

**INSTITUTO DE ENGENHARIA NUCLEAR**

**WILLIAM LUNA SALGADO**

**METODOLOGIA PARA A MODELAGEM DE UM SISTEMA DE MONITORAÇÃO  
DE INTERFACE DE SUBPRODUTOS DE PETRÓLEO EM POLIDUTOS USANDO  
A ATENUAÇÃO DA RADIAÇÃO GAMA**

**Rio de Janeiro**

**2018**

WILLIAM LUNA SALGADO

**METODOLOGIA PARA A MODELAGEM DE UM SISTEMA DE MONITORAÇÃO  
DE INTERFACE DE SUBPRODUTOS DE PETRÓLEO EM POLIDUTOS USANDO  
A ATENUAÇÃO DA RADIAÇÃO GAMA**

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.

Orientador: Prof. Dr. Luis Eduardo Barreira Brandão

Rio de Janeiro

2018

SALG Salgado, William Luna

Metodologia para a modelagem de um sistema de monitoração de interface de subprodutos de petróleo em polidutos usando a atenuação da radiação gama / William Luna Salgado. -- Rio de Janeiro: CNEN/IEN, 2018

xiii, 83f. il ; 31 cm

Orientadores: Prof. Dr. Luis Eduardo Barreira Brandão

Dissertação (mestrado) - Instituto de Engenharia Nuclear, PPGIEN, 2018

1. Região de Interface. 2. Densitometria Gama. 3. Código MCNPX

“METODOLOGIA PARA A MODELAGEM DE UM SISTEMA DE MONITORAÇÃO DE  
INTERFACE DE SUBPRODUTOS DE PETRÓLEO EM POLIDUTOS USANDO A  
ATENUAÇÃO DA RADIAÇÃO GAMA”

William Luna Salgado

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 MESTRE EM CIÊNCIA E TECNOLOGIA NUCLEARES.

Aprovada por:

---

Prof. Luis Eduardo Barreira Brandão, D.Sc.

---

Prof. Ademir Xavier da Silva, D.Sc.

---

Prof. Claudio Marcio Nascimento Pereira, D.Sc.

RIO DE JANEIRO, RJ – BRASIL

FEVEREIRO DE 2018

*A Deus, por permitir que eu chegasse até o fim.  
À minha família, em especial ao meu Pai.  
E a todos aqueles que também acreditaram  
Verdadeiramente.*

## AGRADECIMENTOS

Gostaria de agradecer ao orientador Prof. Dr. Luis Eduardo Barreira Brandão que guiou este trabalho com dedicação e compreensão desde o período de aquisição de conhecimentos teóricos até a etapa de conclusões. Igualmente, apresento meus cumprimentos:

Ao Instituto de Engenharia Nuclear (IEN) pelo conhecimento técnico-científico adquirido para a realização deste trabalho.

Aos professores do IEN pelos conhecimentos transmitidos ao longo da minha trajetória no curso de mestrado e a todo corpo administrativo pela ajuda em todos os processos administrativos, especialmente à Dona Claudia Coelho.

Aos meus pais, César e Luciane pelo esforço realizado durante minha educação e instrução que me propiciou chegar até aqui, fato este de suma importância para toda minha família e para mim.

À minha companheira Alessandra Galvão pelo auxílio, paciência, ensinamentos, compreensão e muito carinho, dedicado ao longo deste trabalho.

Aos amigos feitos no IEN pela ajuda e torcida a favor, em especial, Tâmara Pórfiro, Caroline Barbosa e Eddie Puertas.

Aos amigos e torcedores: Erick Mendonça, Jonatha Nunes, Evelyn Lopes, Sylvia Fernandes, Tamires de Jesus, Carolina Corrêa, Lohrana Duarte e Virginia Silveira pelos incentivos durante todo este trabalho.

Reafirmo meus agradecimentos a todos que citei e aproveito para agradecer também aos que, por ventura, tenha deixado de citar. Dedico a vocês este trabalho, mérito da cooperação de todos.

Por último, agradeço a CNEN pela bolsa concedida cuja qual me possibilitou realizar o curso.

*“No que diz respeito ao desempenho, ao compromisso, ao esforço, à dedicação, não existe meio termo. Ou você faz uma coisa bem-feita ou não faz.”*

(Ayrton Senna)

## RESUMO

Os oleodutos são sistemas de dutos interconectados utilizados no transporte de grandes quantidades de petróleo e seus derivados, são mais econômicos, eliminam a necessidade de estocagens e, além disso, apresentam grande segurança na operação minimizando a possibilidade de perdas ou roubos. Em muitos casos, especialmente na indústria petroquímica, a mesma linha de transporte é usada para transportar mais do que um tipo de produto (poliduto), tais como: gasolina, diesel e querosene. Na operação de um poliduto existe uma sequência de produtos a serem transportados e durante a troca do produto, ainda existem frações de volume do produto anterior ocorrendo, desta forma, contaminações. A solução tradicional é descartar todo este volume, no entanto é importante identificar precisamente esta região visando reduzir os custos de reprocessamento e tratamento dos produtos descartados. Este trabalho apresenta uma metodologia para avaliar a sensibilidade da técnica de densitometria gama na identificação precisa da região de interface aperfeiçoando o transporte de subprodutos do petróleo em polidutos. O estudo considerou uma geometria composta por uma fonte de  $^{137}\text{Cs}$ , uma tubulação de acrílico medindo 8,0 cm de diâmetro e um detector de NaI(Tl) 1x1””, um posicionado diametralmente oposto a fonte de radiação para medir o feixe transmitido. Utilizando simulações computacionais por meio do método de Monte Carlo com o código MCNPX foi proposta uma geometria de medição que apresentasse a maior sensibilidade para o cálculo das frações de volume. Os dados técnicos pertinentes (dimensões e materiais) para realizar a simulação dos detectores foram baseadas em informações obtidas a partir da técnica de gamagrafia. O estudo teve uma validação teórica por meio de equações analíticas e os resultados mostram que é possível identificar a região de interface com precisão de equivalente a 1%.

Palavras-chave: Fração de volume, região de interface, densitometria gama, transportes em polidutos, código MCNPX.

## ABSTRACT

Pipelines are interconnected ducts systems used to transport large quantities of petroleum and its by-products, are more economical, eliminate the need for stocks and, in addition, present great safety in operation minimizing the possibility of loss or theft. In many cases, especially in the petrochemical industry, the same transport line is used to carry more than one type of product (poliduct), such as: gasoline, diesel and kerosene. In the operation of a poliduct there is a sequence of products to be transported and during the exchange of the product, there are still fractions of volume of the previous product thus occurring contaminations. The traditional solution is to discard all this volume; however it is important to identify precisely this region in order to reduce the costs of reprocessing and treatment of discarded products. This work presents a methodology to evaluate the sensitivity of the gamma densitometry technique in the precise identification of the interface region by optimizing the transportation of petroleum by - products into polyducts. The study considered geometry composed of a source of  $^{137}\text{Cs}$ , an acrylic tubing measuring 8.0 cm in diameter and a 1x1 "NaI (Tl) detector, a position diametrically opposed to a radiation source to measure the transmitted beam. Using computational simulations using the Monte Carlo method with the MCNPX code, measurement geometry with the highest sensitivity for the calculation of volume fractions was proposed. The pertinent technical data (dimensions and materials) to perform the simulation of the detectors were based on information obtained from the gammagraphy technique. The study had a theoretical validation through analytical equations and the results show that it is possible to identify the interface region with an accuracy of 1%.

Key words: Volume fraction, interface region, gamma de-symmetry, transport in poliducts, MCNPX code.

## LISTA DE ILUSTRAÇÕES

Figura 1: Mapa de polidutos na região sudeste com destaque para o poliduto OSBRA que liga São Paulo à Brasília.....	16
Figura 2: Esquema do transporte de três diferentes produtos em um poliduto. ....	17
Figura 3: Esquema ilustrativo das possibilidades de interação de fótons com a matéria. ....	26
Figura 4: Representação do efeito fotoelétrico. ....	27
Figura 5: Diagrama esquemático do espalhamento incoerente. ....	27
Figura 6: Probabilidade de ocorrência dos efeitos em função do número atômico do material absorvedor e da energia da radiação gama. ....	29
Figura 7: Esquema típico de detecção para um detector cintilador NaI(Tl).....	31
Figura 8: Geração de um pulso elétrico em um detector cintilador NaI(Tl) .....	33
Figura 9: Resolução típica de um detector de NaI(Tl) para um dubleto de energia para a situação da resolução ideal (alta resolução). ....	36
Figura 10: Comparação entre sinais com diferentes resoluções em energia. ....	37
Figura 11: Região de interface no poliduto. ....	38
Figura 12: Curva característica na identificação da região de interface. ....	43
Figura 13: Geometria simulada para o regime estratificado para sistema bifásico. ....	44
Figura 14: Sistema de espectrometria: a) fonte de alta tensão; b) pré-amplificador; c) amplificador; d) analisador mono canal. ....	51
Figura 15: Sistema de purificação da água. ....	52
Figura 16: Balança digital de precisão.....	52
Figura 17: Esquema da seção de teste utilizada para realização dos experimentos. ....	53
Figura 18: Dimensões e materiais do detector de NaI(Tl).....	56
Figura 19: Geometria de medida proposta.....	61
Figura 20: Aparato experimental. ....	62
Figura 21: Curva para determinar a tensão de operação do detector.....	64
Figura 22: Curva de calibração em energia. ....	65
Figura 23: Curva de eficiência obtida por modelagem matemática e validada experimentalmente.....	66
Figura 24: Curvas Resposta: a) resolução energética; b) largura à meia-altura (FWHM). ....	67
Figura 25: Comparação da forma dos espectros experimentais e simulados no código. ....	68
Figura 26: Ajuste linear da medida de densidade do óleo. ....	69
Figura 27: Influência da composição química do óleo nas simulações. ....	70
Figura 28: Influência da densidade do óleo nas simulações.....	71
Figura 29: Coeficiente de atenuação mássico para: a) água pura; b) óleo.....	72
Figura 30: DAPs obtidas considerando as frações do volume de água. ....	72

Figura 31: Registro experimental das DAPs para as situações de 0% de água (100% de óleo), 50% de água e 100% de água. ....	73
Figura 32: Curva da contagem registradas nos detectores cintiladores em função da fração de volume água/óleo para determinação da região de interface: a) intervalo entre 0% e 100% de água; b) Detalhe expandido entre 0% e 20% de água. ....	74

## LISTA DE TABELAS

Tabela 1: Dados das fontes padrões de radiação. ....	51
Tabela 2: Características do óleo. ....	51
Tabela 3: Composição química em fração mássica para os óleos estudados. ....	59
Tabela 4: Valores para os coeficientes do ajuste da Equação 29. ....	67
Tabela 5: Valores para os coeficientes do ajuste da Equação 25. ....	67
Tabela 6: Comparação dos resultados obtidos através da solução analítica e do código MCNPX. ....	73

## LISTA DE SIGLAS E ABREVIACÕES

AMC – Analisador Multi Canal

ANP – Agencia Nacional de Petróleo

DAP – Distribuição de Altura de Pulsos

Detector NaI(Tl) – Detector de Iodeto de Sódio ativado com Tálcio

DFD – Distância Fonte-Detector

EMQ – Erro Médio Quadrático

FVF – Fração de Volume de Fluido

FVM – Fração de Volume de Material

FWHM – Largura Total à Meia Altura (*Full Width at Half Maximum*)

GEB – *Gaussian Energy Broadening*

GLP – Gás Liquefeito de Petróleo

INP – Arquivo de Entrada (*input*)

IRD – Instituto de Radioproteção e Dosimetria

MLP – *feed-forward Multilayer Perceptron*

NIST – *National Institute of Standards and Technology*

NPS – Número de Histórias (*Number of particle histories*)

QAV – Querosene de Aviação

RNA – Rede Neural Artificial

## SUMÁRIO

<b>1</b>	<b>INTRODUÇÃO</b>	15
1.1	MOTIVAÇÃO	20
1.2	REVISÃO BIBLIOGRÁFICA	20
1.3	OBJETIVO	24
<b>2</b>	<b>FUNDAMENTOS TEÓRICOS</b>	25
2.1	FUNDAMENTOS DA RADIAÇÃO	25
2.1.1	Interação da radiação eletromagnética com a matéria	25
2.1.2	Atenuação de radiação gama e coeficiente de atenuação	29
2.1.3	Detecção de radiação ionizante	30
2.1.4	Detectores cintiladores de NaI(Tl)	32
2.2	TRANSPORTE DE PRODUTOS EM POLIDUTOS	37
2.3	MODELO DE DIFUSÃO CONSIDERANDO A DENSIDADE	40
2.4	FRAÇÃO DE VOLUME NAS INTERFACES	43
2.5	O MÉTODO DE MONTE CARLO	46
2.5.1	O código MCNPX	47
<b>3</b>	<b>MATERIAIS E MÉTODOS</b>	50
3.1	MATERIAIS	50
3.2	MÉTODOS	53
3.2.1	Características do detector NaI(Tl)	53
3.2.2	Modelagem do detector NaI(Tl)	56
3.2.3	Cálculo das características do óleo	58
3.2.4	Geometria de medida e cálculo de frações de volume	60
3.2.5	Medição das frações de volume	62
<b>4</b>	<b>RESULTADOS</b>	64
4.1	CARACTERÍSTICAS DO DETECTOR NaI(Tl)	64
4.2	CARACTERÍSTICAS DOS MATERIAIS	68
4.3	VALIDAÇÃO DA GEOMETRIA PROPOSTA	72
<b>5</b>	<b>CONCLUSÃO</b>	76
	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	77
	APÊNDICE A	82

# 1 INTRODUÇÃO

A invenção dos motores à 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 como uma das mais importantes atividades industriais, a de processamento de petróleo e uso de seus derivados. Motivado por grande interesse econômico e associado com a necessidade do desenvolvimento de novos produtos e processos fabris, o estímulo a novas pesquisas utilizando diferentes tecnologias foi e tem sido muito estimulado pela indústria de prospecção de óleo e petroquímica.

O petróleo e seus derivados são matérias primas essenciais para várias atividades industriais, devido à grande demanda desses produtos, sua extração, refino e distribuição são atividades de grande importância para a economia de um país. As companhias devem transportar estes produtos das refinarias até os centros de distribuição, devido à crescente necessidade do transporte destas commodities, dispositivos que sejam compactos e eficientes para tal controle são extremamente úteis e, este fato tem motivado intensa pesquisa objetivando criar medidores que forneçam resultados precisos para cada uma das fases presentes no meio. Para a indústria de prospecção e produção de petróleo é evidente a necessidade de dispositivos que possibilitam a avaliação correta do fluxo no interior dos dutos e as mais diferentes tecnologias são utilizadas nos dispositivos existentes no mercado, mas a necessidade crescente de novos métodos que permitam a avaliação em tempo real dos importantes parâmetros, tais como: vazão, regime de fluxo e fração de volume, no transporte dos diferentes produtos (fluidos) abriu um campo promissor para a associação das técnicas nucleares não invasivas.

O transporte de grandes quantidades de produtos vem sendo realizado por meio de bateladas<sup>1</sup> em um sistema de dutos interconectados, tais como oleodutos e gasodutos, definindo-se assim uma linha de transporte (dutovia) de produtos para longas distâncias. Os oleodutos são o meio mais eficiente para a distribuição de petróleo e seus derivados, tais como: gasolina, diesel, querosene. As dutovias são mais econômicas para transporte de grandes volumes, especialmente devido à sua imensa eficiência e redução de custos de transporte, elimina a

---

<sup>1</sup>O termo *batelada* é usado na indústria para designar uma determinada quantidade de um produto.

necessidade de estocagens e apresenta grande segurança na operação, minimizando a possibilidade de perdas ou roubos de produtos (SOUZA, 2015; CAFARO & CERDÁ, 2007). Dutos vias comumente utilizadas na indústria transportam apenas um produto, como por exemplo, os dutos que ligam as plataformas de exploração *offshore* à costa. O transporte do produto através do duto é realizado por pressão sobre o produto a ser transportado que é o caso dos produtos derivados de petróleo (gasolina, diesel, etanol, óleo combustível, gás liquefeito de petróleo, querosene e nafta). Em muitos casos, especialmente na indústria petroquímica, o mesmo princípio de linha de transporte é usado para transportar mais do que um tipo de produto (poliduto).

Existem muitos polidutos instalados no Brasil, um que se destaca é localizado na região sudeste é o poliduto denominado São Paulo – Brasília (OSBRA), como ilustrado na Figura 1, com 964 km de extensão.



Figura 1: Mapa de polidutos na região sudeste com destaque para o poliduto OSBRA que liga São Paulo à Brasília.

(<http://www.anp.gov.br/wwwanp/armazenamento-e-movimentacao-de-produtos-liquidos/oleodutos-de-transporte-e-transferencia>, 27/01/2018)

Suas principais instalações são compostas por terminais de armazenamento de combustíveis para distribuição (bases de carregamento de caminhões-tanque e ramais locais de distribuição) e estações de bombeamento (KOTCHETKOFF, 2009). O poliduto transporta: óleo diesel, gasolina, gás liquefeito de petróleo (GLP) e querosene de aviação (QAV). Possui capacidade máxima mensal de  $920.793 \text{ m}^3$  e transportou  $7.293.039 \text{ m}^3$  em 2016 (TRANSPETRO, 2018).

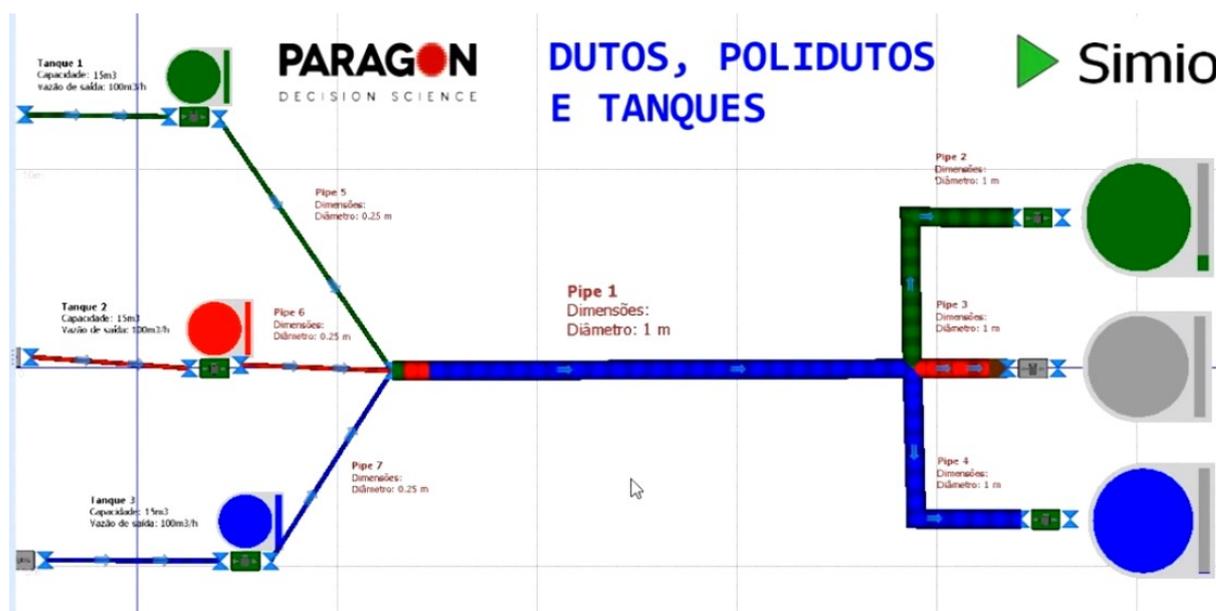


Figura 2: Esquema do transporte de três diferentes produtos em um poliduto. (<https://www.youtube.com/watch?v=DeyUqjzsOg&t=43s>, 27/01/2018)

Durante a operação de um poliduto é necessário decidir quais produtos devem ser movimentados em um determinado momento, ou seja, de como os produtos são seqüenciados dentro do poliduto. Em casos como este, a operação e gerenciamento da linha de transporte deve considerar variáveis, tais como: tipo de regime de fluxo, a disponibilidade do produto e especialmente as características físico-químicas dos produtos envolvidos. Apesar disto, em polidutos, durante a mudança do produto bombeado<sup>2</sup>, dois produtos distintos estão em contato diretamente um com o outro dentro do duto e contaminações entre os produtos são inevitáveis, este processo define uma região no fluido chamado de interface, a Figura 2 ilustra o transporte de três diferentes produtos pelo duto e seus respectivos tanques de coleta. Os produtos que se misturaram devem ser direcionados para tanques especiais para reprocessamento em uma refinaria ou tratados em uma unidade de separação (JONES &

<sup>2</sup> Uma operação de bombeamento consiste na ativação de uma determinada rota, definindo-se vazão, qual o produto é inserido no duto e o intervalo de tempo da operação e está sempre associada a um produto na área de origem, mas pode ter como consequência o recebimento de mais de um produto na área de destino.

PADDOCK, 1982) causando grandes custos associados ao seu tratamento (TECHO & HOLBROOK, 1974). As perdas causadas pela interface são reconhecidamente mais destacadas para alguns pares de produtos, não sendo permitida a colocação dos mesmos em contato direto no duto durante a operação da rede. Atualmente o procedimento adotado é o descarte, para tanques de reprocessamento, de todo o volume referente à mistura dos dois produtos, região de interface.

Embora sensores convencionais possam ser utilizados para determinar densidades de fluidos, eles são caros devido aos altos custos de instalação e manutenção, pois precisam ficar em contato físico com o fluido, o qual pode ser abrasivo/corrosivo, causando danos aos sensores que necessitam serem trocados periodicamente. Esta situação mostra a necessidade de desenvolver metodologias para identificação precisa da região de interface dos fluidos para aperfeiçoar o transporte em polidutos reduzindo os custos de reprocessamento e tratamento dos produtos descartados, assim como, de economia de energia elétrica que é utilizada para operação das bombas.

Visando contornar tais dificuldades, as técnicas nucleares como a densitometria gama pode fornecer medidas confiáveis da flutuação de densidade, melhorando a precisão e reduzindo custos. A densitometria gama tem sido aplicada de forma satisfatória em muitas áreas, tais como: química, mineração e indústria de petróleo, como nas medidas de fluxo (MI, ISHII, & TSOUKALAS, 1998; SALGADO et al., 2009; SALGADO et al., 2010), na monitoração de aplicações de produtos e derivados de petróleo (KHORSANDI & FEGHHI, 2011), nos cálculos de frações de volume (ABOUELWafa & KENDALL, 1980) e na predição de densidades de fluidos (ABDULRAHMAN & SHOKIR, 2011). Esta técnica permite realizar medidas, em tempo real, da densidade de fluidos sem modificar as condições operacionais da planta industrial e os procedimentos de análise não são invasivos. Estas vantagens tornam estes medidores de densidade muito importante na indústria e, por esta razão, tem sido investigados e aperfeiçoados por muitos pesquisadores.

A técnica baseia-se na incidência de raios gama quem após interagir com o sistema duto-fluido são registrados por detectores de radiação NaI (TI) adequadamente posicionados, sendo possível determinar, por exemplo: a densidade do fluido. Usando a densitometria gama, a região de interface que representa a presença dos dois produtos no interior do duto com

frações volume distintos será estimada por meio das suas densidades, ou seja, predizer o grau de pureza do produto a ser transportado.

A análise por medidas de transmissão usando raios gama pode ser obtida por meio de equações analíticas ou alcançada por comparação dos sinais registrados pelo detector com um conteúdo de uma tabela de calibração de densidades. De qualquer forma, esta tabela pode ser influenciada por parâmetros importantes que dependem das condições de medidas, tais como: diâmetro do duto, espessura das paredes do duto, temperatura e pressão, e até mesmo erros causados no próprio procedimento de calibração (MAUCEC & DENIJS, 2009). Então, é importante investigar o impacto destes parâmetros na medida de densidade.

O grupo do Laboratório de Radiotraçadores do Instituto de Engenharia Nuclear vem desenvolvendo metodologias para predição de densidade de produtos e derivados do petróleo em aplicações de monitoramento. A aproximação baseia-se no reconhecimento dos “espectros” por meio de Redes Neurais Artificiais (RNA). Os resultados mostraram que a aproximação proposta pode ser satisfatoriamente aplicada para predição de densidades para estes tipos de fluidos, no entanto, há necessidade de melhorias e validações (SALGADO et al., 2016).

No deslocamento dos fluidos, fica evidente a presença de flutuações, registradas pelo conjunto fonte/detector, nas características físicas do processo de transporte. Esta condição permite a investigação de similaridades dos sinais e o levantamento da região de interface por meio da densidade. O código computacional MCNPX (PELOWITZ, 2005) baseado no método de Monte Carlo (MC<sup>3</sup>) é usado para estudar diversas geometrias com feixe transmitido visando obter um modelo mais adequado que possa apresentar maior sensibilidade no cálculo das frações de volume. As simulações matemáticas usando este código consideram as interações da radiação com todo o material envolvido tanto do duto como o produto transportado, assim como o próprio detector de radiação.

---

<sup>3</sup>O MC é uma ferramenta de simulação largamente usada para o transporte de radiação, principalmente onde medidas físicas são impraticáveis ou inconvenientes.

## 1.1 MOTIVAÇÃO

Em todo o mundo, diversos trabalhos ilustram o sucesso da aplicação de técnicas nucleares utilizadas na indústria na avaliação em tempo de residência de moinhos, medidas da eficiência de unidades de floculação e nas medidas de vazão e de densidade em polidutos de transporte de diferentes produtos. A grande vantagem desta técnica é a possibilidade de serem efetuadas análises em tempo real e sem a necessidade de interrupção da operação normal da instalação (técnicas não invasivas) apresentando confiabilidade nos resultados. Além disto, a alta sensibilidade de detecção dos detectores permite o uso de fontes radioativas seladas de modo a minimizar o potencial de risco radiológico para a saúde dos trabalhadores. O sistema proposto não provoca dano ou contaminação radiológica-química ao equipamento sendo considerada segura do ponto de vista ambiental.

Diante disso, a disponibilidade de um equipamento não invasivo capaz de identificar precisamente a região de interface no transporte de produtos em polidutos possibilita o efetivo controle da sua localização é de grande interesse para a indústria de petróleo. Desta forma é possível determinar o instante em que um produto é considerado puro, ou seja, sem mistura, contribuindo para preservar a integridade dos produtos transportados e reduzir perdas por reprocessamento e tratamento dos produtos descartados. Isto teria um impacto econômico considerável por:

- i) Manter a qualidade de todos os produtos transportados;
- ii) Aprimorar a produtividade;
- iii) Oferecer flexibilidade e confiabilidade.

## 1.2 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

Há uma série de modelos disponíveis na literatura que visam aproximar a extensão da região de interface. No entanto, esses modelos variam em suas previsões e têm um alcance muito restrito, pois a maioria das equações considera alguns parâmetros e negligenciam outros que influenciam no crescimento da região de interface. O fenômeno da dispersão axial

longitudinal<sup>4</sup>, sugerido amplamente como o fenômeno governante do processo de mistura dos produtos no transporte em polidutos, descreve a interação de um meio contaminante em outro meio, devido aos efeitos de mistura que ocorrem quando dois meios estão em contato direto em um poliduto.

Fowler e Brown (1943), Birge (1947) e Smith e Sulze (1948) realizaram as primeiras investigações experimentais sobre a região de interface em transporte de petróleo e derivados. Eles observaram que esta região é função de parâmetros do sistema, tais como: volume, propriedades físico-químicas (densidade e viscosidade) e velocidade do fluido (número de Reynolds). Observações do escoamento permitiram concluir que o comprimento da região era diretamente proporcional ao comprimento do duto e inversamente proporcional ao número de Reynolds. No entanto, tais informações eram úteis apenas para os sistemas em que foram realizadas tais observações.

Danckwerts (1953) realizou estudos teóricos sobre a dispersão longitudinal e sugeriu a aplicação de funções de distribuição de tempo de residência para estimar o escoamento de fluidos em dutos. Afirmava que no modelo de escoamento de pistão perfeito o perfil de velocidades e conseqüentemente a dinâmica do escoamento sofriam a ação do efeito de borda nas paredes do duto que afetaria a dispersão longitudinal. Nesse modelo o perfil de concentração do contaminante tem uma forma parabólica devido ao gradiente de velocidade do escoamento, mas a difusão radial presente deforma esse perfil parabólico.

Taylor (1954) sugeriu, por meio de um balanço energético de um escoamento turbulento, que o perfil de velocidade desempenha um papel significativo na dispersão de um meio no outro na direção axial e propôs um modelo semelhante à equação de difusão convencional para determinar o comprimento da região de interface em função da velocidade do fluido e do coeficiente de correlação da flutuação da velocidade. No entanto, a estimativa do coeficiente de correlação da velocidade dificulta sua aplicação.

Levenspiel e Smith (1957) sugeriram um modelo utilizando a técnica de traçadores e a medição das funções distribuição do tempo de residência propôs um modelo que considera o número de Peclet para o cálculo do coeficiente de dispersão longitudinal de um meio no

---

<sup>4</sup> O termo dispersão axial refere-se à contaminação longitudinal devido aos efeitos convectivos e difusivos, predominantes no escoamento de bateladas de produtos em polidutos.

outro. O modelo considera os coeficientes de dispersão como uniformes em toda a área da seção transversal do fluxo e que tal suposição só será válida em números elevados de Reynolds, isto é, a altas velocidades dos fluidos. Quando se considera a definição clara da extensão da região de interface entre dois meios em um poliduto o modelo matemático desse escoamento deve relacionar as características físicas do sistema (comprimento e diâmetro do duto, rugosidade das paredes) bem como do escoamento (propriedades físico/químicas do fluido, temperatura e pressão interna, volume transferido) para descrever o fenômeno de mistura entre os meios.

Austin e Paulfrey (1964) publicaram um dos principais avanços na investigação da dispersão axial. Eles reuniram dados experimentais disponíveis na literatura e identificaram, para um escoamento turbulento, um processo de estratificação dentro do duto que origina curvas de dispersão distintas cujo coeficiente de dispersão é dependente do número de Reynolds do escoamento. Os autores propuseram determinar o coeficiente de dispersão axial levando em consideração o fato de a região turbulenta ser formada de três sub regiões: subcamada laminar, camada amortecedora e núcleo turbulento, cada um com um perfil dependente do número de Reynolds.

Abouelwafa e Kendall (1980) descreveram uma metodologia utilizando a técnica de atenuação de raios gama para medir, de maneira estática, a fração de volume de misturas trifásicas de ar, água e óleo. O método desenvolvido é uma forma precisa e simples de determinar as frações de volume em qualquer circunstância em dutos multifásicos.

Chikwendu e Ojiakor (1985) descreveram o escoamento em um duto como sendo composto por duas camadas distintas com cada uma possuindo diferentes características de difusão e perfis de velocidade. A camada interna apresenta uma velocidade de escoamento mais rápida e uma subcamada externa mais lenta, definindo um coeficiente de dispersão efetivo. Em analogia, a teoria proposta por Danckwerts, a função de distribuição de tempo de residência e obtida a partir das soluções separadas para as duas camadas, ou seja, as soluções são independentes de cada camada e são sobrepostas para dar a distribuição efetiva esperada no sistema.

Rebgetz, Watt e Zastawny (1991) mostraram numericamente que boa precisão de medida pode ser obtida para a medição frações de volume de gás, água e óleo em misturas homogêneas. Foi utilizada uma geometria com feixe unidirecional (*pencil beam*) usando a

técnica de atenuação de radiação gama com duas energias (59,5 keV e 356 keV). Os autores descreveram ainda, que essa técnica tem potencial para se tornar mais abrangente e desta forma determinar em tempo real as frações de volume de cada componente.

Salgado et al. (2009) utilizaram o código computacional MCNPX para simular frações de volume de gás, água e óleo em regime de fluxo anular, estratificado e homogêneo. Desenvolveram redes neurais artificiais para analisar as DAPs obtidas por três detectores NaI(Tl) e fontes de radiação gama. Utilizaram uma geometria com feixe largo (*narrow beam*). Para tornar o cálculo das frações de volume menos dependente do regime de fluxo utilizaram feixes de transmissão e espalhamento.

Khorsandi e Fegghi (2011) apresentaram um novo método baseado em medidas de feixes transmitido e espalhado e duas energias para determinar a densidade de derivados de petróleo. Os resultados experimentais foram comparados com dados simulados por meio do código MCNP apresentado boa concordância, erro relativo máximo menor que 2%. Concluíram que o método de transmissão é 90% mais sensível do que o de espalhamento para variações da densidade do fluido. Em condições práticas, os derivados de petróleo podem ser diferenciados um dos outros com precisão de  $0,1 \text{ g.cm}^{-3}$ .

Patrachari (2012) realizou investigações sobre fenômeno da dispersão axial no comprimento da interface, considerando a dependência da espessura de uma camada próxima da parede do duto. O pesquisador percebeu que quando o fluido flui em uma tubulação, uma subcamada laminar se forma perto da parede da tubulação, o que contribui para o aumento da dispersão axial, levando a um aumento no comprimento região da interface. A espessura da camada quase estacionária depende da viscosidade e da densidade dos fluidos envolvidos.

El Abd (2014) comparou a determinação das frações de volume por meio de medições de raios gama de transmissão e de espalhamento utilizando uma seção de testes com um tubo cilíndrico, uma fonte pontual de Cs-137 de 10  $\mu\text{Ci}$  e um detector de NaI(Tl). Foi simulado o regime estratificado com uma composição bifásica água-ar. A determinação das frações de volume utilizando medições de espalhamento e de transmissão apresentou uma boa concordância com as frações de volume reais.

Salgado et al. (2016) investigaram a resposta de um sistema de fluxo monofásico para prever a densidade de derivados de petróleo. A aproximação se baseou no reconhecimento das DAPs por meio de RNAs treinadas por meio de dados simulados obtidos pelo código MCNPX. Os resultados apresentaram erro relativo médio de 0,96% demonstrando boa concordância entre os valores reais e os obtidos pela RNA. Foi demonstrado, também, que o diâmetro externo do duto não influenciou nos resultados.

### 1.3 OBJETIVO

Desenvolver uma metodologia para predição precisa de densidades de fluidos baseada no espalhamento gama visando identificar as regiões de interface dos fluidos para aperfeiçoar o transporte em polidutos.

Para realizar o objetivo proposto, fizeram-se necessário a execução as seguintes etapas:

- i) Estudar a geometria de medição (fonte-detector) usando o código MCNPX.
- ii) Determinar as características dos fluidos utilizados.
- iii) Desenvolver modelo matemático para definir a região de interface de forma a *minimizar* o volume contaminado.

## 2 FUNDAMENTOS TEÓRICOS

Neste capítulo serão descritos os conhecimentos teóricos necessários para uma melhor compreensão da metodologia proposta neste trabalho. Abordagens sobre os seguintes assuntos serão tratados: radiação gama, transporte de produtos em polidutos e modelagem matemática utilizando o método de Monte Carlo.

### 2.1 FUNDAMENTOS DA RADIAÇÃO

No contexto dos medidores de fluxo bifásicos baseados na atenuação de raios gama, torna-se necessário para melhor entendimento o estudo da interação da radiação gama com os meios em análise. De forma geral, estes instrumentos consistem de fonte(s) de radiação e detector(es) de NaI(Tl) posicionado(s) do lado externo ao tubo que contém os fluidos. A radiação gama pode interagir com a matéria. Nas seções seguintes serão apresentados tópicos definindo melhor como este processo ocorre.

#### 2.1.1 Interação da radiação eletromagnética com a matéria

Quando a radiação eletromagnética ionizante (1 keV à 10 MeV) interage com a matéria podem ocorrer três processos básicos, como mostrado na *Figura 3*.

- **Espalhamento do fóton:** quando o fóton espalhado tem uma energia igual ou inferior à energia do fóton incidente, no entanto o fóton espalhado possui direção diferente do fóton incidente;
- **Transmissão do fóton:** quando não ocorre nenhum tipo de interação e a energia do fóton transmitido é igual a do fóton incidente.
- **Absorção total do fóton:** quando ocorre a transferência de toda a energia do fóton incidente para o meio alvo;

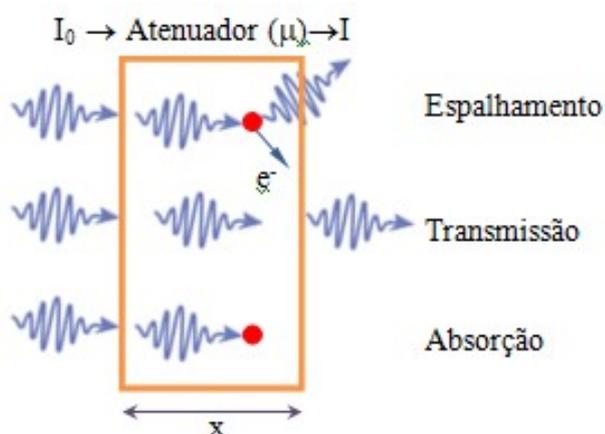


Figura 3: Esquema ilustrativo das possibilidades de interação de fótons com a matéria. (SALGADO, 2017)

Os principais processos de interação do fóton com a matéria são: o Efeito Fotoelétrico, os Espalhamentos Incoerente e Coerente e a Produção de Pares. A probabilidade relativa de ocorrência de cada um destes eventos está relacionada com a energia do fóton incidente e com o número atômico do alvo.

### i) Efeito Fotoelétrico

É o processo de interação em que a energia de um fóton é totalmente absorvida por um único elétron orbital (em geral da camada K) que é ejetado com uma energia cinética ( $E_c$ ) bem definida, conforme *Equação 1*.

$$E_c = h\nu - B_e$$

Equação 1

Onde:

$h$  – constante de Planck (keV);

$\nu$  – frequência da radiação ( $s^{-1}$ );

$B_e$  – energia de ligação do elétron orbital (keV).

Por meio das leis de conservação de momento e energia e sabendo que a massa nuclear é grande, a energia de recuo do átomo é desprezível, desta forma conclui-se que a energia cinética do elétron ejetado é igual à energia incidente menos a energia de ligação do elétron orbital.

Este efeito possui maior probabilidade de ocorrência em baixas energias (energia de ligação dos elétrons) e em alvos com elevado número atômico. No entanto, a ejeção do elétron de uma determinada camada só ocorre se a energia do fóton incidente for superior a energia de ligação deste elétron com a camada, neste caso o elétron fica excitado e a vacância deixada por ele é preenchida por uma reorganização do orbital eletrônico, seguido da emissão de um raio X característico. O efeito fotoelétrico é ilustrado na *Figura 4*.

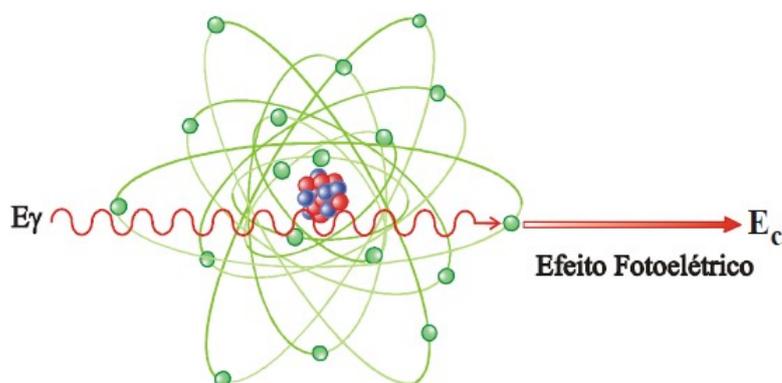


Figura 4: Representação do efeito fotoelétrico.  
(TAUHATA, 2003)

## ii) Espalhamento Incoerente ou Efeito Compton

É o processo de interação em que um fóton é espalhado por um elétron que recebe somente uma fração de sua energia, nesta interação o fóton incidente após ser espalhado continua seu “caminho” no material em outra direção e com energia inferior, conforme ilustrado na *Figura 5*.

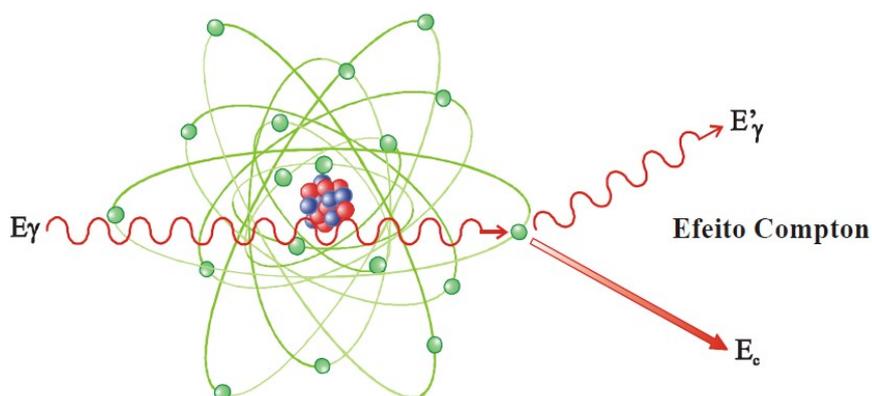


Figura 5: Diagrama esquemático do espalhamento incoerente.  
(TAUHATA, 2003)

A partir das leis de conservação do momento e de energia, a energia do fóton espalhado ( $E'_c$ ) depende da energia do fóton incidente e do ângulo de espalhamento em relação à direção do fóton incidente, conforme *Equação 2*.

$$E'_c = \frac{h\nu}{1 + \frac{h\nu}{m_0c^2} (1 - \cos\theta)}$$

Equação 2

Onde:

$h\nu$  – energia do fóton incidente (keV);

$m_0c^2$  – energia de repouso do elétron (keV);

$\theta$  – ângulo de espalhamento.

A probabilidade de ocorrência deste fenômeno é diretamente proporcional à energia do fóton e inversamente ao número atômico do alvo. 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.

### iii) **Espalhamento Coerente ou Efeito Rayleigh**

Quando há interações de fótons de baixa energia com elétrons muito ligados, pode ocorrer uma interação mudando somente sua direção, o que é denominado Espalhamento Coerente ou Efeito Rayleigh. É o processo de interação correspondente à absorção e re-emissão da radiação pelo átomo, ou seja, a energia do fóton espalhado é igual à energia do fóton incidente, mudando somente sua direção.

Este efeito tem maior probabilidade de ocorrência em baixas energias dos fótons incidentes e para alvo com elevado número atômico. O efeito Rayleigh pode ser considerado um caso particular do Espalhamento Incoerente.

#### iv) Produção de Pares

Como a energia mínima dos fótons incidentes para a produção de pares é de 1022 keV e a faixa de energia utilizada neste trabalho é bem abaixo deste valor, o efeito de produção de pares não será abordado

A distribuição de probabilidades destes efeitos para diferentes elementos em função da energia do fóton incidente é mostrada na *Figura 6*. 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.

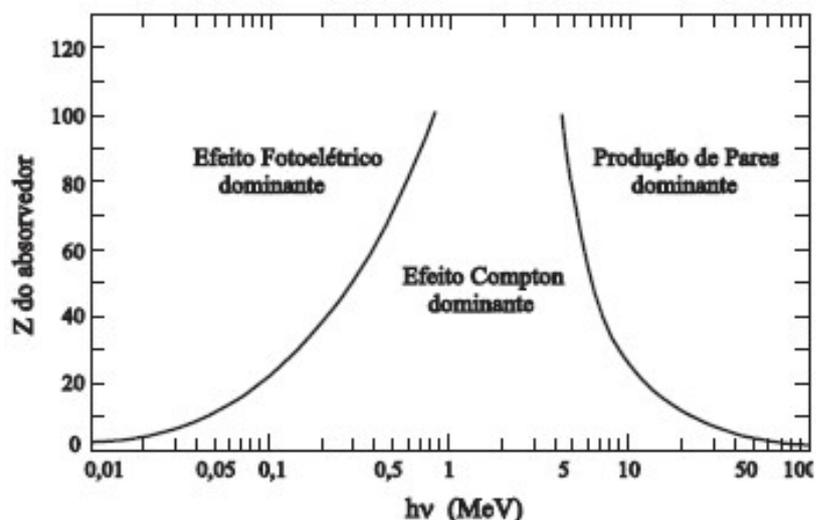


Figura 6: Probabilidade de ocorrência dos efeitos em função do número atômico do material absorvedor e da energia da radiação gama. (TAUHATA, 2013)

#### 2.1.2 Atenuação de radiação gama e coeficiente de atenuação

Quando um feixe de raios gama incide sobre um determinado material com uma determinada espessura, parte do feixe é espalhada, parte é absorvida, pelos processos descritos no item 2.1.1, e parte do feixe atravessa todo o material sem interagir (feixe transmitido). A atenuação de raios gama monoenergéticos pode ser calculada por meio da lei de *Beer-Lambert*, dada pela *Equação 3* (LEIPUNSKI, NOVOZHILOV, & SAKHAROV, 1965).

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

Equação 3

Onde:

$I$  – intensidade transmitida de raios gama (fótons.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>);

$I_0$  – intensidade incidente de raios gama (fótons.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>);

$x$  – espessura do meio alvo (cm);

$\mu$  – coeficiente de atenuação linear (cm<sup>-1</sup>).

O coeficiente de atenuação linear é a probabilidade do feixe “sofrer” atenuação devida a eventos de espalhamento, absorção ou formação de pares. Seu valor depende do meio absorvedor e é função da energia dos raios gama.

Vale ressaltar que os valores dos coeficientes de atenuação linear são normalmente utilizados como coeficiente de atenuação mássico, pois independe do estado físico do material e é definido pela razão do coeficiente de atenuação linear pela densidade do material, conforme *Equação 4*.

$$\mu_m = \frac{\mu}{\rho}$$

Equação 4

Onde:

$\mu$  – coeficiente de atenuação linear (cm<sup>-1</sup>);

$\rho$  – densidade do material (g.cm<sup>-3</sup>).

### 2.1.3 Detecção de radiação ionizante

Detectores de radiação são dispositivos capazes de indicar e registrar sua presença. São constituídos basicamente por um material sensível à radiação e um sistema capaz de transformar os efeitos da radiação gerados em seu interior numa grandeza possível de ser registrada e medida.

O mecanismo fundamental de funcionamento de todos os detectores de radiação é a dissipação de energia pela partícula incidente no detector. Quando há interação de um feixe de radiação com um detector, dependendo do processo de interação que ocorra (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., dependendo do tipo do detector. 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 informação primária obtida é uma distribuição da energia depositada e, com isso, após um tratamento, é possível obter informações do espectro de energia. Para efetuar a espectrometria, o sinal proveniente do detector necessita ser processado. Um esboço representativo de um sistema de medição para os detectores cintiladores de Na(Tl) é ilustrado na *Figura 7*.

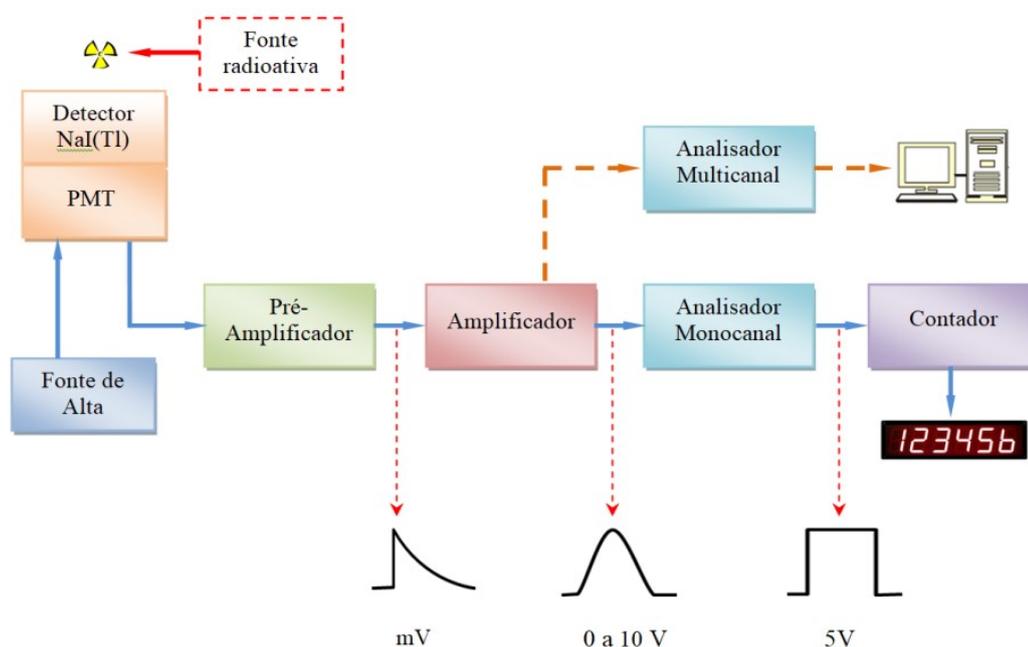


Figura 7: Esquema típico de detecção para um detector cintilador NaI(Tl).  
(SALGADO, 2017)

Os principais módulos que compõe o sistema de espectrometria são:

- 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 modelar a forma do pico de sinal e 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.
- iv) **Um analisador monocanal:** capaz de gerar um sinal lógico padrão, cada vez que o sinal gerado pelo amplificador estiver entre determinados valores (modo diferencial ou janela) ou acima de um valor mínimo (modo integral).

## 2.1.4 Detectores cintiladores de NaI(Tl)

Materiais cintiladores são aqueles em que o tempo de vida do estado excitado é inferior a  $10^{-9}$  segundos e o processo desexcitação ocorre por meio da emissão de um fóton de luz visível (cintilação). A radiação gama ao interagir com um detector cintilador, como o iodeto de sódio - NaI(Tl), produz cintilações com uma intensidade luminosa muito elevada, quando comparada com outros materiais orgânicos. Para aumentar a probabilidade de emissão de fótons de cintilação e reduzir os efeitos de auto-absorção de luz no cristal, são introduzidas impurezas em pequenas quantidades, que são chamadas de ativadores, neste caso o tálio (Tl) (TSOULFANIDIS, 1995).

A quantidade de luz produzida em um cintilador é muito pequena, necessitando ser transformada em um pulso elétrico e amplificada de modo a permitir que sua intensidade possa ser registrada. Para transformar as cintilações produzidas no cristal em sinal elétrico, é

utilizado um tubo fotomultiplicador constituído de um fotocátodo que converte fótons de luz visível em elétrons, uma cascata de dinodos que focalizam, aceleram e multiplica os elétrons originais produzindo um pulso de corrente com intensidade suficiente para ser coletado pelo ânodo e processado por um sistema de espectrometria. Um esquema da geração de um pulso elétrico a partir da interação da radiação gama num detector cintilador NaI(Tl) pode ser visualizado na *Figura 8*.

O número de elétrons convertidos é proporcional à energia da radiação incidente no cristal e é razoavelmente linear para uma faixa significativa de energias de raios gama. Isto permite relacionar a amplitude do sinal de corrente à energia absorvida pelo cristal.

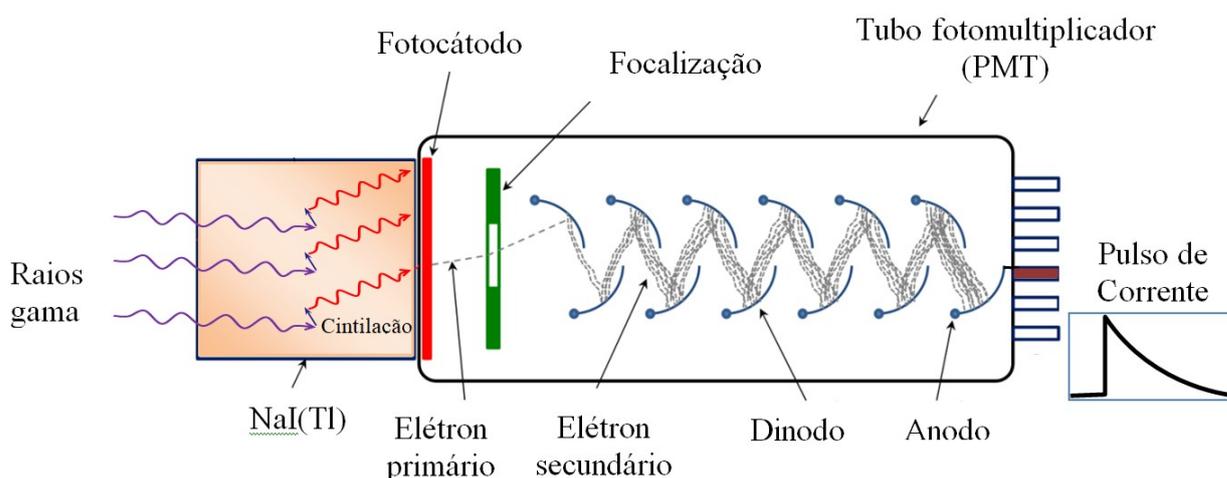


Figura 8: Geração de um pulso elétrico em um detector cintilador NaI(Tl) (<https://commons.wikimedia.org/wiki/File:PhotoMultiplierTubeAndScintillator.svg>, 05/01/2018).

Os detectores cintiladores NaI(Tl) apresentam como principais vantagens:

- Alta eficiência de contagem, devido a sua densidade ( $3,67 \text{ g.cm}^{-3}$ ) e seu elevado número atômico ( $Z = 53$ );
- Facilidade de usinagem, possibilitando a obtenção de cristais grandes e formatos específicos;
- Não necessita de um sistema de refrigeração para operação, por isso possui baixo custo de operação.

As principais propriedades de um detector de radiação são:

### i) **Eficiência de detecção**

Nem todas as partículas emitidas por uma fonte radioativa atingem o volume sensível do detector, por isso é necessário relacionar o número de impulsos registrados pelo detector com o número de impulsos incidentes no detector. A eficiência de detecção é função das características do sistema de contagem (fonte / detector) e depende da composição do cristal cintilador e de suas propriedades físicas (dimensões, densidade e opacidade do cristal), da geometria de medida e das características da fonte. Várias definições de eficiência são de uso comum para os detectores de raios gama:

- **Eficiência absoluta:** é a razão entre o número de sinais registrados pelo detector e o número de raios gama emitido pela fonte;
- **Eficiência intrínseca:** é a razão entre o número de sinais registrados pelo detector e o número de raios gama que incidem no detector;

As eficiências, ainda, podem-se subdividir em Total e de Fotopico, nesta somente serão considerados os pulsos relativos à absorção total da energia do fóton incidente, enquanto na primeira são considerados todos os pulsos registrados pelo detector.

Quando uma fonte de radiação é posicionada próxima a um detector, a eficiência absoluta de fotopico pode ser calculada a partir da *Equação 5*.

$$\varepsilon(E) = \frac{C}{t \cdot A \cdot P \cdot k_c}$$

Equação 5

Onde:

C – número de contagens registrado no detector na região fotoelétrica;

t – tempo de contagem (s);

A – atividade da fonte radioativa (Bq);

P – probabilidade de emissão para raios gama na energia “E”;

$k_c$  – fator geométrico.

A incerteza padrão relativa da eficiência é dada pela *Equação 6*, desconsiderando as incertezas do tempo de contagem, da probabilidade de emissão e da constante de correção de decaimento, pois são valores muito pequenos.

$$\sigma\varepsilon = \sqrt{\left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial C} \cdot \sigma C\right)^2 + \left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial A} \cdot \sigma A\right)^2 + \left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial k_c} \cdot \sigma k_c\right)^2}$$

*Equação 6*

Onde:

$\sigma C$  – incerteza associada às contagens;

$\sigma A$  – incerteza associada à atividade;

$\sigma k_c$  – incerteza associada ao fator geométrico.

Devido às grandes vantagens apresentadas por este tipo de detector e analisando os casos a serem tratados neste estudo, o detector cintilador NaI(Tl) foi escolhido para ser utilizado neste trabalho.

## ii) Resolução em Energia

A resolução energética de um detector de radiação determina o alargamento do fotopico, ou seja, avalia a capacidade do detector de discriminar duas ou mais energias bem próximas no espectro de energia, ver *Figura 9*.

Alguns fatores podem contribuir para diminuir a resolução de um detector:

- Flutuação estatística do número de cargas coletadas;
- Ruído eletrônico da eletrônica e do detector;
- Coleta incompleta de cargas e corrente de fuga.

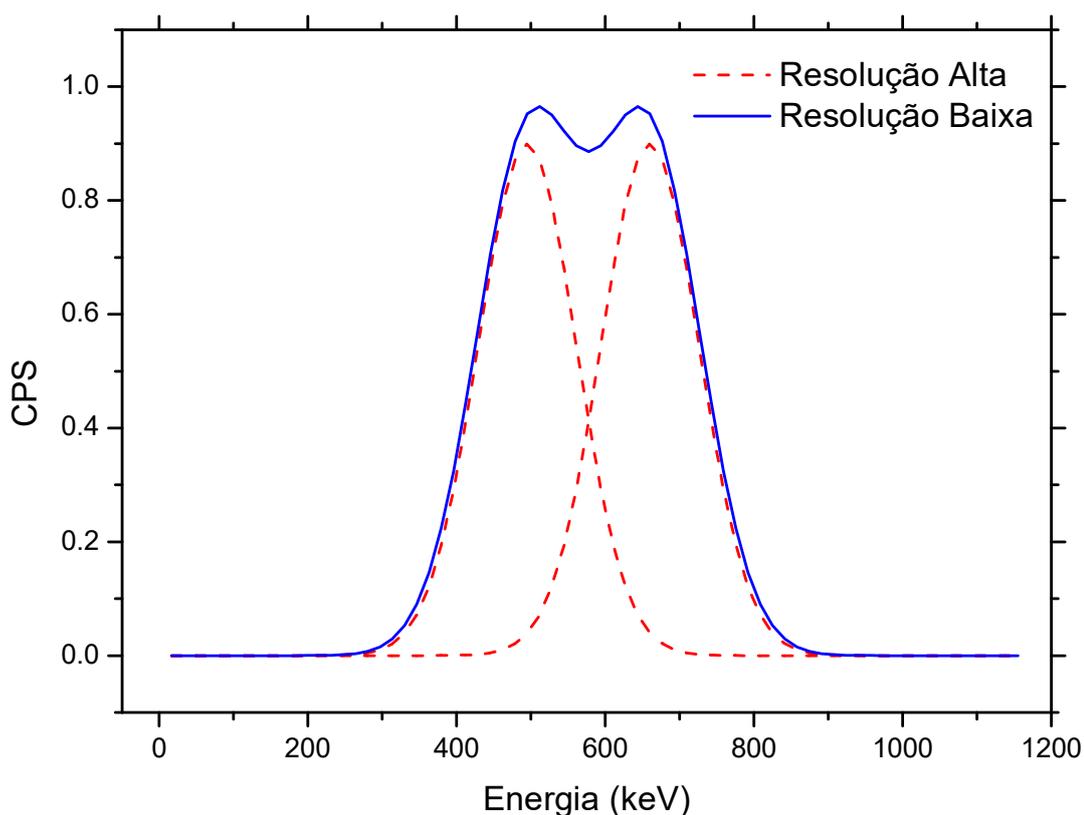


Figura 9: Resolução típica de um detector de NaI(Tl) para um duplete de energia para a situação da resolução ideal (alta resolução). (SALGADO, 2017)

Na prática, se obtém a resolução em energia de um fotopico, obtida por um detector, medindo a largura total à meia altura (*Full Width at Half Maximum* - FWHM) do pico Gaussiano para uma determinada energia, acima da linha de base de radiação de fundo (DEBERTIN & HELMER, 1988). A definição matemática para se obter a resolução é dada pela Equação 7.

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

Equação 7

Onde:

FWHM – largura à meia altura do fotopico;

$E_0$  – energia central do fotopico.

Na Figura 10, são exemplificados dois sinais obtidos por detectores com diferente resolução em energia.

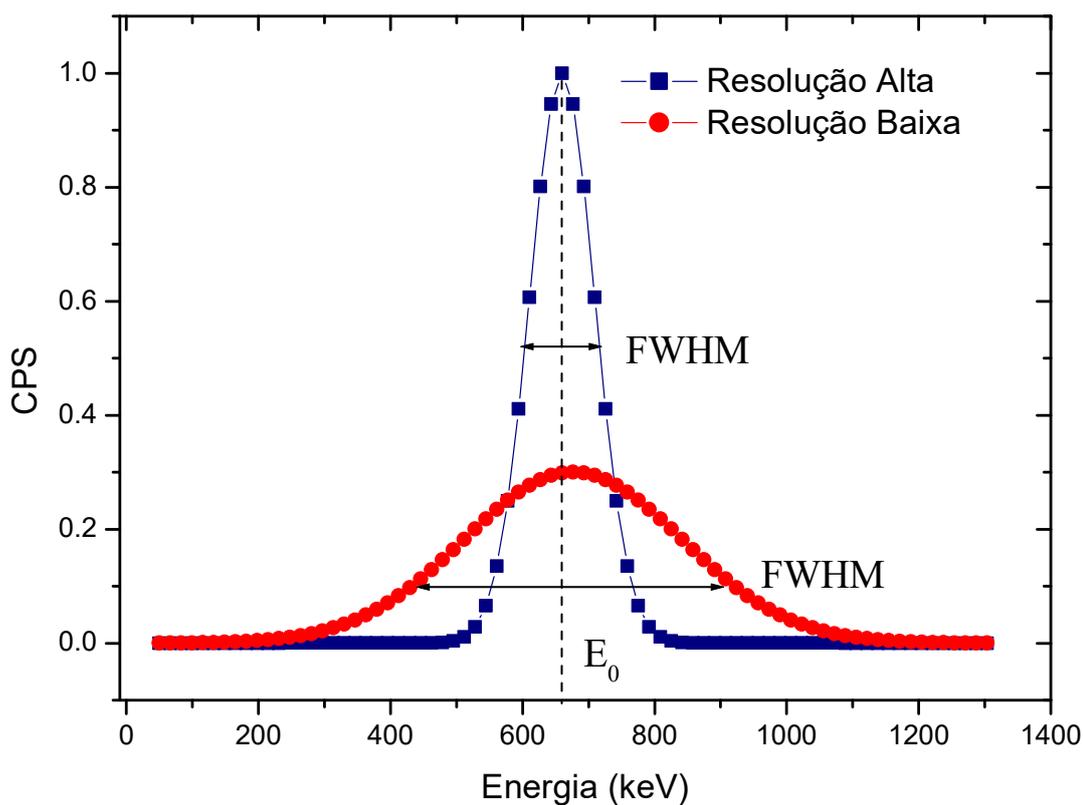


Figura 10: Comparação entre sinais com diferentes resoluções em energia.  
(SALGADO, 2017)

## 2.2 TRANSPORTE DE PRODUTOS EM POLIDUTOS

O transporte dutoviário é o modal de transporte que consiste num sistema de dutos para movimentar produtos sólidos, líquidos e gasosos, esse modal é uma das formas mais econômicas e seguras de transportar grandes volumes de material, principalmente de petróleo e seus derivados, especialmente quando comparados com os modais rodoviários e ferroviários. Dutovias que transportam mais de um produto são comuns em todo o mundo e recebem o nome de polidutos. O transporte de produtos em polidutos é uma prática bastante difundida e ocorre na forma de bateladas, que consiste no bombeamento sequencial de diferentes produtos ou de diferentes qualidades de um mesmo produto (tais como: diesel S10 e diesel S500) em contínua sucessão sem qualquer tipo de separação física, através do poliduto (GOMES, RACHID, & ARAUJO, 2002; MARTINOIA, 2016).

O transporte em bateladas oferece à indústria a possibilidade de movimentação de diversos produtos por um mesmo duto, conferindo preço e agilidade nas entregas, mas também provoca um efeito colateral que é a região de interface. A interface é definida como a região no interior do duto em que os produtos estão em contato direto um com o outro, havendo assim uma mistura entre os dois produtos que se contaminam. Na indústria petrolífera o problema da contaminação entre as bateladas tem sido uma preocupação desde o início da operação dos primeiros polidutos, devido às especificações rígidas para cada tipo de combustível como gasolina, diesel e etanol. Para diminuir custos os tamanhos das bateladas são maximizados para que a região de interface seja uma pequena percentagem do total transportado.

Na Figura 11 é apresentado um fluxograma esquemático de um poliduto que transportam os produtos A e B, assim como a região de interface que é formada entre as bateladas destes produtos. Neste esquema é possível observar que o produto A estava sendo bombeado pelo duto, e então este bombeamento é interrompido e em seguida se inicia o bombeamento do produto B, ou seja, o produto B começa a ser introduzindo no duto. Uma região de interface dos dois produtos é formada e nos terminais são utilizados três tanques para separar os produtos A e B e o produto gerado a partir da mistura.

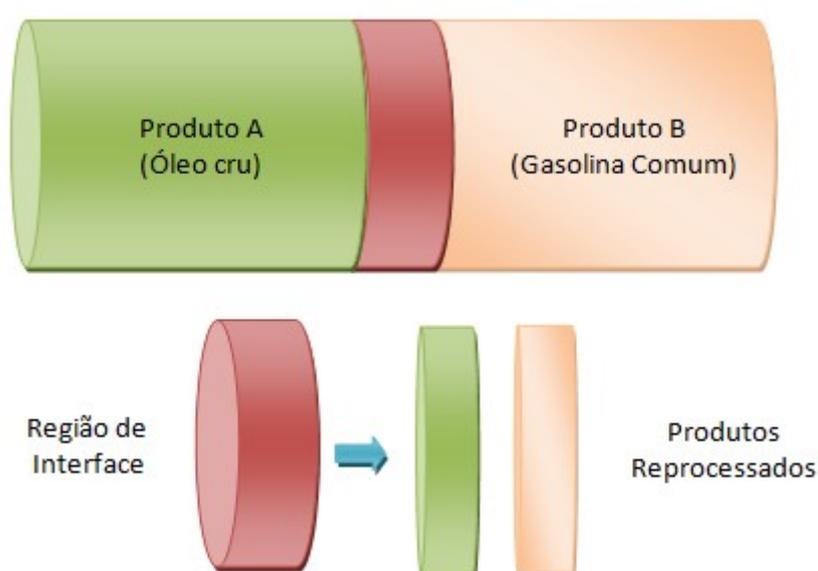


Figura 11: Região de interface no poliduto.  
(SALAGDO, 2017)

Próximo aos tanques de envio, esta região é mínima e normalmente causada pela manobra da troca de produtos bombeados o que requer que a válvula de envio do produto A continue aberta até que a válvula do produto B seja completamente aberta para evitar perda de pressão da linha. Continuando o bombeamento do produto B, a região de interface percorre todo o comprimento do poliduto, aumentando seu tamanho gradualmente, devido, por exemplo, a dispersão dos produtos, então a região de interface atinge seu comprimento máximo no recebimento.

A região de interface pode ser estimada como sendo diretamente proporcional a raiz quadrada do comprimento de duto percorrido pela interface dos produtos (TAYLOR, 1954). As linhas de cortes são parâmetros que determinam a concentração máxima (fração de volume) permitida do produto A no B, e vice versa, e delimitam o comprimento da região de interface. Alguns fatores que contribuem para o crescimento da região de mistura são:

- Perfil de velocidade e pressão do escoamento;
- Número de estações de bombeamento;
- Distância percorrida pela interface;
- Difusão entre os dois produtos.

Uma vez contaminado, toda essa região é considerada como produto de qualidade inferior (por exemplo: gasolina Comum e *Premium*) ou é separada e transportada de volta à refinaria ao processo de refino, onde será reprocessada (por exemplo: óleo cru e gasolina) o que implica num aumento do custo do produto final.

Atualmente, a região de interface é identificada por meio do histórico de um densímetro, que é posicionado nas extremidades do duto. A interface começa quando ocorre variação na medida da densidade, no densímetro e quando sua resposta torna-se constante novamente e igual à densidade do produto B, o fim da região de interface é alcançado. No entanto, esses limites são extremamente difíceis de serem determinados com precisão, pois existem variações nas densidades dos produtos com a pressão e temperatura, além de erros associados aos instrumentos (densímetros, sensores de vazão e etc.).

Nos pontos de recebimento ao longo das dutovias, são retiradas amostras de cada batelada para confirmar seu início e verificar as suas propriedades. É importante poder distinguir as interfaces dos produtos para que, na chegada ao terminal, cargas consecutivas possam ser segregadas nos seus respectivos tanques com o mínimo de contaminação. Dentre os métodos usados para marcar bateladas, destacam-se os baseados em diferenças de densidade, em diferenças de viscosidade e em diferenças de cor.

### 2.3 MODELO DE DIFUSÃO CONSIDERANDO A DENSIDADE

O tratamento formal de interfaces de mistura entre dois meios transportados em um poliduto é um dos fatores que envolvem o gerenciamento das operações de um poliduto. O principal objetivo no conhecimento das fronteiras dessa interface é minimizar o volume final, pois existem restrições impostas pela Agência Nacional de Petróleo (ANP) quanto à qualidade dos derivados de petróleo comercializados no Brasil.

O sistema é composto por dois fluidos, A e B, com diferentes composições químicas movendo-se em um tubo de diâmetro fixo. O fluido A é o deslocante e B o deslocado. A transferência de massa em tal sistema tende a ser determinada pelo mecanismo dispersão convectiva no eixo do duto e pelo mecanismo dispersão molecular próximo das paredes. Dadas as altas taxas de fluxo que normalmente ocorrem no interior de um duto de derivado de petróleo, considera-se que a contribuição da dispersão radial para o transporte de massa é insignificante. Considerando-se que não há termos de fontes ou sumidouros, a equação para o balanço de massa no sistema é dada por meio da *Equação 8* (HIMMELBLAU & BISCHOFF, 1968).

$$\rho \frac{\partial w_A}{\partial t} = - \frac{\partial n_{AT}}{\partial z}$$

Equação 8

Onde:

- $\rho$  – densidade da região da interface de mistura;
- $w_A$  – fração mássica do fluido deslocante;
- $n_{AT}$  – fluxo total de massa do fluido A;
- $z$  – direção do fluxo.

O fluxo total de massa do fluido A pode ser calculado a partir da *Equação 9*.

$$n_{AT} = n_{AD} + n_{ADC} + n_{AC}$$

Equação 9

Onde:

$n_{AD}$  – fluxo de massa devido à difusão molecular pura;

$n_{ADC}$  – fluxo de massa devido à contribuição de difusão por convecção;

$n_{AC}$  – fluxo de massa devido ao movimento total da mistura.

Definindo  $D_{ef}$  como o coeficiente de dispersão axial e segundo a Lei de Fick o fluxo ( $n_{AD}$ ) do fluido A (moles / área / tempo) pode ser formulado pela *Equação 10*.

$$n_{AT} = -D_{ef} \cdot \rho \frac{\partial w_A}{\partial z} + \rho v_z w_A$$

Equação 10

A equação do balanço de massa para o fluido A pode ser calculado por meio da *Equação 11*.

$$\frac{\partial w_A}{\partial t} + v_z \frac{\partial w_A}{\partial z} - D_{ef} \frac{\partial^2 w_A}{\partial z^2} = 0$$

Equação 11

A equação descreve a variação no tempo e no espaço da concentração do fluido A interagindo com o fluido B, e na sua formulação considerou-se que não ocorre expansão térmica que os fluidos em sua jornada através da tubulação, que os fluidos são incompressíveis e têm um comportamento Newtoniano. A solução da equação permite determinar o instante de tempo em que inicia e finaliza a interface de mistura, para isto temos como extremos da fronteira  $z_i$  e  $z_f$ , ou seja:

- Início da região de interface:  $z = z_i$
- Final da região de interface:  $z = z_f$

Considera-se  $z = 0$  o início do poliduto. Para qualquer posição  $z$  com  $z < z_i$  o fluido será composto exclusivamente por B, da mesma forma para qualquer posição  $z$  com  $z > z_f$  o fluido no interior do duto será inteiramente composto pelo fluido A. Para posições intermediárias  $z_f > z > z_i$  o fluido será composto por uma mistura entre A e B. Como condições iniciais têm-se:

$$w_A(z, 0) = \begin{cases} = w_{B0} & \text{se } z > z_i \\ = w_A(z) & \text{se } z < z_f \end{cases}$$

E como condições de contornos:

$$\left. \frac{\partial w_A}{\partial z} \right]_{z=z_{i,t}} = 0 \quad \text{nao existe o fluido A para } z \geq z_i$$

$$\left. \frac{\partial w_A}{\partial z} \right]_{z=z_{f,t}} = 0 \quad \text{nao existe variação na concentração do fluido A para } z \leq z_{fV}$$

Como a alteração na concentração do fluido A (deslocante) é devida ao fenômeno de transferência de massa (dispersão do fluido B), têm-se:

$$D_{ef} \left. \frac{\partial w_A}{\partial z} \right]_{z=z_{i,t}} = v_z (w_{A0} - w_A(z, t))$$

A solução da equação permite analisar o comportamento do perfil da concentração do fluido A quando é fixado um valor para a distância do início do duto e no tempo. A extensão L da região de mistura pode ser obtida por meio da *Equação 12*.

$$L = v_z (t_f - t_i)$$

Equação 12

E o volume da região pela *Equação 13*.

$$V = \frac{\pi d^2}{4} v_z (t_f - t_i)$$

Equação 13

Onde:

D - diâmetro do duto;

$v_z$  - vazão do escoamento;

$t_{i,f}$  - tempo em que começa e termina a região de interface.

Com relação à variável  $z$  a solução da equação e uma função tipo  $(1 - \text{erf}(z))$ , como mostrado na *Figura 12* e, na definição das fronteiras para a região de mistura foram considerados os pontos onde a concentração de fluidos varia em 2%, ou seja, para  $z_i$  será considerado o intervalo de tempo onde a concentração do meio é de 98% de B e 2% de A, e para  $z_f$  o intervalo de tempo onde a concentração do meio é de 98% de A para 2% de B.

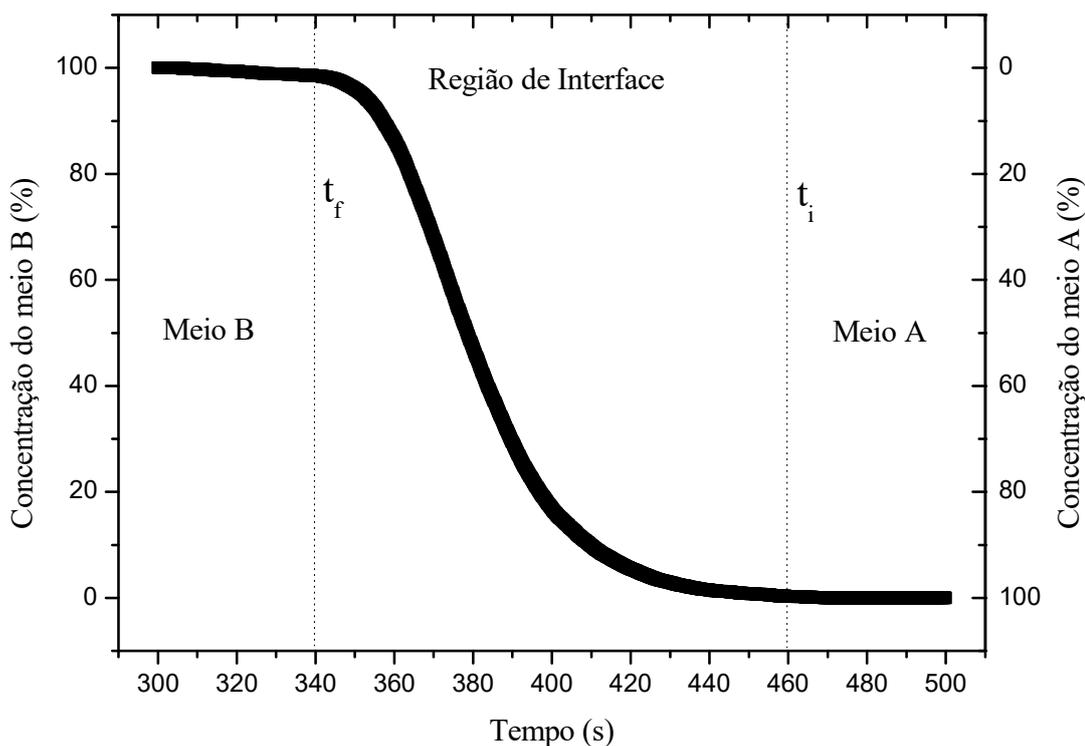


Figura 12: Curva característica na identificação da região de interface.

## 2.4 FRAÇÃO DE VOLUME NAS INTERFACES

O método de estimativa da fração de volume nas interfaces é baseado na atenuação de um feixe transmitido monoenergético de raios gama por uma tubulação contendo fluido bifásico sendo o sinal registrado pelo detector, desconsiderando-se a espessura do tubo e, por conseguinte, a atenuação na parede do tubo. Considerando um modelo simplificado do regime de fluxo estratificado com fases líquidas em um tubo com secção reta quadrada, conhecendo-se as dimensões e as características do duto, dos fluidos de transporte tem-se que a intensidade do feixe transmitido é dada pela equação de *Beer-Lambert* modificada, conforme *Equação 14* e *Equação 15*.

$$I(E) = I_0 \cdot \exp\left(-\sum_1^n \alpha_i \mu_i(E) \cdot x\right)$$

Equação 14

$$\sum_1^n \alpha_i = 1$$

Equação 15

Onde:

$I$  - intensidade transmitida de raios gama (fótons.  $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ );

$I_0$  - intensidade incidente inicial de raios gama da fonte (fótons.  $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ );

$\mu_i$  - coeficiente de atenuação linear total do fluido  $i$  ( $\text{cm}^{-1}$ );

$\alpha_i$  - fração de volume do fluido  $i$ ;

$E$  - energia da radiação incidente;

$x$  - espessura do fluido (cm).

Uma fonte de radiação gama, selada e blindada, com energia suficiente para penetrar e ser transmitida por todo o duto é posicionada em um dos seus lados e um detector cintilador NaI(Tl) é instalado diametralmente oposto à fonte com a finalidade de registrar a taxa de contagem. O registro do sinal no detector é proporcional à transmissão dos raios gama devido ao fluxo existente no interior do tubo. Os fluidos com alta densidade ocasionam uma diminuição na taxa de contagens no detector, enquanto, os fluidos com menor densidade resultam num aumento da taxa de contagens.

Para uma geometria de medida com feixe unidirecional (*pencil beam*) e perpendicular às camadas de fluidos em um sistema bifásico água-óleo, como ilustrado na *Figura 13*.

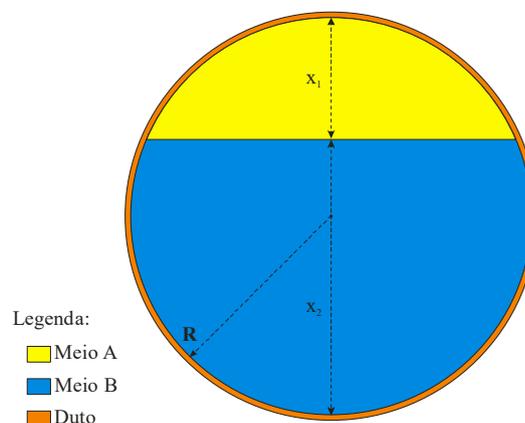


Figura 13: Geometria simulada para o regime estratificado para sistema bifásico. (SALGADO, 2017)

O cálculo da fração de volume de fluidos (FVF) em sistemas bifásicos heterogêneos sob o regime de fluxo estratificado, utilizando a técnica de atenuação gama pode ser obtido utilizando a *Equação 16* e *Equação 17* (ABOUELWafa & KENDALL, 1980).

$$\alpha_1 = \frac{\ln(I/I_2)}{\ln(I_1/I_2)}$$

Equação 16

$$\alpha_1 = 1 - \alpha_2$$

Equação 17

Onde:

$\alpha_{1,2}$  – fração de volume do fluido 1 ou 2;

$I$  – intensidade de raios gama transmitidos com tubo contendo fluidos 1 e 2;

$I_{1,2}$  – intensidade contendo apenas o fluido 1.

Para um tubo com secção reta cilíndrica, o procedimento adotado foi calcular as espessuras de cada material que correspondem ao caminho percorrido pela radiação considerando um feixe *pencil beam*, o que pode ser obtido pela *Equação 18* e *Equação 19*.

$$x_1 = \frac{\ln(I/I_2)}{\mu_2 - \mu_1}$$

Equação 18

$$x_2 = \frac{\ln(I/I_1)}{\mu_1 - \mu_2}$$

Equação 19

Onde:

$\mu_{1,2}$  – coeficiente de atenuação linear do fluido 1 e 2.

A discriminação da energia é obtida por ajuste em módulos eletrônicos associados ao sistema de contagem (monocanal + discriminador com janela de energia) de maneira a garantir que a faixa de energia dos fótons gamas seja o mais restrita possível. É fundamental que a fonte e o detector estejam alinhados durante todo o processo de medição.

Esta primeira aproximação permite demonstrar que as variações na intensidade do sinal registrado no detector estão diretamente relacionadas com a variação das frações de volume e de densidade.

## 2.5 O MÉTODO DE MONTE CARLO

É uma ferramenta de simulação computacional baseada em métodos estatísticos de compreensão de sistemas físicos e/ou matemáticos complexos usando números gerados aleatoriamente como entrada, visando a geração de uma gama de soluções. A solução pode ser determinada com maior precisão utilizando números cada vez maiores de ensaios.

O método de Monte Carlo surgiu através do matemático Stanislaw Ulam, que notou em um jogo de paciência que uma alternativa prática para se calcular as probabilidade de sucesso seria utilizando métodos de amostragem estatística, ou seja, realizar diversas jogadas e avaliar quantas vezes ocorria cada resultado. Posteriormente, com o desenvolvimento do primeiro computador eletrônico, Ulam sugeriu a utilização do método para solucionar o problema de difusão de nêutrons em material sujeito a fissão nuclear, o que difundiu assim sua aplicação (NASSER, 2012).

O método de Monte Carlo é aplicado principalmente em problemas físicos cuja solução é complicada ou até impossível de serem obtidos de forma experimental. Pode ser utilizado nos estudos que envolvam o transporte da radiação, simulando a trajetória individual das partículas e os processos de sua interação com matéria pela geração de números pseudo-aleatórios, a partir da distribuição de probabilidade que rege os processos físicos envolvidos. No desenvolvimento deste trabalho será utilizado o código de Monte Carlo N-Particle eXtended (MCNPX)(PELOWITZ, 2005).

### 2.5.1 O código MCNPX

O código computacional MCNPX é baseado no método de Monte Carlo e é um código multi-propósito, amplamente utilizado na área de transporte da radiação e sua interação com a matéria, envolvendo nêutrons, fótons, elétrons, ou até todos simultaneamente.

Para o transporte de fótons, o código considera os Espalhamentos Coerentes e Incoerentes, a possibilidade de ocorrer emissão de Fluorescência após o Efeito Fotoelétrico, a Produção de Pares com emissão de Radiação de Aniquilação e a Radiação de Freamento (Bremsstrahlung). E a faixa de energia que pode ser representada no código é de 1 keV até 100 GeV (LANL, 2003).

A Estrutura dos dados de entrada do MCNPX permite ao usuário desenvolver um arquivo de entrada de dados (INP), que é processado pelo código, contendo a descrição da geometria do problema em estudo, é subdividido da seguinte forma:

- Descrição das células (*Cell Cards*): Contém as informações sobre o tipo de material e densidade de que cada célula é composta. Para esta representação, utilizam-se operadores booleanos com combinações de formas geométricas pré-definidas, tais como esferas e planos.
- Descrição das Superfícies (*Surface Cards*): As formas geométricas básicas que compõem cada célula são definidas por caracteres mnemônicos indicando o tipo de superfície seguido de coordenadas que caracterizam seu posicionamento no espaço.
- Descrição dos Dados Físicos (*Data Cards*): A fonte é definida de acordo com sua geometria (pontual, plana, volumétrica), posicionamento no espaço, direção, tipo e energia da radiação, os materiais utilizados na simulação são definidos neste bloco. É possível selecionar que tipos de partículas simular e a forma de como são analisadas pode ser modificada utilizando os comandos disponíveis que fornecem as grandezas de interesse (*tallies*), tais como: corrente de partículas, fluxo de partículas, deposição de energia e distribuição de altura de pulsos (DAP).

Algumas características tornam este código uma ferramenta extremamente conveniente, versátil e poderosa, tais como:

- A capacidade de tratamento de geometrias complexas tridimensionais;
- Não requer do usuário conhecimento de linguagens de programação, tais como: FORTRAN, MORTRAN, C++ etc.
- O código MCNPX apresenta novos modelos físicos de simulação e de técnicas de redução de variância foram adicionados, além de atualizações da extensa coleção de bibliotecas de seção de choque.

Tomando como exemplo a “história” de um fóton, de uma forma simplificada, o processo que o código utiliza segue as etapas abaixo (PANI, LAITANO, & PELLEGRINI, 1987):

i) A seleção da distância percorrida pelos fótons entre as interações é selecionada de forma aleatória pela distribuição de probabilidade exponencial, conforme *Equação 20*.

$$x = \frac{-1}{\mu \cdot \ln(A)}$$

Equação 20

Onde:

$\mu$  – coeficiente de atenuação linear total;

$A$  – número aleatório.

ii) A seleção do tipo de interação, por números aleatórios, proporcional às seções de choque dos processos físicos possíveis de ocorrerem. Dependendo da interação é realizada a escolha de uma nova trajetória.

iii) Caso o código também esteja seguindo os elétrons gerados, para cada interação de um fóton é também gerada uma história para o elétron liberado.

iv) Esta história se encerra quando o fóton ultrapassar os limites das regiões que descrevem a geometria de contagem (escape) ou quando a energia do fóton ou do elétron chegar um valor mínimo (energia de corte) ou ainda quando a energia do fóton ou do elétron for completamente absorvida.

O número de histórias especificado no código define a precisão e a flutuação estatística dos resultados. As respostas calculadas também são acompanhadas por um número que é o erro relativo estimado e é definido pela *Equação 21* (PELOWITZ, 2005).

$$R \equiv \frac{S_{\bar{x}}}{\bar{x}}$$

Equação 21

Onde:

$S_{\bar{x}}$  – desvio padrão estimado da média;

$\bar{x}$  – média estimada.

Em termos simples, este parâmetro pode ser usado para formar intervalos de confiança sobre o principal valor estimado. O erro relativo é utilizado para a avaliação da qualidade dos resultados e é proporcional ao número de, conforme a *Equação 22*.

$$R = \frac{\sqrt{N}}{N}$$

Equação 22

Onde:

$N$  – número de contagens.

### 3 MATERIAIS E MÉTODOS

O trabalho experimental está relacionado com a medida das frações de volume num regime de fluxo estratificado bifásico (óleo e água). Para tal, foi desenvolvida e projetada uma seção de teste no laboratório de Radiotraçadores do Instituto de Engenharia Nuclear. Os materiais e os métodos utilizados para as medições das características do detector e dos fluidos, assim como para a metodologia desenvolvida para determinação das frações de volume e o estudo sobre a simulação matemática são apresentados nesse capítulo.

#### 3.1 MATERIAIS

No decorrer deste trabalho foram utilizados equipamentos e materiais que viabilizassem os experimentos, estes materiais serão descritos a seguir:

**i) Sistema de espectrometria baseado em um Detector NaI(Tl):** Foi utilizado um conjunto de módulos eletrônicos usados para obtenção e processamento do sinal gerado pelo detector. As características do sistema espectrométrico utilizado são descritos a seguir:

- Fonte de alta tensão fabricada pela empresa Canberra modelo 3106D, representada na Figura 14a.
- Amplificador fabricado pela empresa Canberra modelo 2026, representado na Figura 14b.
- Analisador Mono Canal modelo MS4031 fabricado pelo próprio Instituto de Engenharia Nuclear (IEN), representado na Figura 14c.
- Pré-amplificador fabricado pela empresa ORTEC modelo Baddel 113, representado na Figura 14d.
- Analisador MultiCanal (AMC) fabricada pela empresa Canberra modelo Genie-2000 (placa interna ao computador).
- Gerador de Pulsos fabricado pela ORTEC modelo 419.

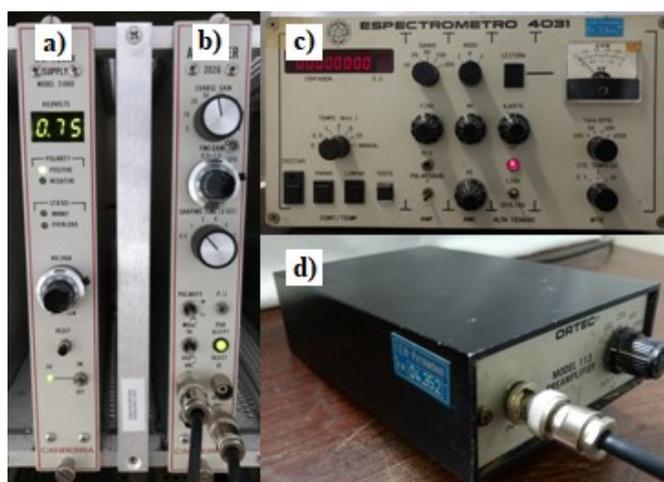


Figura 14: Sistema de espectrometria: a) fonte de alta tensão; b) pré-amplificador; c) amplificador; d) analisador mono canal.  
(SALGADO, 2017)

**ii) Fontes Radioativas:** Foram utilizadas fontes de radiação gama e as suas características seguem na *Tabela 1*.

Tabela 1: Dados das fontes padrões de radiação.

Fonte	Energia (keV)	Meia-Vida (dias)	Probabilidade de emissão (%)	Atividade (kBq)*
$^{60}\text{Co}$	1332,492	1925	99,98	392,060
$^{133}\text{Ba}$	356,013	3851	62,05	707,700
$^{137}\text{Cs}$	661,657	10979	85,10	556,410
$^{166\text{m}}\text{Ho}$	184,411	438000	72,00	23,500
$^{241}\text{Am}$	59,541	157899	35,90	190,500

\*Atividade corrigida para a data de realização do experimento.

**iii) Fluidos:** Na realização dos experimentos deste trabalho foram utilizados:

- Óleo lubrificante MARBRAX TR 32, cujas propriedades fornecidas pelo fabricante são descritas na *Tabela 2*.

Tabela 2: Características do óleo.  
Óleo Marbrax

Ponto de Fulgor	234 °C
Ponto de Fluidez	- 21 °C
Viscosidade a 40 °C	32,4 cSt
Viscosidade a 100 °C	5,6 cSt
Índice de Viscosidade	110

- Água com alto índice de pureza obtida por um sistema composto de um pré-filtro modelo RiOs e um purificador modelo Milli-Q A10 biocel, ambos fabricados pela empresa Millipore, conforme mostrado na *Figura 15*.



Figura 15: Sistema de purificação da água.  
(SALGADO, 2017)

Este sistema fornece água com um percentual de pureza de 95%. A água com um alto índice de pureza foi utilizada visando uma solução controlada para uma simulação da água, uma vez que as impurezas são uma variável considerável (BARBOSA, 2016).

Um estudo para determinar as densidades dos fluidos foi realizado, para tal foi utilizado uma balança digital de precisão para realizar a medição das massas dos materiais, fabricada pela empresa Ohaus modelo AR2140, mostrada na *Figura 16*.

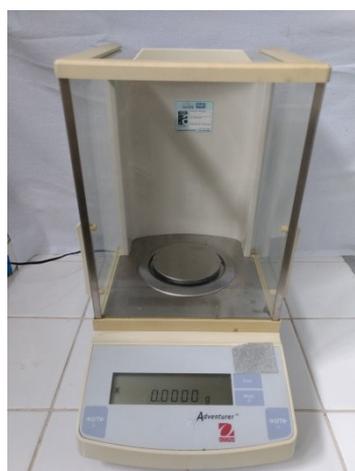


Figura 16: Balança digital de precisão.  
(SALGADO, 2017)

iv) **Seção de teste:** Para a realização dos experimentos, foi construída uma sessão de teste em Acrílico utilizando anéis de vedação (*o'rings*) de borracha e parafusos para a vedação dos flanges. As dimensões da seção de testes estão representadas na *Figura 17*.

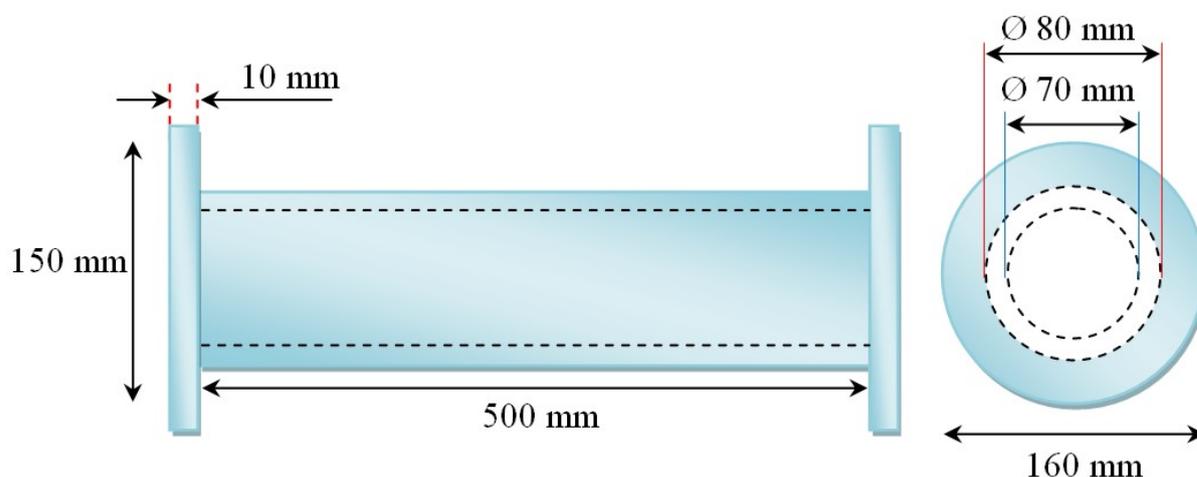


Figura 17: Esquema da seção de teste utilizada para realização dos experimentos. (SALGADO, 2017)

## 3.2 MÉTODOS

Na realização das medições e simulações deste trabalho foram seguidas algumas etapas, a primeira delas se ateve na modelagem e validação do detector NaI(Tl) e as demais ao desenvolvimento de uma metodologia para determinar a menor quantidade do produto contaminante.

### 3.2.1 Características do detector NaI(Tl)

Para a utilização de detectores NaI(Tl) em medições é necessário determinar as curvas de resolução energética e de eficiência do detector em função da energia do fóton incidente. Os parâmetros de calibração de um detector podem ser determinados experimentalmente, requerendo-se fontes de radiação gama calibradas.

Para isto é necessária a utilização de várias fontes de radiação gama cujas energias de emissão abrangam todo o intervalo de interesse. É facilmente verificável que, além de consumir tempo,

são necessárias fontes com intensidade suficiente para se obter uma boa estatística de contagem à distância fonte-detector desejada. Também são necessários equipamentos e instalações especiais para garantir precisão no posicionamento da fonte, uma vez que pequenas variações na distância ou alinhamento fonte-detector podem influir para aumentar a incerteza das medidas.

Utilizando métodos de simulação de Monte Carlo é possível calcular a função resposta de detectores com excelentes resultados, desde que se descrevam satisfatoriamente as diversas partes constituintes do detector, é possível simular as curvas de resposta em boa concordância com as obtidas experimentalmente. As curvas de eficiência, quando calculadas por simulação, não sofrem a influência de diversos parâmetros, tais como: variações da porcentagem de emissão gama, incerteza na concentração de atividade, correção de decaimento etc (MOSS & STRETMAN, 1990).

A etapa do estabelecimento de validação experimental da metodologia proposta deve considerar as curvas de resolução energética e de eficiência do detector nas simulações matemáticas. Para a obtenção destas curvas utilizaram-se fontes radioativas que foram medidas à distância fonte-detector de 5,45 cm, posicionada na direção do eixo axial do detector. Os dados nucleares dos padrões radioativos utilizados são apresentados na Tabela 1 descrita na seção 3.1 cujas energias cobrem a faixa de interesse nesta investigação. No cálculo destas curvas foram consideradas as radiações de fundo e as contribuições devidas às interações por efeito *Compton*.

#### **i) Tensão de Operação**

Para realizar a calibração do sistema de detecção (cadeia eletrônica + detector) realizou um procedimento para obter a tensão de operação do detector (KNOLL, 1989). Para tal, utilizaram-se um analisador monocanal juntamente com um contador e uma fonte de radiação de  $^{137}\text{Cs}$  ( $E_\gamma = 662 \text{ keV}$ ) fornecida pelo Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD). Variou-se a tensão elétrica aplicada ao detector de 10 em 10 volts e registrou-se o número de contagens para a medida. O valor inicial da tensão foi ajustado para que não houvesse contagens registradas no detector. Depois de estabelecer a tensão de operação e um ganho de amplificação para o detector, foi registrada a DAP em energia para as fontes no AMC (CANDEIRO, 2008).

## ii) Funções Resposta

A curva de eficiência absoluta em função da energia com o feixe incidindo no detector foi determinada experimentalmente visando validar quantitativamente a modelagem do detector (EWA et al., 2001).

Para tal, foram utilizadas as fontes radioativas, listadas na seção 3.1, cujas energias cobrem a faixa de investigação. Essas fontes foram medidas a uma distância fonte-detector (DFD) de 17,25 cm, posicionada na direção do eixo longitudinal do cristal, visando evitar o efeito-soma. Esta geometria foi reproduzida por simulação e os resultados foram comparados com os valores experimentais. Para melhorar a estatística de contagem, o tempo de medição escolhido foi de 20 horas, de modo que os erros associados se mantivessem inferiores a 0,5%.

Os materiais que envolvem o cristal do detector foram considerados visto que atenuam a incidência dos fótons, principalmente até 300 keV (EWA et al., 2001). Desta forma, as dimensões e características do detector foram precisamente obtidas, para não introduzir grandes erros na determinação da eficiência do detector (NAKAMURA, 1983; SIMA, 1990).

A expressão que calcula a eficiência de fotopico absoluta de um detector a uma energia é dada pela Equação 5, descrita no item 2.1. No cálculo destas eficiências foram consideradas as radiações de fundo e as contribuições devidas às interações por Efeito *Compton*. Para o procedimento de determinação da curva de eficiência, buscou-se manter a diferença entre os valores medidos e calculados, para as fontes pontuais o menor possível, com uma incerteza máxima de 10%.

Outra função de resposta estudada neste trabalho é a resolução em energia. Para sua determinação foi utilizado o mesmo procedimento para a obtenção da curva de eficiência. Após os fotopicos (centróides) serem identificados por meio do Multicanal foi calculada a largura à meia altura (FWHM) de cada fotopico para determinar a resolução do detector, por meio da Equação 7.

### 3.2.2 Modelagem do detector NaI(Tl)

Para simulação da resposta do detector por método de Monte Carlo, o detector de NaI(Tl) deve ser modelado com a melhor precisão possível pois variações nas dimensões do cristal influem na determinação da eficiência (NAKAMURA, 1983; SIMA, 1990).

Para estimar o volume ativo real do cristal, que pode diferir dos dados declarados pelo fabricante, utilizaram-se duas fontes pontuais,  $^{241}\text{Am}$  e  $^{137}\text{Cs}$ , uma de baixa e outra de alta energia, respectivamente. Estas fontes foram medidas com o detector NaI(Tl) e foram posicionadas na direção do eixo longitudinal e lateralmente em relação ao cristal; a geometria foi reproduzida por simulação e os resultados foram comparados com os valores experimentais. Foram efetuadas quatro medidas, duas com as fontes no eixo longitudinal com DFD igual 5,45 cm do detector e as outras com as fontes posicionadas no centro lateral do cristal com DFD igual a 4,78 cm. O procedimento realiza um processo iterativo entre as contagens obtidas na simulação e a variação da espessura e do diâmetro do cristal. Os cálculos foram iniciados com o valor obtido pela gamagrafia, que é de 31,75 mm de diâmetro e 19,05 mm de espessura (CONTI, 1999; SALGADO et al., 2012).

O modelo geométrico do detector baseou-se nas informações fornecidas a partir da imagem de um detector NaI(Tl) obtida pela técnica de gamagrafia. A constituição dos materiais que o compõem, assim como, suas dimensões são utilizadas para fins de cálculo com o código MCNPX. O modelo matemático do detector desenvolvido no código MCNPX é ilustrado na Figura 18.

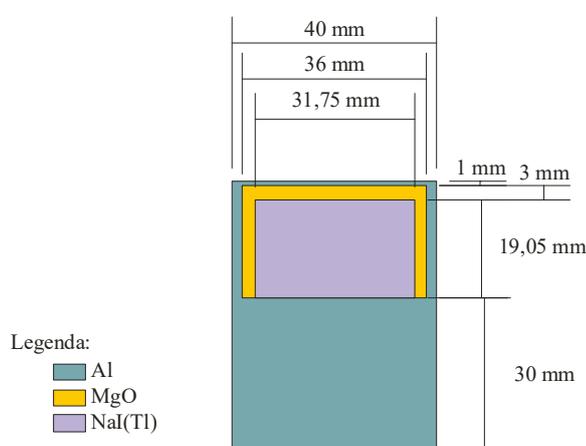


Figura 18: Dimensões e materiais do detector de NaI(Tl). (SALGADO, 2010)

A resposta da simulação foi obtida utilizando-se o comando de saída (*tally card*) F8 que apresenta uma DAP devida aos fótons e/ou elétrons, na região sensível do cristal. O comando F8 apresenta, também, o erro relativo devido às contagens em cada faixa de energia do espectro. O número de histórias (NPS) foi selecionado para garantir boa estatística devido às contagens na DAP, a fim de obter valor de erro relativo menor do que 1% na região de *Compton* contínuo. Outras considerações importantes devem ser mencionadas:

- A fotomultiplicadora, posicionada atrás do cristal, foi tratada como um disco de alumínio de 30 mm de espessura (SHI et al., 2002).
- Uma fonte radioativa do tipo pontual com emissão isotrópica é simulada no código MCNPX.
- O cristal do detector NaI(Tl) foi considerado como um cilindro homogêneo (BERGER & SELTZER, 1972) com densidade de  $3,667 \text{ g.cm}^{-3}$ , a densidade do material refletor (MgO) utilizada é de  $2,0 \text{ g.cm}^{-3}$  (SAITO & MORIUCHI, 1981) e a densidade do alumínio foi de  $2,7 \text{ g.cm}^{-3}$ .

Para considerar a resolução em energia do detector no código computacional MCNPX é necessário utilizar um tratamento especial para a DAP nos quais os picos de energia se comportam como uma função Gaussiana alargando-a conforme função descrita pela Equação 23. Para tal, é necessário determinar a curva experimental FWHM, obtido com a Equação 7, em função da energia e ajustá-la a fim de calcular o alargamento da função Gaussiana.

$$f(E) = C \cdot \exp - \left( \frac{E - E_0}{FWHM/2\sqrt{\ln 2}} \right)^2$$

Equação 23

Onde:

$E$  – energia “alargada” (MeV);

$E_0$  – energia “não alargada” (MeV);

$C$  – constante de normalização (MeV);

$FWHM/2\sqrt{\ln 2}$  – largura de Gauss (MeV).

Uma função não-linear baseada em aproximação de mínimos quadrados foi aplicada para calcular os valores dos coeficientes “a”, “b” e “c” que são fornecidos pelo usuário ao arquivo

de entrada (INP) com o comando *Gaussian Energy Broadening* (GEB) do cartão FTn, desenvolvido no código MCNPX por meio da Equação 24 (PELOWITZ, 2005).

$$FWHM = a + b\sqrt{E + cE^2}$$

Equação 24

Onde:

$E$  – energia dos raios gama incidentes (MeV);

$a, b, c$  – constantes ajustadas pelo usuário.

### 3.2.3 Cálculo das características do óleo

Visando validar experimentalmente os fluidos usados na simulação precisou-se determinar a densidade e a do óleo.

#### i) Densidade do Óleo

Apesar de conhecer algumas características do óleo fornecidas pelo fabricante conforme item 3.1, a cadeia de hidrocarbonetos e a densidade não são informadas. Para a medição do volume, foram realizadas cinco grupos de medidas variando de 0 mL até 50 mL com porções de 5 mL com auxílio de uma pipeta com graduação para até 10 mL de amostra em seguida realizou-se a medição da massa deste volume de óleo com o auxílio de uma balança de precisão. O cálculo da densidade foi obtido por meio da *Equação 25*.

$$d = \frac{m}{v}$$

Equação 25

Onde:

$m$  – massa de óleo (g);

$v$  – volume do óleo (mL).

Vale destacar que este procedimento foi realizado para água pura (H<sub>2</sub>O) com densidade igual 1,0 g.cm<sup>-3</sup> como referência de um material conhecido.

## ii) Composição Química do Óleo

Devido à complexidade de determinação da composição química do óleo (cadeia de hidrocarbonetos) foi realizado um estudo para verificar sua influência nas simulações no código MCNPX. Tanto a densidade como composição química são parâmetros necessários que devem ser fornecidos, no arquivo de entrada (INP) do código, para a caracterização dos materiais. Inicialmente, fixou-se a densidade determinada experimentalmente e utilizaram-se diversas composições de cadeias hidrocarbonetos conhecidas e tabeladas, conforme *Tabela 3* (MCCONN et al., 2011). Posteriormente, escolheu-se uma destas cadeias e variou-se sua densidade.

Tabela 3: Composição química em fração mássica para os óleos estudados.

Elemento	Tipos de Óleo - Fração mássica (%)						
	Tipo 1	Tipo 2	Tipo 3	Tipo 4	Tipo 5	Tipo 6	Tipo 7*
	Óleo Canadá	Óleo México	Óleo Iraque	Óleo Texas	Óleo Combustível	Óleo Hidráulico	Óleo Lubrificante
H	0,104000	0,104039	0,102000	0,123246	0,125878	0,040495	0,117621
C	0,837000	0,853733	0,807000	0,852204	0,862308	0,584904	0,778655
N	0,004000	-	0,007000	0,007014	-	-	-
O	0,011000	-	-	-	-	0,077915	0,103724
P	-	-	-	-	-	0,037709	-
S	0,044000	0,042228	0,084000	0,017535	0,011814	-	-
Cl	-	-	-	-	-	0,258977	-

\*Óleo utilizado nas simulações.

## iii) Cálculo do coeficiente de atenuação linear

Estudos preliminares foram realizados visando calcular o coeficiente de atenuação linear dos materiais usando o código MCNPX e pela Equação 3. Inicialmente, desenvolveu-se uma geometria baseada no princípio de medida de radiação transmitida composta por um sistema de detecção e uma fonte de raios gama. Utilizou-se uma fonte puntiforme de  $^{137}\text{Cs}$  (662 keV) colimada com feixe *pencil beam*. Este estudo foi realizado considerando uma amostra de água pura ( $\text{H}_2\text{O}$ ) com espessuras variando de 1,0 cm a 5,0 cm com incrementos de 1,0 cm. Os resultados encontrados foram comparados com os valores teóricos do *National Institute of Standards and Technology* (NIST).

Após estes resultados, iniciou-se o cálculo do coeficiente de atenuação linear do óleo ( $0,752 \text{ g.cm}^{-3} - \text{C}_{10}\text{H}_{18}\text{O}$ ) utilizado nos experimentos. Todas as simulações foram realizadas usando o comando “*tally f8*” com um número de histórias (NPS) igual a  $1 \times 10^7$ , visando obter uma incerteza na região de absorção total menor que 0,1%.

### 3.2.4 Geometria de medida e cálculo de frações de volume

A primeira etapa deste estudo foi avaliar a potencialidade do código MCNPX nos problemas de cálculo de frações de volume e identificação da região de interface no transporte de fluidos em polidutos. O código MCNPX facilita o processo de escolha de diversos parâmetros sendo possível projetar o sistema de colimação/blindagem e a geometria mais adequada para calcular a taxa de contagem dos fótons sem a necessidade de montagem de aparatos experimentais, na fase inicial do projeto. Na primeira fase deste projeto, será realizado um estudo detalhado das possibilidades para diferentes arranjos geométricos do sistema fonte/detector, com as informações obtidas pelo código.

- Características da fonte: dimensão, forma, atividade e energia.
- Tipo de detector: dimensão, colimação e posicionamento angular com relação à fonte.
- Número de fontes e detectores necessários para a medida de densidade de diversos fluidos.
- Estudo da influência das frações de volume e do diâmetro da tubulação na determinação da densidade.

Inicialmente, a geometria de detecção adotada consiste de uma fonte de  $^{137}\text{Cs}$  com emissão unidirecional (*pencil beam*) e um detector de NaI(Tl) posicionado diametralmente oposto ao detector para medir o feixe transmitido. O duto tem 7 cm de diâmetro interno e 0,5 cm de espessura, como mostrado na Figura 19. O duto foi preenchido com frações de volume de água e óleo para investigar a atenuação dos raios gama e posteriormente cálculos das frações das frações de volume. Os fluidos água ( $\text{H}_2\text{O}$  – densidade  $1,0 \text{ g.cm}^{-3}$ ) e óleo ( $\text{C}_{10}\text{H}_{18}\text{O}$  – densidade  $0,752 \text{ g.cm}^{-3}$ ) foram considerados nesta simulação. Avaliou-se também neste estudo uma variação do número NPS entre  $10^4$  e  $10^8$  eventos, visando diminuir o tempo computacional. O comando "F8 tally" disponibilizado no código MCNPX foi usado para obter a DAP que foi classificada de 40 a 800 keV, com passos de 10 keV. A faixa de energia foi escolhida devido o espectro adquirido considerando o pico de 662 keV da fonte de  $^{137}\text{Cs}$ .

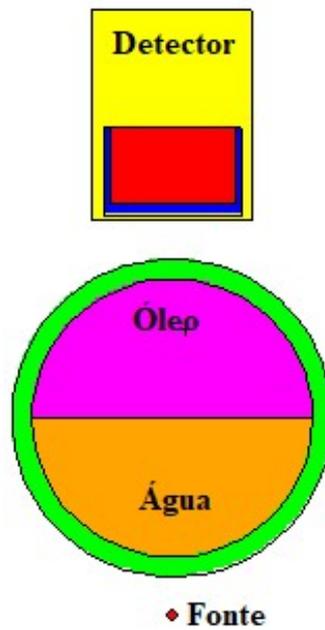


Figura 19: Geometria de medida proposta.  
(SALGADO, 2017)

O cálculo analítico usando a Equação 16 fornece o cálculo das frações de volume considerando um duto de seção reta quadrada, para um duto com seção cilíndrica deve-se utilizar a Equação 18 e Equação 19 para calcular, inicialmente, o “caminho” percorrido pela radiação considerando um feixe *pencil beam*. A integral da área ocupada pela água é calculada pela Equação 26.

$$S(h) = 2 \cdot \int_0^h \sqrt{R^2 - (y - R)^2} dy$$

Equação 26

Onde:

$R$  – raio do duto (cm);

$y$  – parâmetro para cálculo da integral.

Por meio de manipulações matemáticas e utilizando o método trigonométrico, o cálculo da fração de volume de água é dado pela Equação 27, a demonstração está disposta APÊNDICE A.

$$\alpha(x) = \frac{\pi R^2}{2} + R^2 \cdot \sin^{-1} \left( \frac{x - R}{R} \right) + (x - R) \cdot \sqrt{R^2 - (x - R)^2}$$

Equação 27

Vale destacar que após estes ensaios, alterou-se o tipo de emissão da fonte para feixe largo colimado com divergência de  $3,3^\circ$ , visando tornar o modelo mais realístico. Essa alteração foi desenvolvida matematicamente, sem a utilização de colimador real, utilizando comandos disponibilizados no código MCNPX, onde a emissão da fonte adota a forma cônica com normalização da emissão em  $4\pi$ .

### 3.2.5 Medição das frações de volume

A partir do modelo matemático da geometria desenvolvida no código MCNPX, construiu-se uma seção de teste representativa do regime de fluxo estratificado baseado nos dados apresentados no item 3.1, na *Figura 17*. O aparato experimental é mostrado na *Figura 20*.

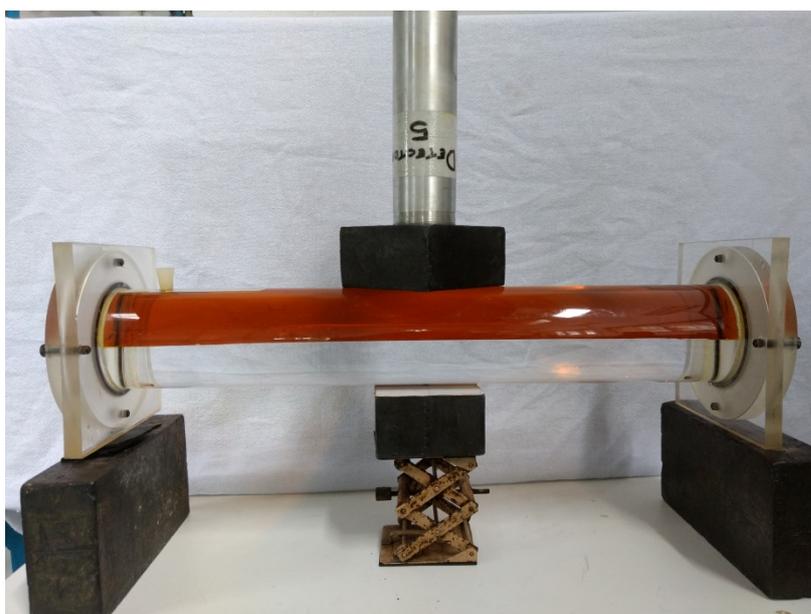


Figura 20: Aparato experimental.  
(SALGADO, 2017)

A validação experimental do modelo considerou apenas o detector de transmissão com uma fonte de  $^{137}\text{Cs}$  posicionado diametralmente ao duto de acrílico. Inicialmente, foi realizada uma medição da radiação de fundo (BG), outras medidas foram realizadas considerando:

- Duto completamente cheio de água;
- Duto com 50% do volume de água e 50% do volume de óleo;
- Duto completamente cheio de óleo.

Primeiro, o duto foi totalmente preenchido por água, posteriormente foi retirada metade do volume de água, mensurada por um Becker graduado e acrescentado óleo até completar todo o volume do duto. Após isto, foi retirada toda a água do duto e completado com óleo. Foram realizadas duas medidas de 20h para cada uma destas configurações para garantir a repetibilidade do sistema de medição.

Após a realização das medições calculou-se a integral da área sob a região fotoelétrica, visando obter o parâmetro necessário para cálculo da equação de fração de volume de água por meio da Equação 18.

## 4 RESULTADOS

### 4.1 CARACTERÍSTICAS DO DETECTOR NaI(Tl)

Esta etapa visa avaliar os resultados das características do detector. Conforme descrito no item 3.2.1, foram definidas a de tensão de operação, as curvas de resolução energética e da eficiência de detecção. Para avaliar se o modelo matemático proposto está de acordo com a realidade, foram comparados os valores de eficiência de detecção para diferentes energias, representando a geometria utilizada nos procedimentos experimentais na simulação computacional. Os resultados obtidos são representados na *Figura 19*.

Para a determinação da tensão de operação do detector foi realizado o procedimento descrito no item 3.2.1. Na *Figura 21* é possível visualizar todas as medições realizadas, e entre os valores de tensão 720 e 800 Volts existe uma região de platô, em que ocorre uma menor variação de contagem a partir de uma variação da tensão.

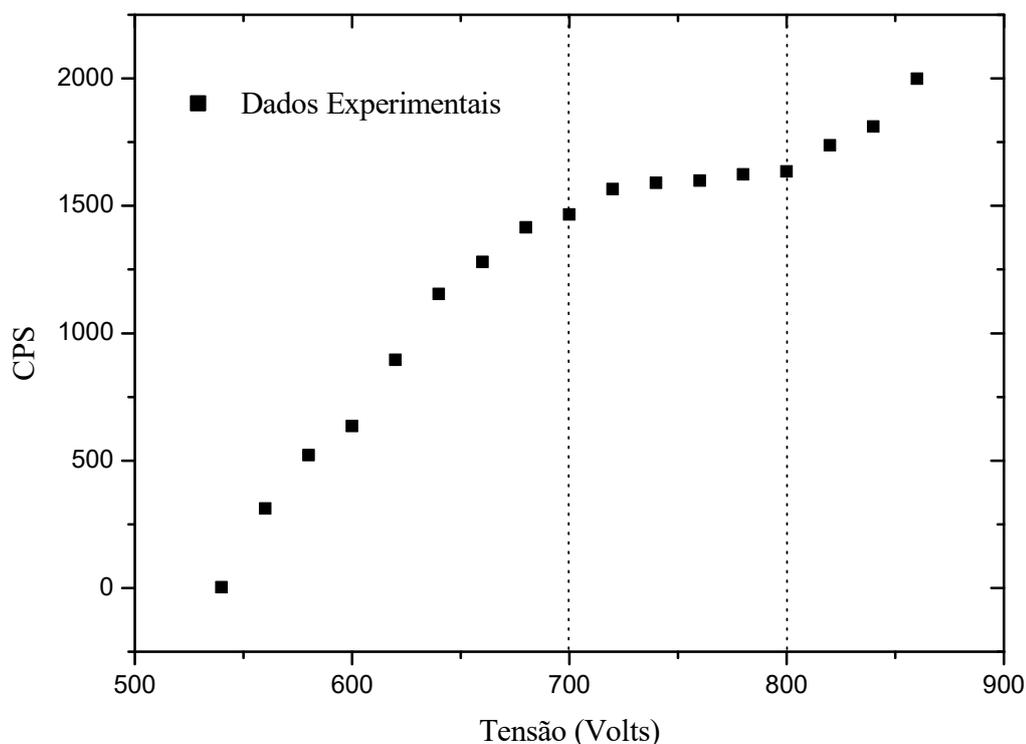


Figura 21: Curva para determinar a tensão de operação do detector.  
(SALGADO, 2017)

A tensão de operação do detector foi definida em 750 Volts. Esta foi a tensão utilizada durante todos os experimentos realizados para este trabalho.

A calibração do sistema espectrométrico foi realizada utilizando as fontes listadas na Tabela 1 e o resultado é mostrado na Figura 22.

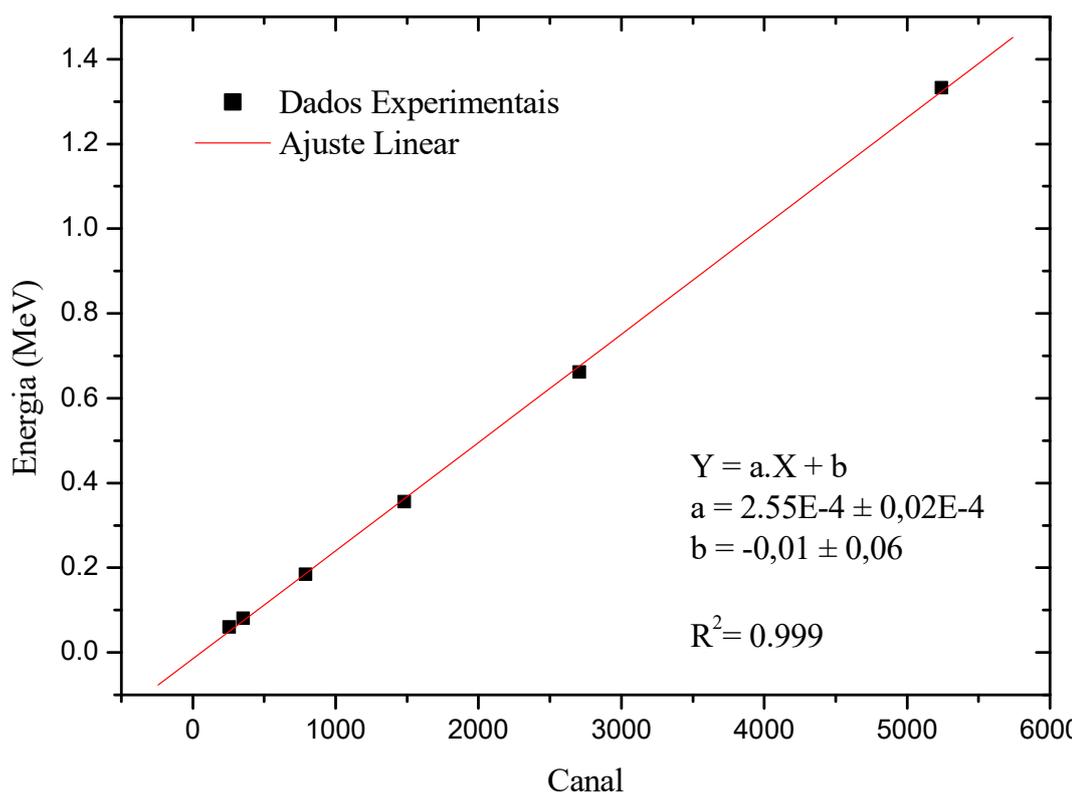


Figura 22: Curva de calibração em energia.  
(SALGADO, 2018)

### i) Eficiência de detecção

Para avaliar se o modelo matemático proposto está de acordo com a realidade, foram comparados a eficiência obtida a partir dos dados experimentais com os valores obtidos com o modelo do detector NaI(Tl) na mesma geometria utilizada nos procedimentos experimentais e utilizando-se as fontes descritas na seção 3.1 no item ii. A incerteza foi estimada considerando a flutuação das contagens e da atividade e se manteve inferior a 5%.

As curvas de eficiência de fotopico absoluta, experimental e por modelagem em função da energia, são mostradas na Figura 23. Foi ajustada uma curva segundo a Equação 28 no

intervalo de energia de 59,541 a 1332,492 keV; para a geometria de medida descrita na seção 3.2.4.

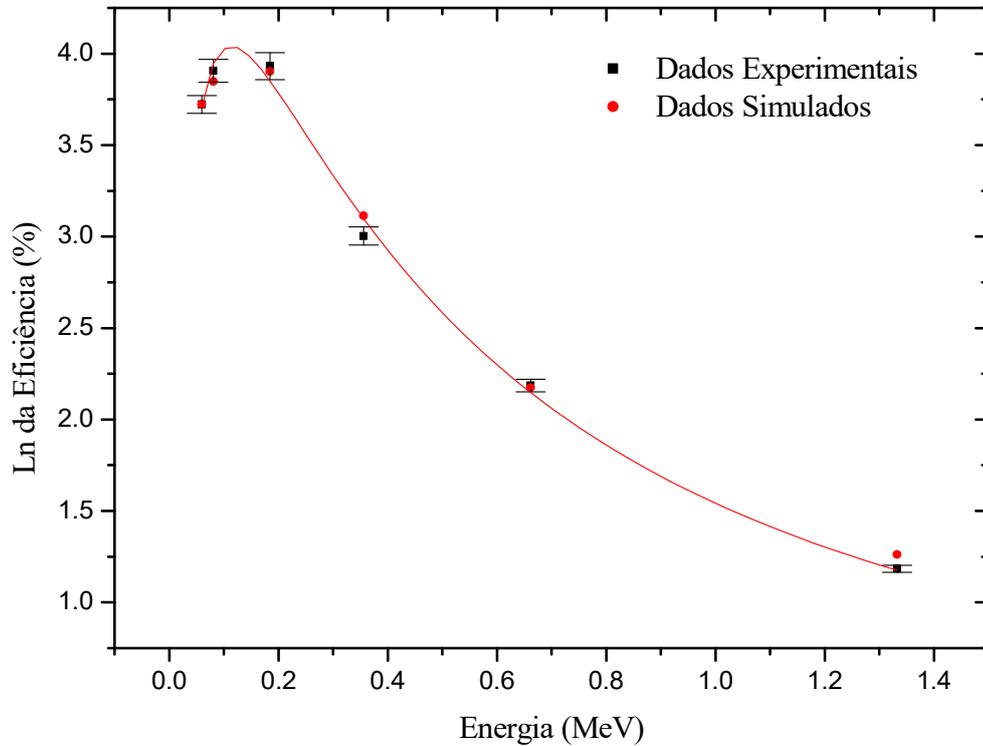


Figura 23: Curva de eficiência obtida por modelagem matemática e validada experimentalmente. (SALGADO, 2018)

Os coeficientes da *Equação 28* foram obtidos pelo método de mínimos quadrados e seus valores são apresentados na *Tabela 4*, com o coeficiente de correlação ( $R^2$ ) igual a 0,997.

$$\ln(\varepsilon) = a + b \cdot \ln(E) + c \cdot \ln(E)^2$$

Equação 28

Onde:

$\varepsilon$  – eficiência (%);

$E$  – energia (keV);

$a, b, c$  – coeficientes de ajuste.

Tabela 4: Valores para os coeficientes do ajuste da Equação 29.

COEFICIENTES	VALORES	INCERTEZA
a	0,43	0,04
b	-0,89	0,05
c	-0,20	0,01

Os pontos experimentais e os valores obtidos pela modelagem mostraram boa concordância e apresentam um erro relativo máximo de 11,69% para a energia de 356,013 keV do  $^{133}\text{Ba}$ .

Para determinação da resolução do detector foram realizadas medições da FWHM em cada energia de fotopico de acordo com os procedimentos citados no item 3.2.1. A partir dos valores de FWHM, foi calculada a resolução do detector para a faixa de energia, os resultados são representados na *Figura 24a*. A partir das FWHM medidas experimentalmente os coeficientes a, b e c utilizados para o ajuste da função GEB foram calculados pela *Equação 24*, conforme representado na *Figura 24b* e seus valores são apresentados na Tabela 5.

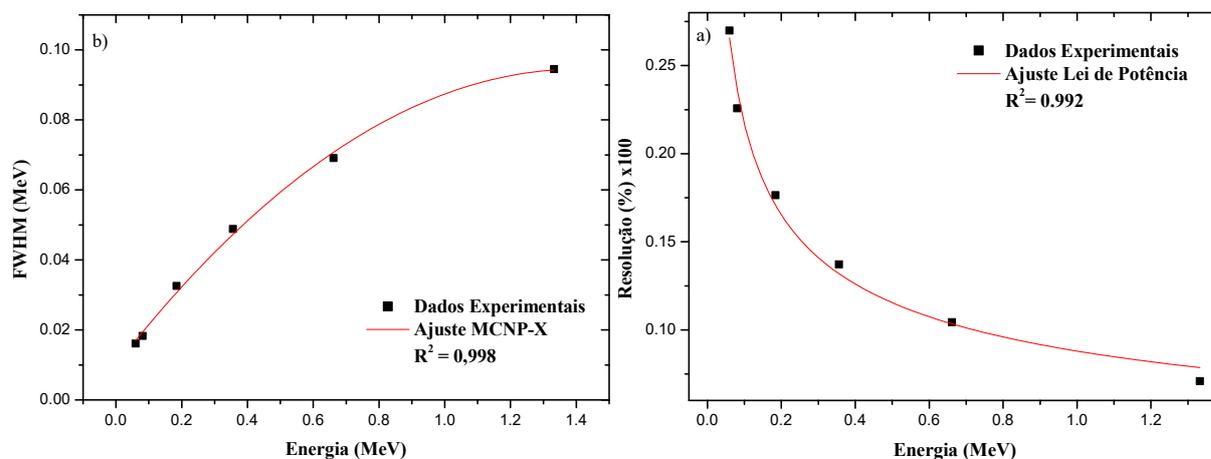


Figura 24: Curvas Resposta: a) resolução energética; b) largura à meia-altura (FWHM).  
(SALGADO, 2017)

Com estes resultados tornou-se possível realizar o ajuste da função GEB, através da metodologia citada, tornando o modelo matemático mais realístico.

Tabela 5: Valores para os coeficientes do ajuste da Equação 25.

COEFICIENTES	VALORES	INCERTEZA
a	0,009	0,002
b	-0,24	0,01
c	-0,35	0,02

A validação experimental qualitativa e quantitativa, após correção da eficiência e do ajuste da resolução do sistema de detecção é apresentado na Figura 25. Pode-se notar uma concordância aceitável na região de fotopico, porém para a faixa de baixa energia (região *Compton*) a DAP apresenta alguma discrepância, o que normalmente é relatado na literatura como imprecisão na simulação do transporte de elétrons de baixa energia e por espalhamento de fótons na blindagem e suporte do detector (SHI et al., 2002).

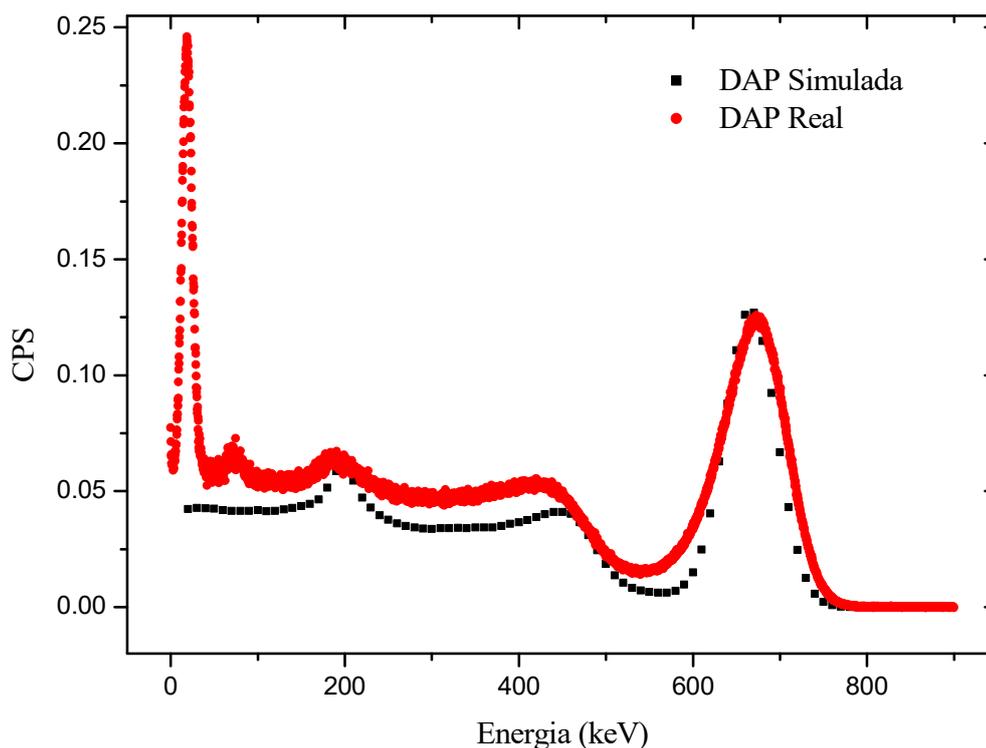


Figura 25: Comparação da forma dos espectros experimentais e simulados no código. (SALGADO, 2017)

Vale destacar que o primeiro pico é relativo à emissão de raios X da camada K de  $^{137m}\text{Ba}_{56}$  ( $\text{BaK}\alpha_1$ ), ele não foi simulado e por este motivo não aparece na DAP obtida pelo código computacional MCNPX.

## 4.2 CARACTERÍSTICAS DOS MATERIAIS

Visando a utilização de uma seção de teste experimental se fez necessário a validação dos materiais utilizados.

### i) Densidade do óleo

O resultado da determinação da densidade, usando o cálculo proposto no procedimento descrito no item 3.2.2. Na *Figura 26* é apresentado o resultado das médias de todos os grupos de medidas. O desvio padrão de cada medida foi calculado e os valores obtidos foram inferiores a 2,5%.

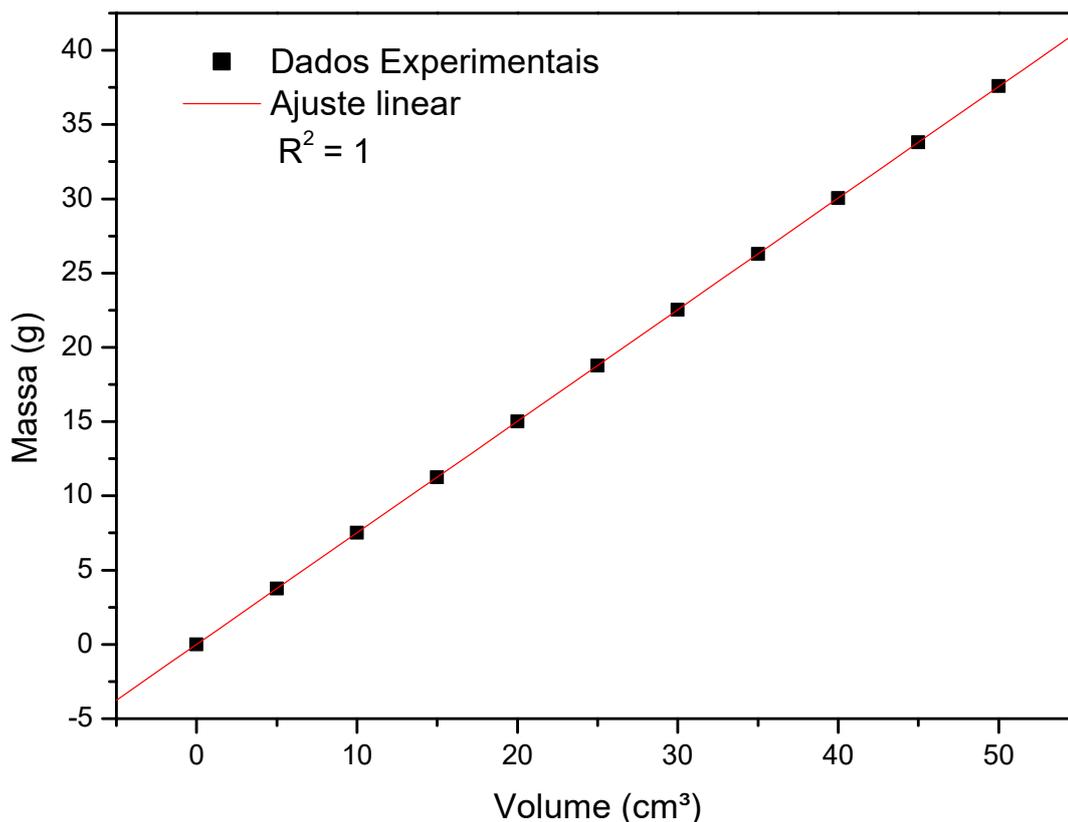


Figura 26: Ajuste linear da medida de densidade do óleo.  
(SALGADO, 2017)

Após isto os valores encontrados foram ajustados de acordo com a distribuição de *t student* para 95% e o valor obtido para a densidade do óleo foi de  $(0,752 \pm 0,002)$  g.cm<sup>-3</sup>. Com o intuito de validar este procedimento, foi realizado um grupo de medidas para a água e o valor obtido foi de  $(0,987 \pm 0,002)$  g.cm<sup>-3</sup>, com erro relativo de 1,3% em relação ao valor teórico para a densidade da água (1,0 g.cm<sup>-3</sup>) (NIST, 2018). Considerando que o sistema de purificação da água garante 95% de pureza o resultado encontrado comprova a eficácia do procedimento.

É importante destacar, devido à precisão da balança e da pipeta a incerteza da medida ficou muito baixa, impossibilitando que fosse expressa.

## ii) Composição química do óleo

Os resultados da determinação da composição química do óleo a ser informada no arquivo de entrada do código MCNPX para caracterizar o material são apresentados na Figura 27. Como padrão interno para comparação dos resultados foi utilizado o óleo tipo 7.

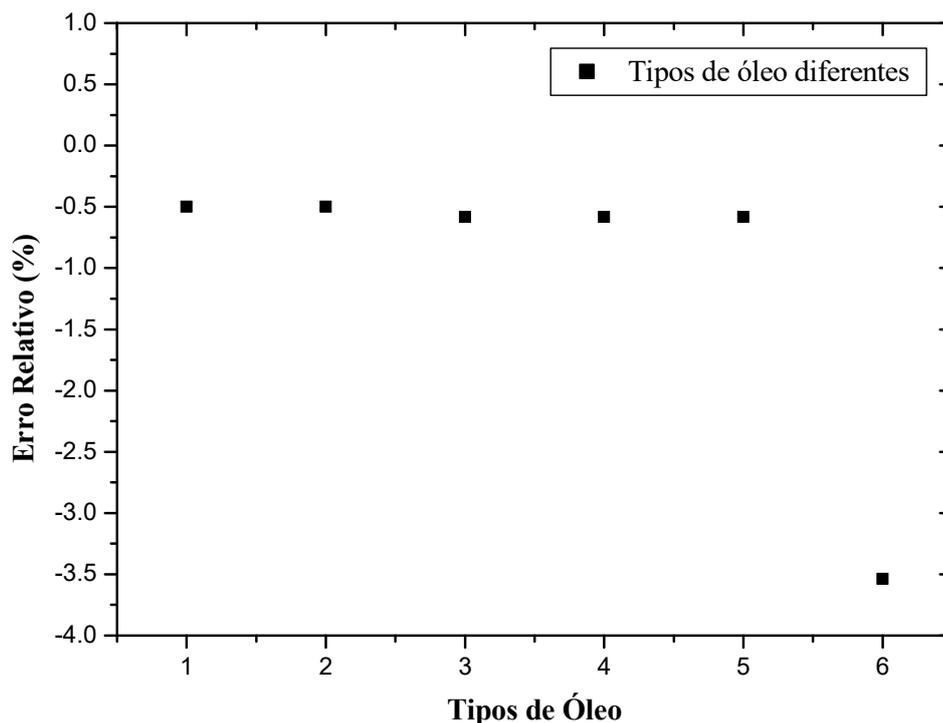


Figura 27: Influência da composição química do óleo nas simulações. (SALGADO, 2017)

Foi observado que para todos os tipos de óleo utilizados a resposta da simulação teve uma boa concordância. Os erros relativos para as diferentes composições químicas de óleo (Tipo 1 a 5) estudadas apresentaram valores em torno de 0,5% indicando que este parâmetro tem pouca influência na medida da região fotoelétrica da DAP, o que permite a utilização de qualquer uma das cadeias utilizadas no estudo. No entanto, óleo Tipo 6 apresenta um erro relativo de 3,5%, pois como pode ser visto na Tabela 3 este composto possui elevada concentração de cloro que apresenta alto número atômico.

Estes resultados estão de acordo com Salinas et al., (2006) menciona que variações nas composição química nos tipos de óleo não tem significância para elementos químicos envolvidos com valores similares de número atômico.

O estudo considerou como referência a densidade predeterminada no item 4.2 i para o óleo nas medidas experimentais e para avaliar a influência desse parâmetro foi considerado um acréscimo na densidade de  $\pm 0,1$  e  $\pm 0,2$  ( $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) ao valor de referência e verificou-se que para a densidade de  $0,852 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  o erro relativo para o fotopico foi de aproximadamente 5% e para o valor de  $0,952 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  foi em torno de 12%, conforme pode ser visualizado na *Figura 28*. A mesma variação foi verificada para o caso do decréscimo da densidade. Como conclusão do estudo tem-se que a contribuição da densidade é um fator de grande impacto na resposta da região fotoelétrica da DAP.

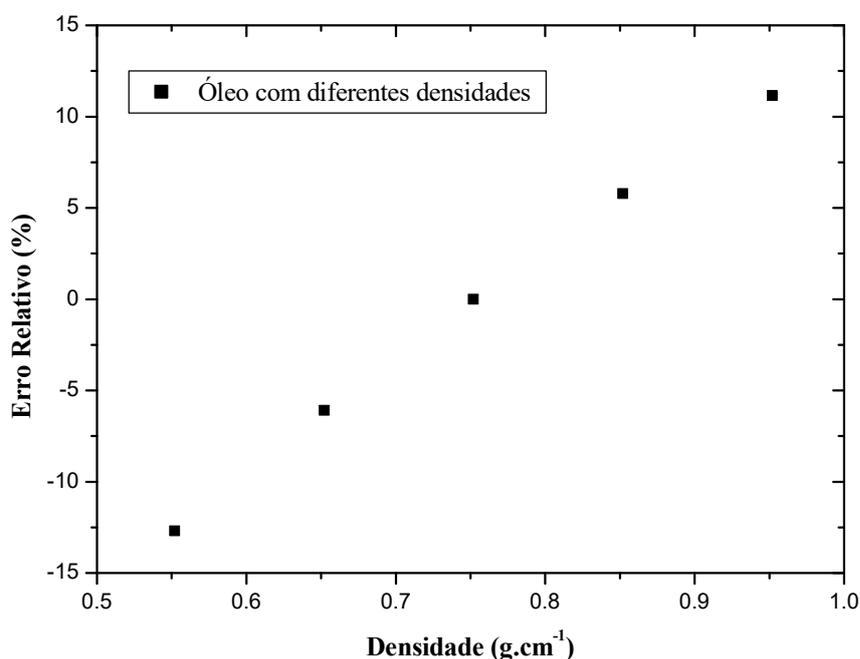


Figura 28: Influência da densidade do óleo nas simulações.  
(SALGADO, 2017)

### iii) Coeficiente de atenuação linear do óleo

O resultado realizado com um material de referência - água pura ( $\text{H}_2\text{O}$ ) - mostrou boa concordância com os valores teóricos tabelados pelo NIST, apresentando erro relativo de 1,38%. Com o modelo matemático validado, procedeu-se então ao cálculo do coeficiente de atenuação linear do óleo. Após a linearização da Equação 3, o coeficiente de atenuação linear é representado pelo coeficiente angular. Para a água o coeficiente é  $0,08499 \text{ cm}^{-1}$  e para o óleo é  $0,06414 \text{ cm}^{-1}$ , conforme apresentados na *Figura 29*.

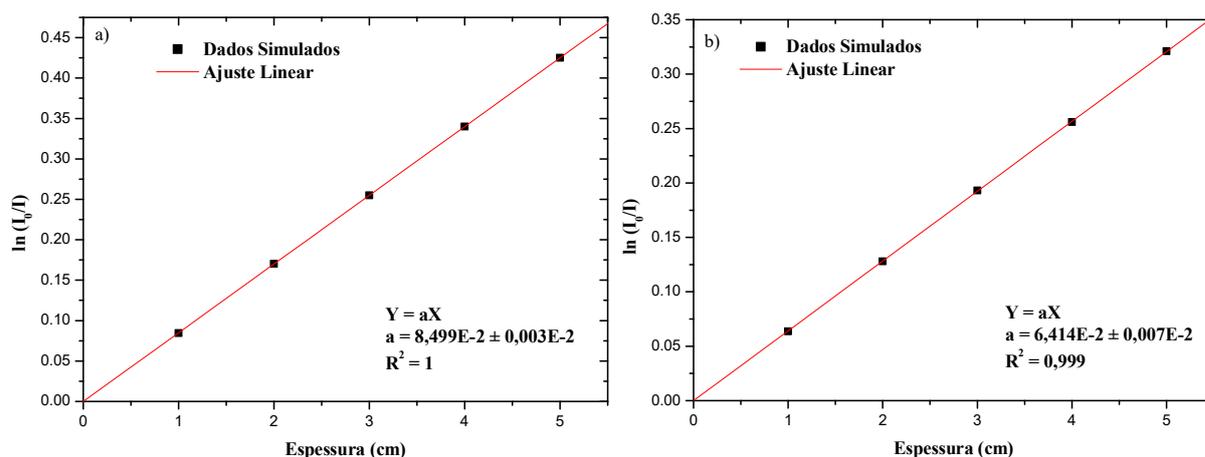


Figura 29: Coeficiente de atenuação mássico para: a) água pura; b) óleo.  
(SALGADO, 2017)

Vale destacar que o valor do coeficiente de atenuação linear do óleo juntamente com sua densidade determinada experimentalmente foi utilizado em todas as simulações com o código MCNPX.

### 4.3 VALIDAÇÃO DA GEOMETRIA PROPOSTA

Para a validação da geometria de medida, primeiramente realizou-se um estudo sobre qual região do espectro será analisada. Foram simulados casos com diferentes frações de volume correspondente a 50%, 60%, 70%, 80% e 90% de água, os espectros obtidos podem ser visualizados na Figura 30.

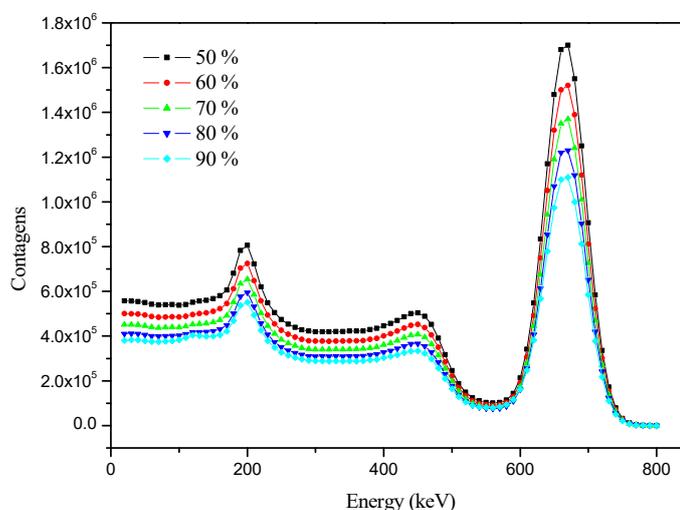


Figura 30: DAPs obtidas considerando as frações do volume de água.  
(SALGADO, 2017)

O cálculo da fração de volume utilizando as medidas por transmissão foi realizado por meio das contagens referentes ao fotopico, uma vez que a região de absorção total de energia está bem caracterizada, como pode ser visto na *Figura 30*. Os resultados das frações volumétricas foram obtidos por meio da Equação 27, esses resultados são mostrados na Tabela 6.

Tabela 6: Comparação dos resultados obtidos através da solução analítica e do código MCNPX

Fração de Volume de Água (%)		
Equação Analítica	Código MCNPX	Erro Relativo (%)
50	49,8	0,4
60	60,1	-0,2
70	69,7	0,4
80	79,6	0,4
90	89,5	0,5

A partir destes resultados, iniciou-se a verificação do sistema (alinhamento, colimação e fração de volume) de medida baseado na geometria com feixe transmitido. As DAPs obtidas experimentalmente, em um período de 20h, são mostradas na *Figura 31*.

Para o experimento com 50% de água, a fração de volume foi calculada utilizando a Equação 16, foi de 48,45% com erro relativo de 3,08%. Este resultado indica que o sistema de medida comparada com as equações analíticas está coerente.

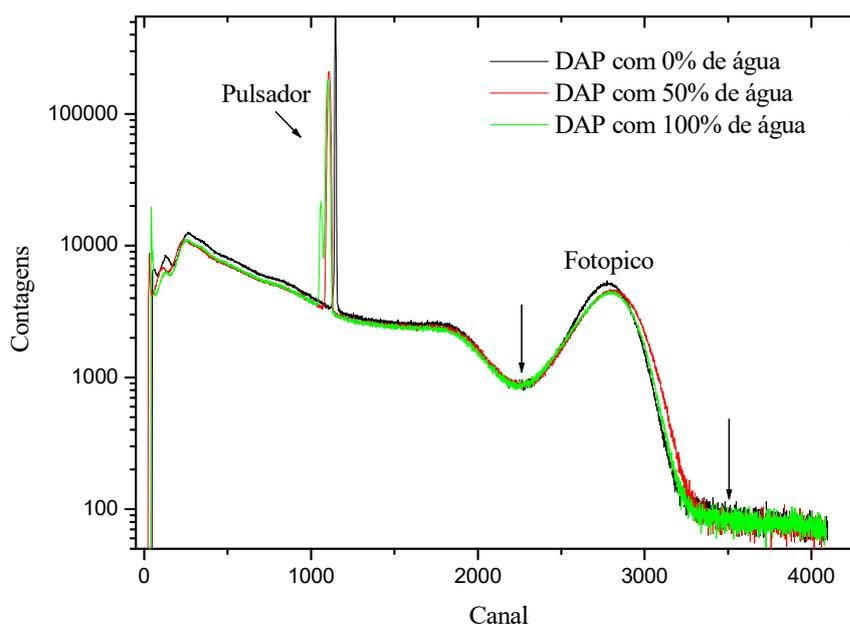


Figura 31: Registro experimental das DAPs para as situações de 0% de água (100% de óleo), 50% de água e 100% de água. (SALGADO, 2017)

É importante destacar que os picos que se encontram na faixa de 1100 canais são devidos a um gerador de pulsos que foi instalado na cadeia espectrométrica para verificar a estabilidade do sistema espectrométrico. Como pode ser visto na Figura 31, ocorreram deslocamentos nos centróides nas DAPs, mas não interferiu no tratamento dos dados, visto que foi utilizada uma janela entre os canais 2300 e 3500 que englobou todos os fotopicos. Para essa região foi efetuada a correção do *background* e a eliminação da contribuição do espalhamento Compton nos espectros.

Após validação teórica do experimento, iniciou-se a simulação para determinar a extensão da região de interface. Foram feitas simulações com diferentes frações de volume de água e os resultados são mostrados na Figura 32.

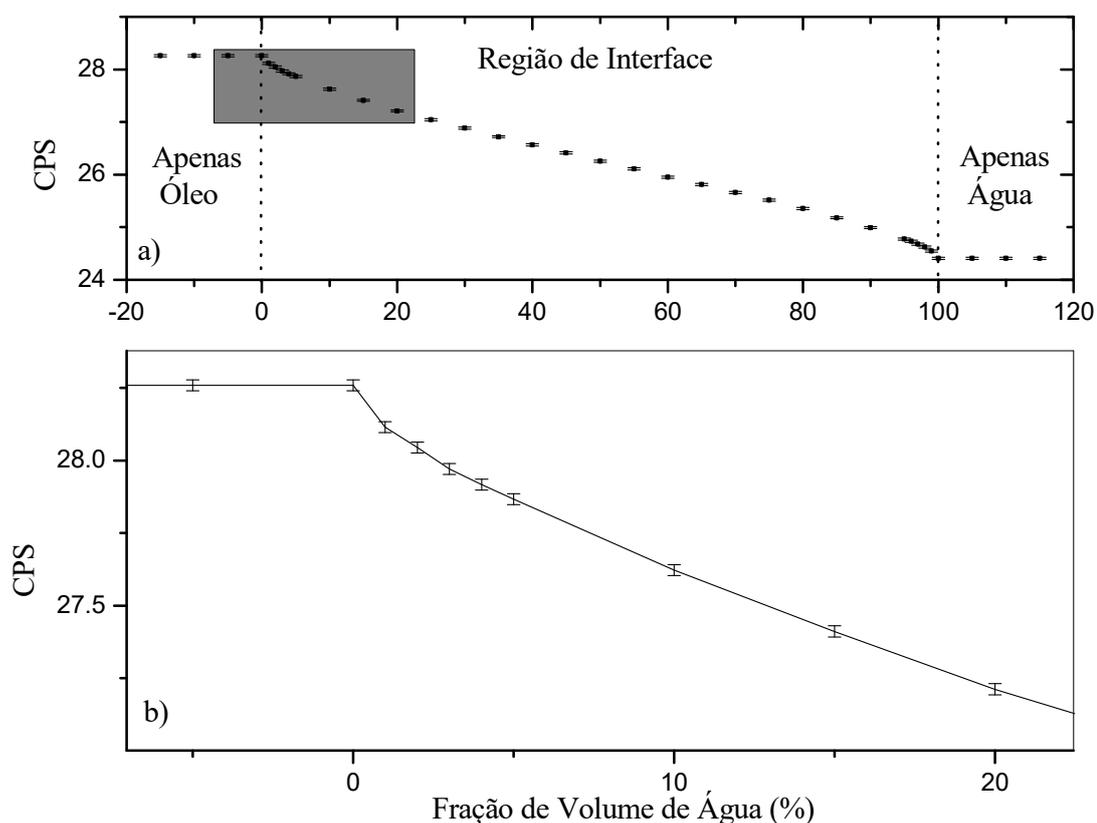


Figura 32: Curva da contagem registradas nos detectores cintiladores em função da fração de volume água/óleo para determinação da região de interface: a) intervalo entre 0% e 100% de água; b) Detalhe expandido entre 0% e 20% de água.  
(SALGADO, 2017)

Os valores de fração de volume de água menores que 0% (100% de óleo) e maiores que 100% foram inseridos no gráfico para simular uma leitura constante do detector quando existir apenas um produto dentro da tubulação. A incerteza foi calculada de forma experimental a partir das contagens por segundo obtidas com o duto totalmente cheio de óleo e cheio de

água. Para questão de extrapolação da incerteza foi utilizado o maior valor. Foi observado que é possível de determinar a região de interface com boa precisão, visto que a metodologia permite a identificação de fração de volume com índice de contaminação abaixo de 1%.

## 5 CONCLUSÃO

A utilização das técnicas de atenuação de radiação gama, por meio de sistemas de detecção projetados com auxílio de simulações usando o método de Monte Carlo permitiu o desenvolvimento de uma metodologia, independentemente do regime de fluxo dominante, foi capaz de identificar a região de interface no transporte de produtos em polidutos com uma incerteza abaixo de 1%.

A utilização do código MCNPX mostrou-se eficaz na elaboração do modelo a ser utilizado na identificação da região de interface. Assim como, na geração de um maior número de dados em um menor tempo de medição e menor exposição à radiação. O modelo matemático desenvolvido no código considerou as curvas-resposta dos detectores de radiação reais (resolução em energia e eficiência de contagem), o que torna o modelo bem mais realístico.

O projeto e montagem do aparato experimental mostraram-se adequado à pesquisa atual. A calibração do conjunto de detecção foi alcançada de forma a obter uma calibração segura, que proporcionou uma aquisição de dados confiáveis

Os resultados indicam que a metodologia proposta é promissora e adequada para a solução deste problema e pode ser utilizada para o desenvolvimento de um sistema real, permitindo um dispositivo compacto com alta velocidade e precisão no tratamento das informações tendo grande aplicação na indústria.

Como trabalhos futuros ficam as seguintes propostas:

- Avaliar a sensibilidade de uma metodologia utilizando espalhamento Compton;
- Utilização de Redes Neurais Artificiais para automatizar a decisão da definição da região de interface, mesmo em escoamento com maiores complexidades;
- Aplicar a metodologia em seções de teste dinâmicas.

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

ABDULRAHMAN, A. A., & SHOKIR, E. M. (2011). Artificial neural networks modeling for hydrocarbon gas viscosity and density estimation. *Journal of King Saud University - Engineering Sciences* , 23, pp. 123-129.

ABOUELWafa, M. S., & KENDALL, S. M. (1980). The measurement of component ratios in multiphase systems using gamma-ray attenuation. *Journal of Physics E: Scientific Instruments* , 13, pp. 341-345.

AUSTIN, J. E., & Palfrey, J. R. (1964). Mixing of miscible but dissimilar liquids in serial flow in pipelines. *Proceeding of Institution of Mechanical Engineers* , 178, pp. 377-395.

BARBOSA, C. M. (2016). *Determinação de Salinidade em Meio Aquoso Empregando Radiação Gama para Predição de Frações de Volume*. Dissertação de Mestrado - Instituto de Engenharia Nuclear, Cidade Universitária.

BERGER, M. J., & SELTZER, S. M. (1972). Response functions for sodium iodide scintillation detectors. *Nuclear Instruments and Methods* , 104, pp. 317-332.

BIRGE, E. A. (1947). Contamination control in products pipelines. *Oil and Gas Journal* , 46, p. 176.

CAFARO, D. C., & CERDÁ, J. (2007). Dynamic scheduling of multiproduct pipelines with multiple delivery due dates. *Computers and Chemical Engineering* , pp. 728-753.

CANDEIRO, R. E. (2008). *Unidade compacta para produção de radiotraçador gasoso CH<sub>3</sub>82Br e desenvolvimento de metodologia para inspeção em instalações industriais*. Tese Doutorado (Tese em Engenharia Nuclear) - COPPE/UFRJ, Rio de Janeiro.

CHIKWENDU, S. C., & OJIAKOR, G. U. (1985). Slow-zone model for longitudinal dispersion in tow-dimensional shear flows. *Journal of Fluid Mechanics* , 152, pp. 15-38.

CONTI, C. C. (1999). *Medida de KERMA no ar e determinação de coeficientes de conversão para dose devido à radiação gama ambiental*. Tese Doutorado (Tese em Engenharia Nuclear) - COPPE/UFRJ, Rio de Janeiro.

DANCKWERTS, P. V. (1953). Continuous flow systems - distribution of residence times. *Chemical Engineering Science* , pp. 1-13.

DEBERTIN, K., & HELMER, R. G. (1988). *Gamma- and X-ray Spectrometry with Semiconductor Detectors* (2 ed.). Amsterdam: North-Holland.

EL ABD, A. (2014). Intercomparison of gamma ray scattering and transmission techniques for gas volume fraction measurements in two phase pipe flow. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* , 735, pp. 260-266.

EWA, I. O., BODIZS, D., CZIFRUS, S. Z., & MOLNAR, Z. S. (2001). Monte Carlo determination of full energy peak efficiency for a HPGe detector. *Nuclear Instruments and methods in Physics Research* , 479, pp. 618-630.

FOWLER, F. C., & BROWN, G. G. (1943). Contamination by successive flow in pipe lines. *Transactions of the American Institute of Chemical Engineers* , 39, pp. 491-516.

GOMES, A. A., RACHID, F. B., & ARAUJO, J. H. (2002). Modeling of contamination in pipeline batch transfers. *Proceedings of the ENCIT* .

HIMMELBLAU, D. M., & BISCHOFF, K. B. (1968). *Process Analysis and Simulation* (2 ed.). Nova Jersey: John Wiley and Sons.

JONES, W. M., & PADDOCK, K. F. (1982). *Transport by pipeline*. In: Hobson, G.D., editor, *Modern petroleum technology*. Nova Jersey: John Wiley & Sons.

KHORSANDI, M., & FEGHHI, S. A. (2011). Design and construction of a prototype gamma-ray densitometer for petroleum products monitoring applications. *Measurement* , 44, pp. 1512-1515.

KNOLL, G. F. (1989). *Radiation Detection and Measurement* (2 ed.). Nova Jersey: John Wiley & Sons, Inc.

KOTCHETKOFF, A. P. (2009). *Estudo de tratamento de interface proveniente de polidutos*. Dissertação de Mestrado (Dissertação em Engenharia Química) - UFU, Uberlândia.

LANL. (2003). *MCNP - A general Monte Carlo n-particle transport code* (5 ed., Vol. Volume I: Overview and Theory). New Mexico: Los Alamos National Laboratory.

LEIPUNSKI, O., NOVOZHILOV, B., & SAKHAROV, V. (1965). *The propagation of gamma quanta in matter* (Vol. 6). Oxford: Pergamon Student.

LEVENSPIEL, O., & SMITH, W. K. (1957). Notes on the diffusion-type model for the longitudinal mixing of fluids in flow. *Chemical Engineering Science* , 6, pp. 227-233.

MARTINOIA, T. M. (2016). *Impacto de operações transiente na mistura interfacial em polidutos*. Dissertação de Mestrado (Dissertação em Engenharia Mecânica) - PUC-Rio, Rio de Janeiro.

MAUCEC, M., & DENIJS, I. (2009). Development and calibration of a gamma-ray density meter for sediment-like materials. *Applied Radiation and Isotopes* , 67, pp. 1829-1836.

MCCONN, R., GESH, J. C., PAGH, T. R., RUCKER, A. R., & WILLIAMS, R. (2011). *Compendium of material composition data for radiation transport modeling*.

MI, Y., ISHII, M., & TSOUKALAS, L. H. (1998). Vertical two-phase flow identification using advanced instrumentation and neural networks. *Nuclear Engineering and Design* , 184, pp. 409-420.

MOSS, C. E., & STRETMAN, J. R. (1990). Comparison of Calculated and Measured Response Functions for Germanium Detectors. *Nuclear Instruments and Methods* , 299, pp. 98-101.

NAKAMURA, T. (1983). Monte Carlo Calculation of Peak Efficiencies of Ge(Li) and Pure Ge Detectors to Volumial Sources and Comparison with Environmental Radioactivity Measurement. *Nuclear Instruments and Methods* , 205, pp. 211-218.

NASSER, R. B. (2012). *McCloud service framework: arcabouço para desenvolvimento de serviços baseados na simulação de Monte Carlo na Cloud*. Dissertação de Mestrado (Dissertação em Informática) - PUC-Rio, Rio de Janeiro.

NIST. (s.d.). Acesso em 05 de 01 de 2018, disponível em X-Ray Mass Attenuation Coefficients: <http://physics.nist.gov/PhysRefData/XrayMassCoef/ElemTab/z73.html>

PANI, R., LAITANO, R. F., & PELLEGRINI, R. (1987). Diagnostic X-ray Spectra Measurements Using a Silicon Surface Barrier Detector. *Physics in Medicine and Biology* , 32, pp. 1135-1149.

PATRACHARI, A. R. (2012). *Deterministic models to explain the phenomenon of interfacial mixig in refined products pipelines*. Tese de Doutorado - Oklahoma State University, Oklahoma.

PELOWITZ, D. B. (2005). *MCNP-X Tm User's Manual* (2.5 ed.). New Mexico: Los Alamos National Laboratory.

REBGETZ, M. D., WATT, J. S., & ZASTAWNY, H. W. (1991). Determination of the volume fractions of oil/water/gas by dual energy gamma-ray transmission. *Nuclear Geophysics - International Journal Radiation Applied Instruments* , 5, p. 479.

SAITO, K., & MORIUCHI, S. (1981). Monte Carlo calculation of a accurate response functions for NaI(Tl) detector for gamma rays. *Nuclear Instruments and Methods* , 185, pp. 299-308.

SALGADO, C. M., BRANDÃO, L. E., CONTI, C. C., & SALGADO, W. L. (2016). Density prediction for petroleum and derivatives by gamma-ray attenuation and artificial neural networks. *Applied Radiation and Isotopes* , 116, pp. 143-149.

SALGADO, C. M., BRANDÃO, L. E., NASCIMENTO, C. M., SCHIRRU, R., RAMOS, R., & SILVA, A. X. (2009). Prediction of volume fractions in three-phase flows using nuclear technique and artificial neural network. *Applied Radiation and Isotopes* , 67, pp. 1812-1818.

SALGADO, C. M., BRANDÃO, L. E., SCHIRRU, R., PEREIRA, C. M., & CONTI, C. C. (2012). Validation of a NaI(Tl) detector's model developed with MCNP-X code. *Progress in Nuclear Energy* , 59, pp. 19-25.

SALGADO, C. M., PEREIRA, C. M., SHIRRU, R., & BRANDÃO, L. E. (2010). Flow regime identification and volume fraction prediction in multiphase flows by means of gamma-ray attenuation and artificial neural networks. *Progress in Nuclear Energy* , 52, pp. 555-562.

SALGADO, W. L., & BRANDÃO, L. E. (2017). Study of volume fractions on biphasic stratified regime using gamma ray. *International Nuclear Atlantic Conference - INAC*. Belo Horizonte: ABEN.

SALINAS, I. C., CONTI, C. C., & LOPES, R. T. (2006). Effective density and mass attenuation coefficient fo rbuilding material in Brazil. *Applied Radiation and Isotopes* , 64, pp. 13-18.

SHI, H., CHEN, B., LI, T., & YUN, D. I. (2002). Precise Monte Carlo simulation of gamma-ray response functions for an NaI(Tl) detector. *Applied Radiation and Isotopes* , 57, pp. 517-524.

SIMA, O. (1990). Monte Carlo Simulation Versus Semiempirical Calculation of Autoabsorption Factors for Semiconductor Detector Calibration in Complex Geometries. *Progress in Nuclear Energy* , 24, pp. 327-336.

SMITH, S. S., & SULZE, R. K. (1948). Interfacial mixing characteristics of products in products pipeline - part 1. *The Petroleum Engineer* , 19, pp. 94-104.

SMITH, S. S., & SULZE, R. K. (1948). Interfacial mixing characteristics of products in products pipeline - part 2. *The Petroleum Engineer* , 20, pp. 330-337.

SOUZA, T. C. (2015). *Distribuição de derivados de petróleo por redes de polidutos: uma abordagem através de algoritmos evolucionários híbridos para um problema triobjetivo*. Tese Doutorado (Tese em Ciência da Computação) - UFRN, Rio Grande do Norte.

TAYLOR, G. I. (1954). The dispersion of matter in turbulent flow through a pipe. *Proceedings of the Royal Society of London, Series A, Mathematical and Physical Sciences* , 223, pp. 446-468.

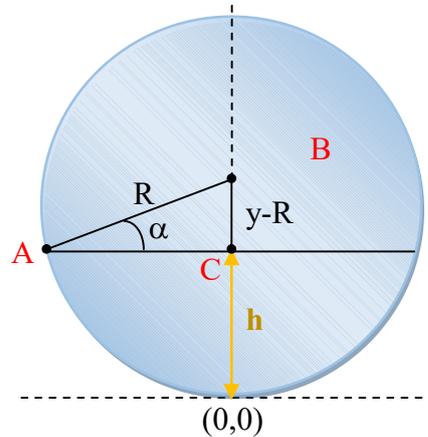
TECHO, R., & HOLBROOK, D. L. (1974). Computer scheduling the world's biggest product pipeline. *Pipeline Gas Journal* , pp. 4-27.

TRANSPETRO. (s.d.). Acesso em 27 de 01 de 2018, disponível em TRANSPETRO: [http://www.transpetro.com.br/pt\\_br/fale-conosco/canal-do-cliente/informacoes-em-atendimento-a-anp/terminais-e-oleodutos.html](http://www.transpetro.com.br/pt_br/fale-conosco/canal-do-cliente/informacoes-em-atendimento-a-anp/terminais-e-oleodutos.html)

TSOULFANIDIS, N. (1995). *Measurement and Detection of Radiation*. Washington: Taylor e Francis Group.

## APÊNDICE A

### CÁLCULO FRAÇÃO DE VOLUME REGIME ESTRATIFICADO



$$x^2 + (y - R)^2 = R^2 \therefore x(y) = \sqrt{R^2 - (y - R)^2}$$

*Equação 29*

A área desejada é dada por:

$$S(h) = 2 \cdot \int_0^h x(y) dy$$

*Equação 30*

Substituindo a Equação 29 na Equação 30, tem-se:

$$S(h) = 2 \cdot \int_0^h \sqrt{R^2 - (y - R)^2} dy$$

*Equação 31*

No triângulo  $\Delta ABC$ , tem-se:

$$\text{sen}(\alpha) = \frac{y - R}{R} \therefore y = R + R \text{sen}(\alpha)$$

*Equação 32*

Sabendo-se que:

$$\text{sen}^2(x) + \text{cos}^2(x) = 1$$

*Equação 33*

E aplicando na Equação 32:

$$\left(\frac{y-R}{R}\right)^2 + \cos^2(\alpha) = 1 \therefore \cos^2(\alpha) = \frac{R^2 - (y-R)^2}{R^2} \rightarrow \cos(\alpha) = \frac{\sqrt{R^2 - (y-R)^2}}{R}$$

*Equação 34*

Derivando a Equação 32:

$$dy = R + R\cos(\alpha)d\alpha$$

*Equação 35*

Substituindo a Equação 34 e Equação 35 na Equação 31, tem-se:

$$S(h) = 2 \cdot \int_0^h R\cos(\alpha) \cdot R\cos(\alpha)d\alpha \rightarrow S(h) = 2R^2 \int_0^h \cos^2(\alpha)d\alpha$$

*Equação 36*

Integrando:

$$S(h) = 2R^2 \left[ \frac{1}{2}(\alpha + \operatorname{sen}(\alpha) \cdot \cos(\alpha)) \right] \Big|_0^h$$

*Equação 37*

Após substituições matemáticas:

$$S(h) = R^2 \left[ \operatorname{arcsen}\left(\frac{y-R}{R}\right) + \frac{y-R}{R} \times \frac{\sqrt{R^2 - (y-R)^2}}{R} \right] \Big|_0^h$$

$$S(h) = R^2 \operatorname{arcsen}\left(\frac{y-R}{R}\right) + (y-R) \times \sqrt{R^2 - (y-R)^2} \Big|_0^h$$

$$S(h) = R^2 \operatorname{arcsen}\left(\frac{h-R}{R}\right) + (h-R) \times \sqrt{R^2 - (h-R)^2} - R^2 \operatorname{arcsen}(-1) + (-R) \times \sqrt{R^2 - (-R)^2}$$

Como:

$$R^2 \operatorname{arcsen}(-1) = \frac{3\pi}{2} \text{ e } (-R) \times \sqrt{R^2 - (-R)^2} = 0$$

Logo, é possível calcular a fração de volume em um regime de fluxo estratificado utilizando a Equação 38:

$$S(h) = \frac{\pi R^2}{2} R^2 \operatorname{arcsen}\left(\frac{h-R}{R}\right) + (h-R) \times \sqrt{R^2 - (h-R)^2}$$

*Equação 38*