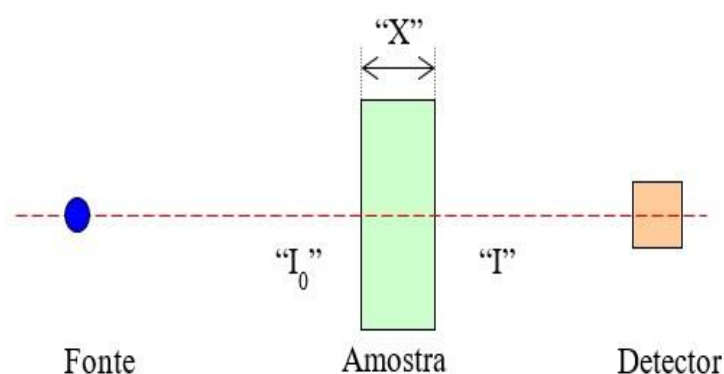


Figura 20: Esboço representativo de geometria para cálculo do coeficiente de atenuação.

O XCOM é um código fornecido e disponibilizado *online* pelo NIST (National Institute of Standards and Technology). Com o XCOM, é possível gerar as seções de choque para elementos, compostos e misturas, na faixa de energia entre 1 eV e 100 GeV.

3 Materiais e Métodos

O trabalho experimental está relacionado com a medida do coeficiente de atenuação mássico da solução aquosa salina. Foi elaborado um arranjo experimental no laboratório de Radiotraçadores do Instituto de Engenharia Nuclear.

3.1 Materiais

Foram utilizadas duas fontes de radiação gama, ^{241}Am e ^{137}Cs , com energias de 59,54 keV e 662 keV e as características seguem na Tabela 4. Um béquer de 40 mL foi utilizado como porta amostra e inserido em um colimador de chumbo em forma de copo, com abertura de 9,5 mm de diâmetro, localizado no centro do copo. A amostra consiste em água deionizada e Cloreto de Sódio P.A.

Tabela 4: Atividade das fontes de radiação.

Fonte	Energia (keV)	Meia-Vida	Atividade na calibração	Atividade Corrigida *	Probabilidade de emissão (%)
^{241}Am	59,54	432,7±0,4 anos	190,50 kBq	188,38 kBq	36,0±0,3
^{137}Cs	662,0	11.009±11 dias	556,41 kBq	509,45 kBq	84,6±0,5

*Atividade corrigida para a data de realização do experimento.

O detector utilizado consiste em uma fotomultiplicadora com cristal de NaI(Tl). Na aquisição de dados, foram utilizados:

- Um computador contendo uma placa de analisador multicanal (AMC), cuja função é obter e processar o sinal gerado pelo detector de NaI(Tl);
- Um sistema de espectrometria, contendo um espectrômetro fabricado pelo IEN modelo MS-4031, pré-amplificador fabricado pela ORTEC modelo 113, amplificador ORTEC modelo 435A e fonte de alta tensão fabricada pela MICRONAL modelo 1023A.

3.2 Métodos

3.2.1 Potencialidade do Código

Estudos preliminares foram desenvolvidos visando avaliar a potencialidade do código MCNP-X nos problemas relacionados aos cálculos do coeficiente de atenuação em soluções aquosas.

Inicialmente, desenvolveu-se uma geometria composta por um detector de NaI(Tl), fonte puntiforme com feixe *pencil beam*. O material absorvedor utilizado foi água pura (H₂O). A faixa de energia utilizada foi de 20 a 800 keV. Uma segunda aproximação do modelo considerou a eficiência de contagem do detector. Os resultados encontrados foram comparados com os valores teóricos do NIST.

Considerando que o número de histórias de partículas (NPS, *number of particle histories*) define a precisão e flutuação estatística dos resultados, e que as respostas calculadas pelo código MCNP-X são acompanhadas pelo erro relativo estimado, realizou-se um estudo variando o número NPS entre 10⁴ e 10⁸, com o objetivo de avaliar qual número de eventos é ideal. Vale destacar que esta etapa visou aperfeiçoar o tempo computacional. Este estudo foi realizado considerando uma amostra de água pura com densidade de 1,0 g·cm⁻³ na temperatura de 4°C na energia de 662 keV.

3.2.2 Salinidade

Os sais encontrados na composição da água do mar em quantidade significativa foram utilizados para cálculo do coeficiente de atenuação mássico. Os sais mais encontrados são NaCl, KCl e MgCl₂. A geometria utilizada nos estudos preliminares foi utilizada para um estudo de medida do coeficiente de atenuação mássico variando o percentual de concentração em 2%, 6%, 10% e 14%, na faixa de energia de 20 a 800 keV. Após essa etapa, o modelo foi utilizado apenas com a amostra de cloreto de sódio, pois este é o sal em maior quantidade na água do mar, variando a energia utilizando os valores de radioisótopos conhecidos, com 59,54 keV (²⁴¹Am); 356,02 keV (¹³³Ba); 662 keV (¹³⁷Cs); 1,27 MeV (²²Na) e 1,33 MeV (⁶⁰Co).

Como a metodologia proposta é para ser aplicada *in situ*, é necessário avaliar a possibilidade de interferência de alguns fatores na medida do coeficiente de atenuação mássico da solução salina. São eles a variação da temperatura da água pura, cujo modelo utilizado foi constituído de fontes puntiformes com emissão *pencil beam*, nas energias de 59,54 keV e 662 keV. O material absorvedor utilizado foi água pura, com espessura de 4 cm. Um detector de NaI(Tl) foi utilizado

para registrar as contagens do feixe de radiação e, com o valor obtido, foi calculado o coeficiente de atenuação mássico.

3.2.3 Arranjo experimental

A solução aquosa utilizada foi de água deionizada a qual foi acrescentado teores diferentes de NaCl. Para o preparo da solução, foi necessário aquecer a água para auxiliar na solubilidade do NaCl. Primeiro, foi preparada uma “solução mãe” com concentração de 5 Molar. Em seguida, obteve-se 38 concentrações menores através da diluição da solução mãe. Foram elaboradas soluções de 50 mL com concentrações de 2,5; 2,0; 1,5 e 1,0 Molar. O volume de cada solução foi verificado utilizando-se um bureta graduada. O conjunto de medida é composto por um béquer de *pyrex* com volume total de 50 mL e para que a solução não ficasse em contato direto com a superfície do detector, após ser totalmente preenchido o béquer foi coberto por filme fino de PVC. A fonte de radiação foi posicionada na base do béquer e colimada com chumbo e com abertura de 10 mm. Todo o conjunto era alinhado a cada experimento de maneira a garantir as condições de medida.

Para minimizar as contribuições do espalhamento em ângulos maiores que o definido pelo sistema fonte-colimador na medição da intensidade do feixe transmitido foi calculado a área do fotopico limitada pela região entre a largura-a-meia altura (FWHM). Essa condição torna a medida experimental da intensidade do feixe mais próxima do modelo tipo *pencil beam*, mas por sua vez resulta em um baixo número de contagens, necessitando então que os espectros fossem medidos em tempos longos. As medidas utilizando a fonte de ^{241}Am e ^{137}Cs duraram aproximadamente 20 e 24 horas respectivamente.

3.2.4 Modelagem do experimento

O modelo aproximado da geometria do arranjo experimental é mostrado na Figura 21. Este modelo foi elaborado com o objetivo de reproduzir o experimento no código MCNP-X, e os resultados obtidos na simulação foram comparados com os valores teóricos e experimentais. A modelagem foi desenvolvida com as características dos materiais utilizados nos experimentos, como o béquer de *pyrex*, colimador de chumbo, cristal de NaI(Tl).

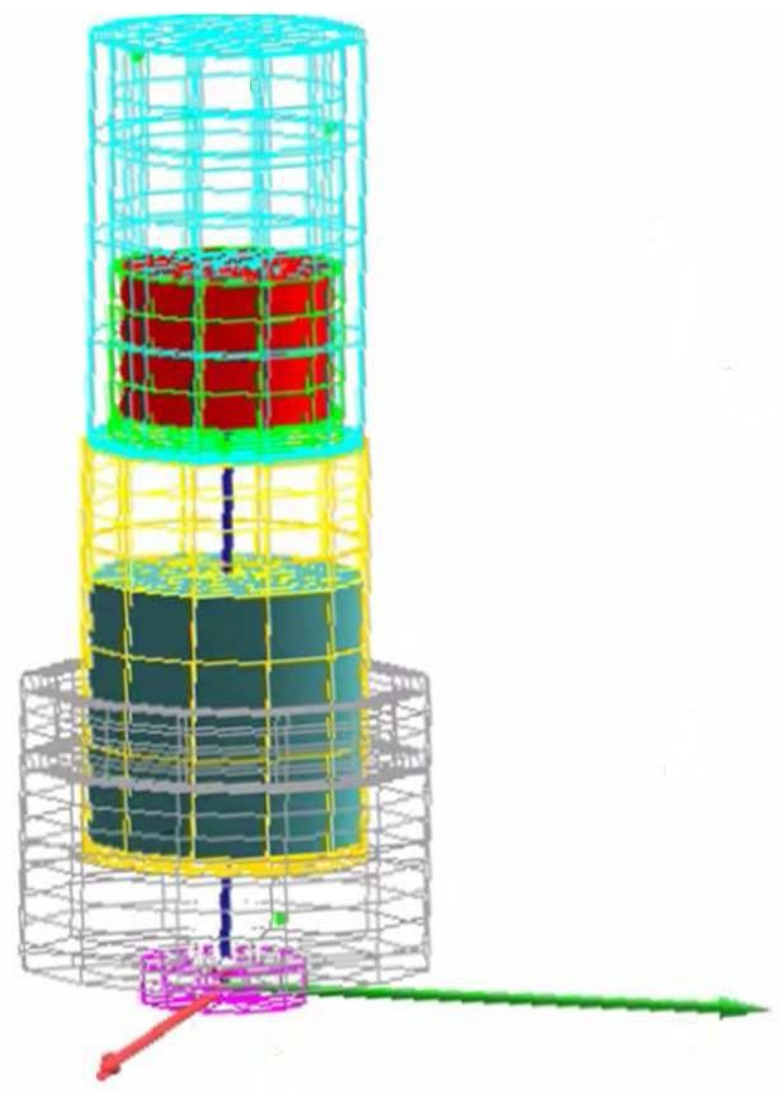


Figura 21: Modelagem desenvolvida do arranjo experimental.

4 Resultados

4.1 Avaliação dos parâmetros utilizados em simulações

4.1.1 Simulando no código MCNP-X

O primeiro estudo com a água pura (H_2O) mostrou uma boa concordância com os valores teóricos tabelados pelo NIST. De acordo com a Figura 22, nota-se que existe uma pequena diferença ($\approx 2\%$) somente na região de baixas energias (entre 20 keV e 80 keV). Esta pequena diferença não interfere nos resultados dos experimentos realizados neste trabalho, já que a região de interesse para o cálculo do coeficiente de atenuação encontra-se na faixa de altas energias, entre 100 keV e 800 keV. A concordância entre os resultados calculados pelo código MCNP-X e os dados tabelados pelo NIST justifica-se, porque o código MCNP-X utiliza as mesmas bibliotecas de seção de choque fornecidas pelo NIST para realizar os cálculos dos coeficientes de atenuação.

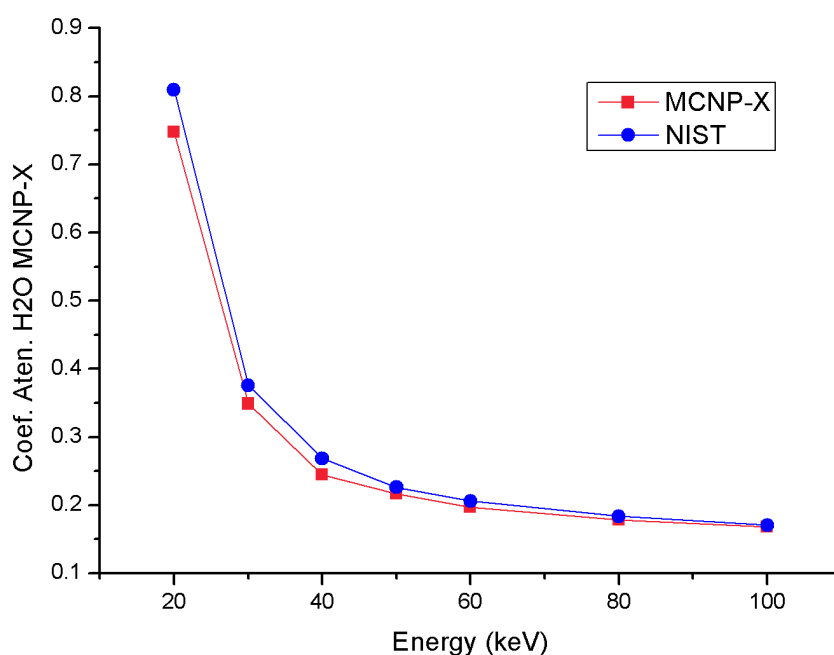


Figura 22: Comparação entre o código MCNP-X e NIST para amostra de água pura.

4.1.2 Estudo do melhor valor para NPS

Outra avaliação realizada foi estudar a relação entre o número de eventos (NPS), fornecido como dado de entrada ao código MCNP-X, e a incerteza relacionada ao cálculo do valor do coeficiente de atenuação linear. O resultado é mostrado na Figura 23, onde é evidente que, para valores de NPS menores que 10^6 , a incerteza associada é muito grande. Por isso, nas modelagens

futuras foi adotado um valor de NPS igual a 10^7 . Para valores de NPS acima de 10^8 não há nenhum ganho significativo com relação à incerteza associada ao coeficiente de atenuação mássico, mas ocorre um aumento considerável no tempo computacional para que os modelos fossem gerados. Por este motivo, foi decidido utilizar um valor de NPS igual a 10^7 .

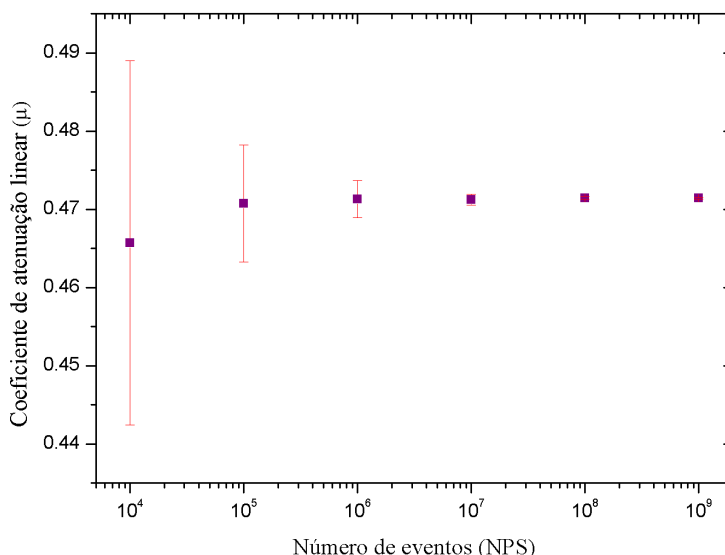


Figura 23: Coeficiente de Atenuação linear em função do número de eventos gerados.

4.1.3 Coeficientes de atenuação mássicos para diferentes concentrações de sal

Fixados os parâmetros de entrada para o código MCNP-X, procedeu-se então ao estudo de modelagem para calcular o coeficiente de atenuação mássico, considerando os principais sais presentes na água do mar, conforme mostrado na Figura 3 (item 1.1). O primeiro sal modelado foi o NaCl e os resultados são mostrados na Figura 24. Considerando que a concentração máxima de NaCl em água do mar é de aproximadamente 14%, os modelos foram gerados para uma variação da concentração de NaCl entre 2% e 14%. Os resultados mostram que, para essa faixa de concentração, as curvas são praticamente idênticas. Ou seja, não há alteração considerável no valor do coeficiente de atenuação mássico para o NaCl, na faixa de energia entre 100 keV e 800 keV, para as concentrações consideradas.

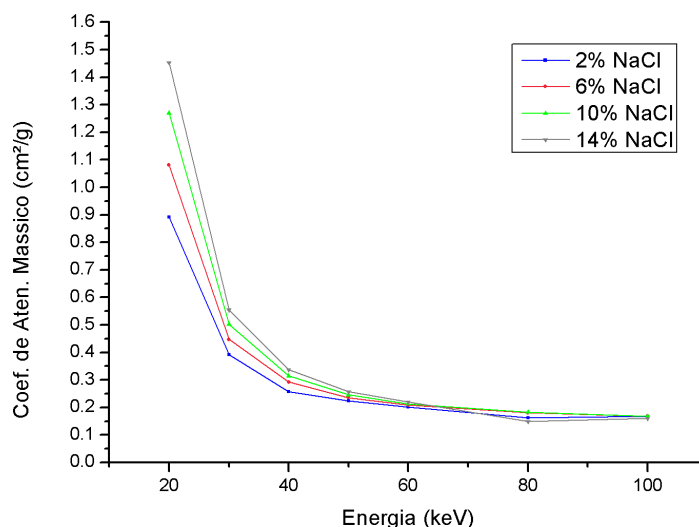


Figura 24: Coeficiente de atenuação mássico para solução de cloreto de sódio (NaCl).

É possível observar que para energias abaixo de 100 keV, a região de predominância do efeito fotoelétrico sobre o efeito Compton para a interação da radiação gama com o meio, ocorre uma pequena variação no cálculo do coeficiente de atenuação mássico relacionado com a concentração das soluções. O mesmo resultado foi verificado para a modelagem para os sais de cloreto de magnésio e cloreto de potássio, conforme mostrado na Figura 25 e Figura 26.

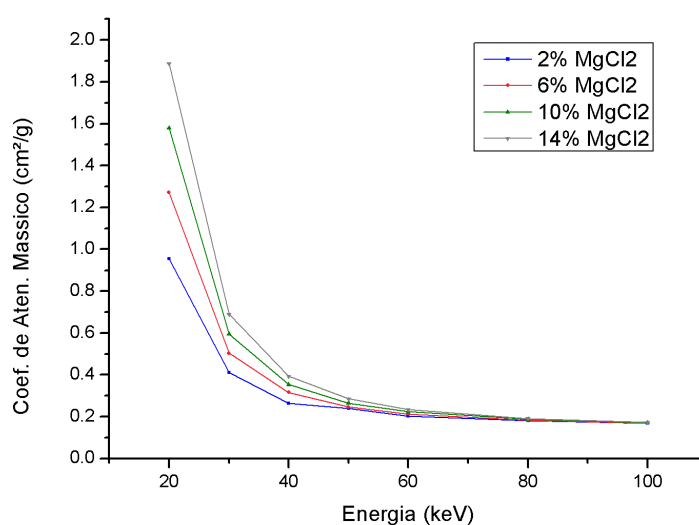


Figura 25: Coeficiente de atenuação mássico para solução de cloreto de magnésio (MgCl₂).

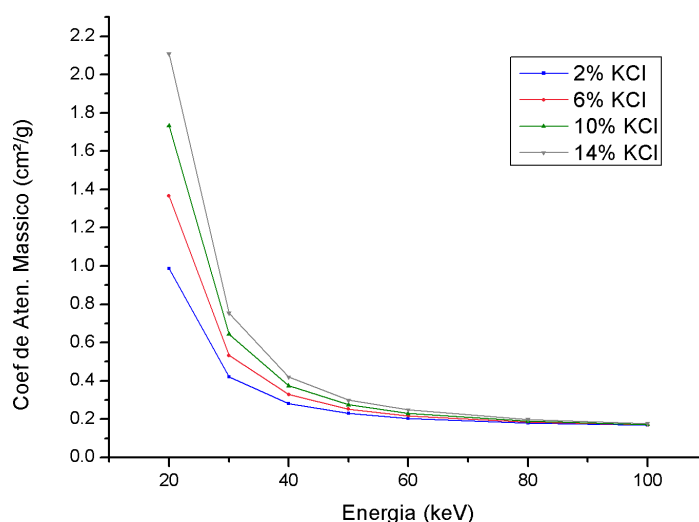


Figura 26: Coeficiente de atenuação mássico para solução de cloreto potássio (KCl).

Na sequência, foram então realizadas simulações para cálculo do coeficiente de atenuação mássico considerando somente o cloreto de sódio usando o código MCNP-X tendo como referência os dados gerados pelo código XCOM localizados na plataforma do NIST XCOM (Hubbell, et al, 2010). Estes resultados são mostrados na Figura 27 onde é evidente a concordância do modelo gerado no código MCNP-X com os dados do modelo de referência do XCOM. Todos os valores foram gerados para determinadas energias correspondente a energias das fontes existentes no Laboratório de Radiotraçadores do IEN.

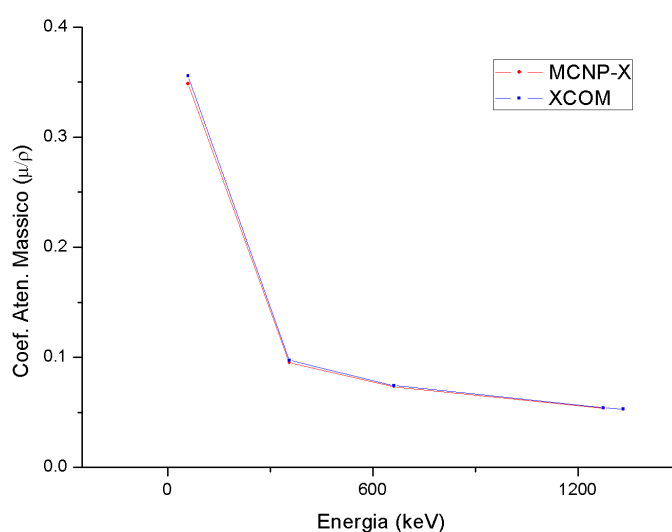


Figura 27: Amostra de cloreto de sódio com diferentes energias.

Como mostrado no Capítulo 2, na Tabela 1, a variação de temperatura da água ocasiona uma variação na densidade da água. Por isso, o coeficiente de atenuação mássico da água foi calculado considerando os valores tabelados. Na Tabela 5 é mostrado o resultado para a fonte de ^{241}Am , enquanto a Tabela 6 mostra os resultados para a fonte de ^{137}Cs . Os resultados mostram que ocorre uma pequena variação no valor do coeficiente de atenuação mássico em torno de 0,1% para a fonte de ^{241}Am , e de 0,5% para a fonte de ^{137}Cs . Esta variação de temperatura é a mesma que se encontra nos campos de produção de petróleo *offshore*.

Tabela 5: Coeficiente de Atenuação Mássico para a água e variação de temperatura usando a energia da fonte de ^{241}Am .

Temperatura (° C)	Densidade (g.cm ⁻³)	Coeficiente de Atenuação Mássico (cm ² .g ⁻¹)
-10	0,99815	0,200288
-5	0,9993	0,200286
0	0,99987	0,200287
5	0,99999	0,200287
10	0,99973	0,200287
15	0,99913	0,200286
20	0,99823	0,200288
25	0,99707	0,200289
30	0,99567	0,200290

Tabela 6: Coeficiente de Atenuação Mássico para a água e variação de temperatura usando a energia da fonte de ^{137}Cs .

Temperatura (° C)	Densidade (g/cm ³)	Coeficiente de Atenuação Mássico
-10	0,99815	0,08520000
-5	0,9993	0,08521182
0	0,99987	0,085209393
5	0,99999	0,085210705
10	0,99973	0,085211434
15	0,99913	0,085211476
20	0,99823	0,085210733
25	0,99707	0,085210763
30	0,99567	0,085211536

Para o cálculo do fator de atenuação de massa das soluções aquosas contendo NaCl, foi necessário primeiramente efetuar o cálculo da densidade específica de cada uma das soluções e na relação da concentração molar e o percentual de NaCl para as soluções que foram empregadas

no arranjo experimental de medição. Isto se fez necessário porque o código MCNP-X aceita a concentração somente na forma em fração mássica. Os resultados do INPUT para os valores do código são mostrados na Tabela 7.

Tabela 7: Transformação da concentração molar em percentual.

Densidade da solução	Concentração Molar	Concentração em percentual
1,05854	1,0	0,23
1,08781	1,5	0,35
1,11708	2,0	0,47
1,14635	2,5	0,59

A Figura 28: *Espectros da solução para as concentrações com energia de 59,54 keV.*

mostra os espectros experimentais para a energia do ^{241}Am e a Figura 29, os espectros para a energia do ^{137}Cs .

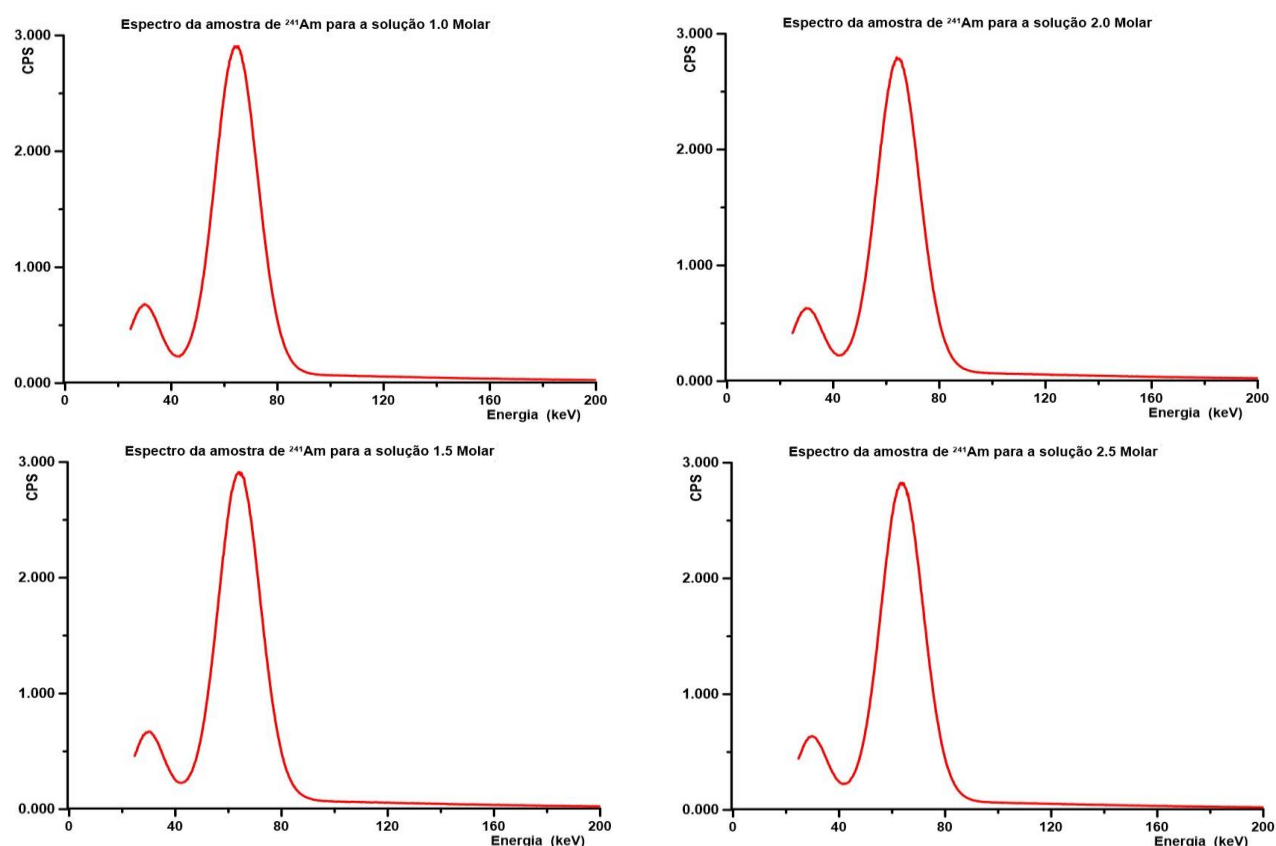


Figura 28: Espectros da solução para as concentrações com energia de 59,54 keV.

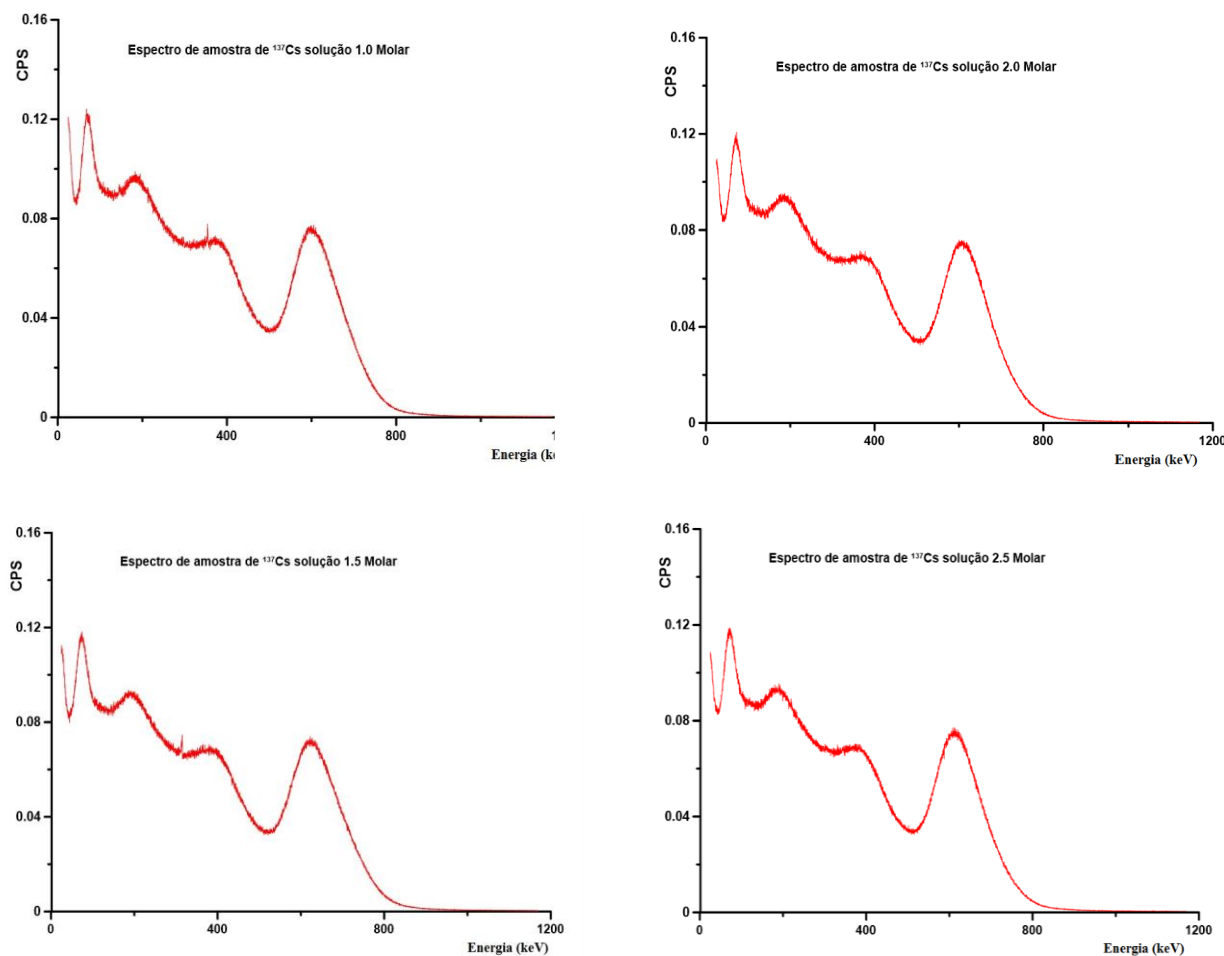


Figura 29: Espectros da solução para as concentrações com energia de 662 keV.

Na Figura 30 são apresentados os resultados do cálculo do coeficiente de atenuação mássico obtidos pela simulação do código MCNP-X e os valores medidos experimentalmente. Nesta Figura é mostrado que a variação de concentração de soluções salinas é mais evidente quando utilizada a energia de 59,54 keV do ^{241}Am que a energia 662 keV do ^{137}Cs , isso deixa claro que o desenvolvimento de uma sonda para a medida da salinidade de soluções aquosas deve fundamentada no uso de fontes de baixa energia como a do ^{241}Am .

Nota-se que os valores simulados pelo código MCNP-X apresentam menor dispersão pois a reta ajustada pelo método de mínimos quadrados apresenta para as duas energias um coeficiente de correlação $r^2=0,999$, contudo para o caso experimental $r^2= 0,96$ para o ^{241}Am e $r^2= 0,88$ para o ^{137}Cs . Esse fato pode ser provocado pelo ruído eletrônico, estatística dos processos que ocorrem na fotomultiplicadora e pela contribuição da atenuação da radiação gama pelas paredes do béquer

que são consideradas na modelagem do código perfeitamente uniformes, o que não acontece no caso experimental.

Além disso, na modelagem do código MCNP-X considerou-se o material *pyrex* com uma composição uniforme e os valores da densidade conforme dados fornecidos pela base de dados do MCNP-X, e para o caso experimental, o material *pyrex* não possui certificação.

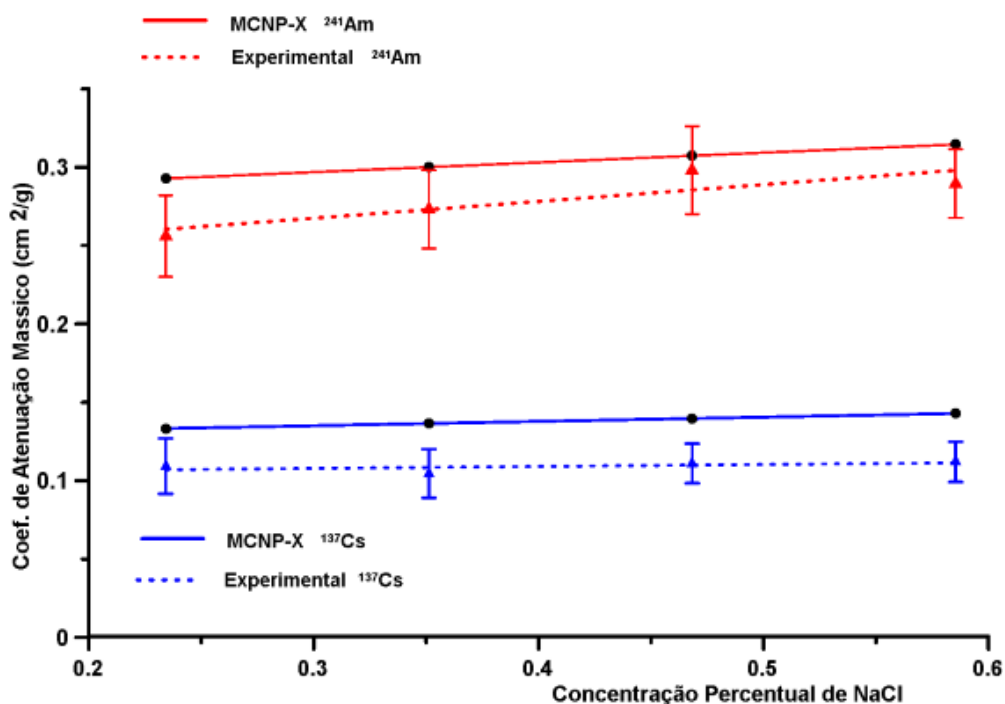


Figura 30: Coeficiente de Atenuação Mássico para diferentes concentrações para 59,54 keV e 662 keV.

5 Conclusão

Os resultados obtidos através dos estudos realizados com o desenvolvimento da pesquisa permitiram destacar as seguintes conclusões:

- O objetivo principal era desenvolver metodologia para cálculo do coeficiente mássico de soluções aquosas com concentrações diferentes de NaCl utilizando densitometria gama e os resultados mostram ser possível a medida utilizando fontes de baixa energia como a do ^{241}Am . A incerteza associada a cada medida experimental foi principalmente motivada pelo uso de uma fonte de baixa atividade, fonte calibrada disponível no Laboratório de Radiotraçadores do IEN, o que motivou o uso do colimador somente para a fonte, mantendo a face do detector cintilador NaI(Tl) totalmente aberta. Esta geometria favorece um ângulo de divergência considerável, aumentando o FWHM do fotopico. Com uma fonte mais intensa, seria possível colimar a face dianteira do detector transformando o sistema em uma geometria do tipo *pencil beam*.

- O resultado obtido pela simulação utilizando o código MCNP-X mostra uma concordância considerável com os resultados experimentais. Pode-se salientar que essa diferença na simulação pode ser devido a que não foi possível utilizar o material real que constitui o béquer, pois nenhuma certificação técnica do vidro *pyrex* do béquer foi disponibilizado.

- A dificuldade na realização de medidas experimentais que exige um sistema de detecção extremamente calibrado para que as incertezas associadas aos valores calculados sejam mínimas, é superada pela facilidade de simulação de sistemas geométricos complexos utilizados e o código MCNP-X. Além disso, o tempo de computação para cada simulação foi da ordem 2 minutos, diferente do tempo de contagem experimental que foi da ordem de 24 h.

Como trabalhos futuros, propõe-se a realização de novas medidas experimentais empregando uma fonte de maior intensidade para que possamos aproximar a geometria de medida à geometria tipo *pencil beam* colimando-se tanto a fonte quanto a face dianteira do detector. Uma sugestão é o uso de um tubo de raios X como fonte de radiação com energia definida e uma intensidade considerável. Com esta nova disposição de fonte-detector, existe a possibilidade de desenvolver uma sonda densitométrica para a medida de salinidade de solução aquosa em dutos de transporte de material *in situ*.

Referências Bibliográficas

- Abd, a El. 2014. A method for determination mass absorption coefficient of gamma rays by Compton scattering. *Applied radiation and isotopes*, **94**, 247–253.
- Abouelwafa, M.S.A S A, & Kendall, E. J. M. 1980. The measurement of component ratios in multiphase systems using y-ray attenuation. *J. phys. e: Sci. instrum*, **13**, 341–345.
- Åbro, E., & Johansen, G. a. 1999. Improved void fraction determination by means of multibeam gamma-ray attenuation measurements. *Flow measurement and instrumentation*, **10**, 99–108.
- Akar Tarim, U., Gurler, O., Ozmutlu, E.N. N, & Yalcin, S. 2013. Monte Carlo calculations for gamma-ray mass attenuation coefficients of some soil samples. *Annals of nuclear energy*, **58**(aug), 198–201.
- Akkurt, I., Akyıldırım, H., Mavi, B., Kilincarslan, S., & Basyigit, C. 2010. Photon attenuation coefficients of concrete includes barite in different rate. *Annals of nuclear energy*, **37**(7), 910– 914.
- Backstrom, Lars G E., & Eicken, Hajo. 2006. Capacitance probe measurements of brine volume and bulk salinity in first yeah sea ice. *Cold regions science and technology*, **46**(aug), 167–180.
- Bath, A., Richards, H., Metcalfe, R., McCartney, R., Degnan, P., & Littleboy, A. 2006. Geochemical indicators of deep groundwater movements at Sellafield, UK. *Journal of geochemical exploration*, **90**(1-2), 24–44.
- Berger, M.J., Hubbell, J.H., Seltzer, S.M., Chang, J., Coursey, J.S., Sukumar, R., Zucker, D.S., and Olsen, K. 2010. *XCOM: Photon Cross Section Database (version 1.5)*.
- Bezerra, Luiz Gustavo Escórcio. 2006. Aspectos Juridicos.pdf. *Rbdp*, 117–138.
- Hubbell, J.H. H. 1969. *Photon Cross Sections, Attenuation Coefficients and Energy Absorption Coefficients from 10 keV to 100 GeV*.
- Johansen, G. a., & Jackson, P. 2000. Salinity independent measurement of gas volume fraction in oil/gas/water pipe flows. *Applied radiation and isotopes*, **53**(aug), 595–601.
- Kharaka, Y. K., & Hanor, J. S. 2013. Deep Fluids in Sedimentary Basins. *Treatise on geochemistry:Second edition*, **7**, 471–515.
- Knoll, Glenn F. 2010. *Radiation Detection and Measurement*.
- Lucchesi, Celso Fernando. 1998. Petróleo. *Estudos avançados*, **12**(33), 17–40.

- Lund Bo, Oystein, & Nyfors, Ebbe. 2002. Application of microwave spectroscopy for the detection of water fraction and water salinity in water/oil/gas pipe flow. *Journal of non-crystalline solids*, **305**, 345–353.
- Mi, Y., Ishii, M., & Tsoukalas, L. H. 2001. Flow regime identification methodology with neural networks and two-phase flow models. *Nuclear engineering and design*, **204**, 87–100.
- Mincong, Chen, Hongmei, Li, Ziyu, Chen, & Ji, Shen. 2008. An examination of mass thickness measurements with X-ray sources. *Applied radiation and isotopes*, **66**, 1387–1391.
- Moore, W. J. 1983. *Basic Physical Chemistry*.
- Rebgetz, M.D D, Watt, J.S. S, & Zastawny, H.W. W. 1991. Determination of the volume fractions of oil, water and gas by dual-energy gamma-ray transmission.pdf. *Nuclear geophysics*, **5**.
- Rettschlag, M., Berndt, R., & Mortreau, P. 2007. Measurement of photon mass attenuation coefficients of plutonium from 60 to 2615 keV. *Nuclear instruments and methods in physics research, section a: Accelerators, spectrometers, detectors and associated equipment*, **581**, 765–771.
- Roach, G. J, Watt, J.S. S S, Zastawny, H. W., Hartley, P. E., & Ellis, W. K. 1994. Multiphase flowmeter for oil-water and gas in pipelines based on gamma-ray transmission techniques.pdf. *Nuclear geophysics*, **8**(3), 225–242.
- Salgado, César Marques. 2010. *Identificação de Regimes de Fluxo e Predição de Frações de Volume em Sistemas Multifásicos Usando Técnica Nuclear e Rede Neural Artificial*. Ph.D. thesis.
- Salgado, César Marques, Brandão, Luis E B, Schirru, Roberto, Pereira, Cláudio M N, da Silva, Ademir Xavier, & Ramos, Robson. 2009. Prediction of volume fractions in three-phase flows using nuclear technique and artificial neural network. *Applied radiation and isotopes : including data, instrumentation and methods for use in agriculture, industry and medicine*, **67**(10), 1812– 1818.
- Salinas, I. C P, Conti, C. C., & Lopes, R. T. 2006. Effective density and mass attenuation coefficient for building material in Brazil. *Applied radiation and isotopes*, **64**, 13–18.
- Sidhu, Baltej Singh, Dhaliwal, a. S., Mann, K. S., & Kahlon, K. S. 2012. Study of mass attenuation coefficients, effective atomic numbers and electron densities for some low Z compounds of dosimetry interest at 59.54 keV incident photon energy. *Annals of nuclear energy*, **42**, 153–157. 52
- Singh, K., & Gerward, L. 2004. Molar extinction coefficients for describing gamma-ray attenuation in solutions. *Radiation physics and chemistry*, **71**, 659–660.

- Singh, Kulwant, Singh, Harvinder, Sharma, Vishal, Nathuram, Rohila, Khanna, Atul, Kumar, Rajesh, Bhatti, Surjit Singh, & Sahota, Hari Singh. 2002. Gamma-ray attenuation coefficients in bismuth borate glasses. *Nuclear instruments and methods in physics research, section b: Beam interactions with materials and atoms*, **194**, 1–6.
- Singh, Sukhpal, Kumar, Ashok, Thind, Kulwant Singh, & Mudahar, Gurmel S. 2008. Measurements of linear attenuation coefficients of irregular shaped samples by two media method. *Nuclear instruments and methods in physics research, section b: Beam interactions with materials and atoms*, **266**, 1116–1121.
- Sitamahalakshmi, N V, Kareem, M A, & Premachand, K. 2015. Total photon attenuation coefficients in some rare earth elements using selective excitation method. *Radiation physics and chemistry*, **106**, 160–164.
- Tauhata, Luiz, Prinzio, Renato Di, & Prinzio, Antonieta R Di. 2003. *Radioproteção e Dosimetria: Fundamentos*. Rio de Janeiro: Instituto de Radioproteção e Dosimetria, CNEN.
- Tsoufanidis, Nicholas. 1995. *Measurement and Detection of Radiation*.
- USBM. 1968. Dictionary of Mining, Mineral, and Related Terms. 932.
- Zandonade, Tatiani Andrião, & Sanjombi, Bernabé Alfredo. 2015. Gerenciamento de injeção de água: análise qualitativa a partir dos resultados da salinidade da água produzida e testes com traçadores. *Latin american journal of energy research*, **1**(1), 1–7.