

BR 9230228
INIS-BR--2990

**INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO**

**MONITORAÇÃO DOS EFLUENTES LÍQUIDOS RADIOATIVOS
GERADOS PELO IPEN-CNEN/SP. OTIMIZAÇÃO DOS
MÉTODOS DE CONTROLE EXISTENTES.**



CÉLIA REGINA SEKI

**Dissertação apresentada como parte dos
Requisitos para obtenção do Grau de
Mestre em Tecnologia Nuclear.**

ORIENTADORA: Dra. Barbara Paci Mazzilli

**SÃO PAULO
1990**

ERRATAS

<u>PÁGINA</u>	<u>LINHA</u>	<u>ESCRITO</u>	<u>CORRIGIR PARA</u>
23	05	medida gama total	medida por espectroscopia gama
23	07	maior que 0,1 MeV	de 100 keV até 3 MeV
32	10	16,5 dias	2,5 minutos
32	11	611,7 keV	661,6 keV
43	14	európio - 154	európio - 152
44	14	Eu - 154	Eu - 152
47	última coluna	Eficiência	Eficiência x 10 ²
48	07	-	em cont.
48	21	reta	curva

COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR/SP - IPEN

Aos Meus Pais
e À Tininha

AGRADECIMENTOS

À Dra. Barbara Paci Mazzilli pelo interesse demonstrado durante toda a sua dedicada orientação.

Ao Dr. Gian A. Maria Sordi pela colaboração e sugestões dadas a esta dissertação.

Ao Dr. Laércio Antonio Vinhas pelas facilidades de trabalho concedidas.

Ao Departamento de Reatores e Circuitos Experimentais, ao Departamento de Radioquímica e ao Departamento de Física Nuclear pela colaboração na ocasião da realização dos trabalhos experimentais.

Ao Msc. Tufic Madi Filho pelo constante apoio e estímulo na execução deste trabalho.

Ao Marcelo Bessa Nisti pela intensa colaboração no desenvolvimento dos trabalhos experimentais.

Aos colegas da Divisão de Monitoração Ambiental pela eficiente ajuda no desenvolvimento deste tema.

À Coordenadoria de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior - CAPES pelo apoio financeiro.

E à AQUATEC QUÍMICA S.A., em especial ao Eng. Ivan Cecchi de Matheus pelo apoio concedido durante a finalização desta Dissertação.

Por último, um especial agradecimento a todos aqueles que, por dedicação e profissionalismo me ajudaram a vencer os pequenos problemas, cuja solução fez com que os grandes desafios fossem vencidos.

**MONITORAÇÃO DOS EFLUENTES LÍQUIDOS RADIOATIVOS GERADOS PELO IPEN-
CNEN/SP. OTIMIZAÇÃO DOS MÉTODOS DE CONTROLE EXISTENTES.**

CÉLIA REGINA SEKI

R E S U M O

O alvo principal de uma monitoração de efluentes líquidos gerados em uma instalação nuclear, consiste na determinação da quantidade de material radioativo liberado para o meio ambiente, com a finalidade de confirmar se os limites de descarga estabelecidos estão sendo respeitados.

Embora o controle operacional dos efluentes líquidos seja realizado rotineiramente desde o início do funcionamento das instalações nucleares do IPEN, o crescimento dos diversos departamentos, bem como a construção de novos departamentos de pesquisa e desenvolvimento, tornaram necessária uma otimização dos métodos de controle já existentes e estabelecidos. Para tanto, desenvolveu-se este trabalho que objetiva dinamizar a rotina da Divisão de Monitoração Ambiental do IPEN-CNEN/SP, procurando otimizar os procedimentos adotados para a medida da atividade presente nos efluentes líquidos.

Todos os efluentes líquidos radioativos liberados para o meio ambiente alcançam o rio Pinheiros, o que implica na necessidade de uma monitoração periódica dessas águas, para a comprovação de que não está ocorrendo nenhum tipo de contaminação, planejada ou acidental. Para tanto, foi realizado também um estudo sobre a viabilidade de se detectar a radioatividade presente na água do rio Pinheiros decorrente dessas liberações, tendo em vista a baixa atividade liberada e os fatores de diluição envolvidos.

**MONITORING OF THE RADIOACTIVE LIQUID EFFLUENTS DISCHARGED FROM
IPEN-CNEN/SP. OPTIMIZATION OF THE PROCEDURES ADOPTED.**

CÉLIA REGINA SEKI

A B S T R A C T

The main purpose of a radioactive liquid effluents monitoring of a nuclear installation is to determine the amount of radioactivity discharged to the environment, as well as, to verify if this activity is below the authorized discharge limits established by the competent authority.

Although this control has been established on a routine basis since the beginning of operation of the nuclear installations available at IPEN, the growing of such facilities in the last years has implied in an increase in the number of samples to be analyzed. The aim of this work is, therefore, to optimize the procedures adopted in the Environmental Monitoring Division of IPEN-CNEN/SP for the activity measurement of the liquid effluents discharged to the environment.

Since these effluents are discharged to Pinheiros river, which presents a high dilution factor, a study is also carried out in order to verify if the activity present can be measured by the equipments available.

ÍNDICE

Pág.

CAPÍTULO I

INTRODUÇÃO.

I.1 - Princípios Básicos de Proteção Radiológica.....	1
I.2 - Programas de Monitoração Ambiental Pré-Operacional e Operacional.....	8
I.3 - Elaboração do Termo-Fonte.....	14
I.4 - Propósito do Trabalho.....	17

CAPÍTULO II

MONITORAÇÃO DOS EFLUENTES LÍQUIDOS RADIOATIVOS GERADOS EM UMA INSTALAÇÃO NUCLEAR - ASPECTOS GERAIS E CONTROLE REALIZADO NO IPEN.

II.1 - Origem dos Efluentes Líquidos Radioativos.....	19
II.2 - Principais Objetivos da Monitoração de Efluentes Líquidos.....	21
II.3 - Técnicas de Medida.....	24

II.4 - Descrição do Método já Existente para a Monitoração de Efluentes Líquidos Radioativos Gerados pelo IPEN.....	25
II.5 - Levantamento da Atividade Liberada dos Radionuclídeos Gerados como Efluente Líquido pelas Diversas Instalações do IPEN.....	33

CAPÍTULO III

OTIMIZAÇÃO DO MÉTODO DE CONTROLE DOS EFLUENTES LÍQUIDOS RADIOATIVOS GERADOS PELO IPEN.

III.1 - Introdução.....	38
III.2 - Determinação da Taxa de Contagem Específica dos Radionuclídeos Liberados como Efluente Líquido, levando-se em consideração o Limite Diário de Descarga.....	40
III.2.1 - Determinação da Reta de Calibração.....	43
III.2.2 - Determinação da Curva de Eficiência.....	45
III.2.3 - Cálculo do Limite Inferior de Detecção.....	50
III.2.3.1 - Determinação da Largura na Meia Altura para o Fotopico do cobalto-60	52

III.3 - Cálculo do Tempo Otimizado de Contagem	54
III.4 - Determinação da Taxa de Contagem dos Radionuclídeos Liberados como Efluente Líquido, levando-se em consideração os Limites de Incorporação Anual por Ingestão	59
III.5 - Cálculo do "Fator de Segurança".....	60

CAPÍTULO IV

ESTUDO DOS NÍVEIS DE CONTAMINAÇÃO EM AMOSTRAS LÍQUIDAS AMBIENTAIS.

IV.1 - Introdução.....	64
IV.2 - Determinação dos Fatores de Concentração.....	67
IV.2.1 - Reagentes Utilizados.....	67
IV.2.2 - Traçadores Radioativos.....	68
IV.2.2.1 - Preparo da Solução de Traçador de ^{24}Na	69
IV.2.2.1.1 - Irradiação.....	69
IV.2.2.1.2 - Dissolução.....	70
IV.2.2.2 - Preparo da Solução de Traçador de ^{60}Co	70
IV.2.2.2.1 - Irradiação.....	70
IV.2.2.3 - Preparo da Solução de Traçador de ^{125}Sb	71
IV.2.2.3.1 - Irradiação.....	71

	Pág.
IV.2.3 - Equipamentos.....	71
IV.2.4 - Metodologia.....	72
IV.2.4.1 - Preparo da Solução Simulada.....	72
IV.2.4.2 - Preparo da Coluna Trocadora Catiônica.....	73
IV.2.4.3 - Preparo da Coluna Trocadora Aniônica.....	75
IV.2.4.4 - Eluição da Solução Carga.....	77
IV.2.4.5 - Eluição das Colunas Trocadoras Catiônica e Aniônica com Ácido Clorídrico.....	77
IV.2.4.6 - Cálculo das Porcentagens de Retenção e Recuperação.....	78
IV.3 - Avaliação da Concentração de Material Radioativo nas Águas do Rio Pinheiros.....	80
IV.4 - Determinação dos Volumes de Água do Rio Pinheiros a serem amostrados.....	81

CAPÍTULO V

V. CONCLUSÃO	86
Referências Bibliográficas	86

ÍNDICE DAS FIGURAS

Figura	Título	Pág.
I.1	Frequência de Fatalidades de Eventos Naturais.....	2
I.2	Frequência de Fatalidades de Eventos Causados pelo Homem.....	3
I.3	Relação entre o Custo da Proteção Radiológica e o Custo do Detrimento.....	7
I.4	Principais Processos que Causam o Transporte de Radionuclídeos no Ecossistema.....	9
II.1	Desenho Esquemático do Sistema de Contagem.....	29
II.2	Desenho do Frasco Marinelli.....	30
III.1	Reta de Calibração.....	46
III.2	Determinação da Curva de Eficiência utilizando-se o Programa SAS.....	49
III.3	Curva Contagem x Canal do Pico do cobalto-60 (1.173,2 keV).....	55
IV.1	Espectro da Solução Carga.....	74
IV.2	Sistema de Troca Iônica.....	78

ÍNDICE DAS TABRLAS

Tabela	Título	Pág.
II.1	Radionuclídeos liberados pelo IPEN como Efluente Líquido (em termos de % de Atividade).....	34
III.1	Características dos Principais Radio- nuclídeos Emissores Gama Liberados como Efluente Líquido pelas Diversas Instalações do IPEN.....	39
III.2	Taxa de Contagem Específica (Nesp) em cps/L dos Radionuclídeos Liberados como Efluente Líquido, Levando-se em Consideração o Limite Diário de Des- carga (LDD) em $\mu\text{Ci}/\text{dia}$	42
III.3	Energias das Fontes Utilizadas na Calibração e o Respectivo Canal.....	44
III.4	Eficiência para cada Energia do europio-152.....	47
III.5	Limite Inferior de Detecção (LID) para Tempo de Contagem igual a 1.000 segundos em cps/L.....	53
III.6	Tempo de Contagem Otimizeado (Tot) em min.....	56

Tabela	Título	Pág.
III.7	Taxa de Contagem (M) em cps/L dos Radionuclídeos Liberados como Efluente Líquido, Levando-se em Consideração os Limites de Incorporação Anual por Ingestão (LIAI) em $\mu\text{Ci}/\text{ano}$	61
III.8	Fator de Segurança.....	63
IV.1	Porcentagem de Retenção e Recuperação nas Colunas Trocadoras Aniônica e Catiônica, utilizando-se uma solução de HCl 6N como eluente.....	79
IV.2	Concentração dos Radionuclídeos em Estudo nas Águas do Rio Pinheiros.....	82
IV.3	Volume de Água do Rio Pinheiros a ser amostrado.....	85

CAPÍTULO I

I - INTRODUÇÃO.

I.1 - PRINCÍPIOS BÁSICOS DE PROTEÇÃO RADIOLÓGICA.

A indústria nuclear, como qualquer atividade humana, apresenta um certo risco para a população. A Comissão Internacional de Proteção Radiológica - ICRP, principal organismo internacional no assunto, estabelece normas que visam proteger o trabalhador, o indivíduo do público e o seu ambiente dos efeitos nocivos da radiação. A ICRP ao fixar os limites de dose de radiação, procurou enquadrar a indústria nuclear entre as indústrias internacionalmente consideradas como as "mais seguras" (10).

As Figuras I.1 e I.2 mostram a frequência de fatalidades por alguns eventos naturais e por outros artificiais produzidos pelo homem, comparadas com as fatalidades causadas por 100 reatores nucleares de potência (20).

Os princípios básicos de Proteção Radiológica são relacionados a seguir (4,17,18):

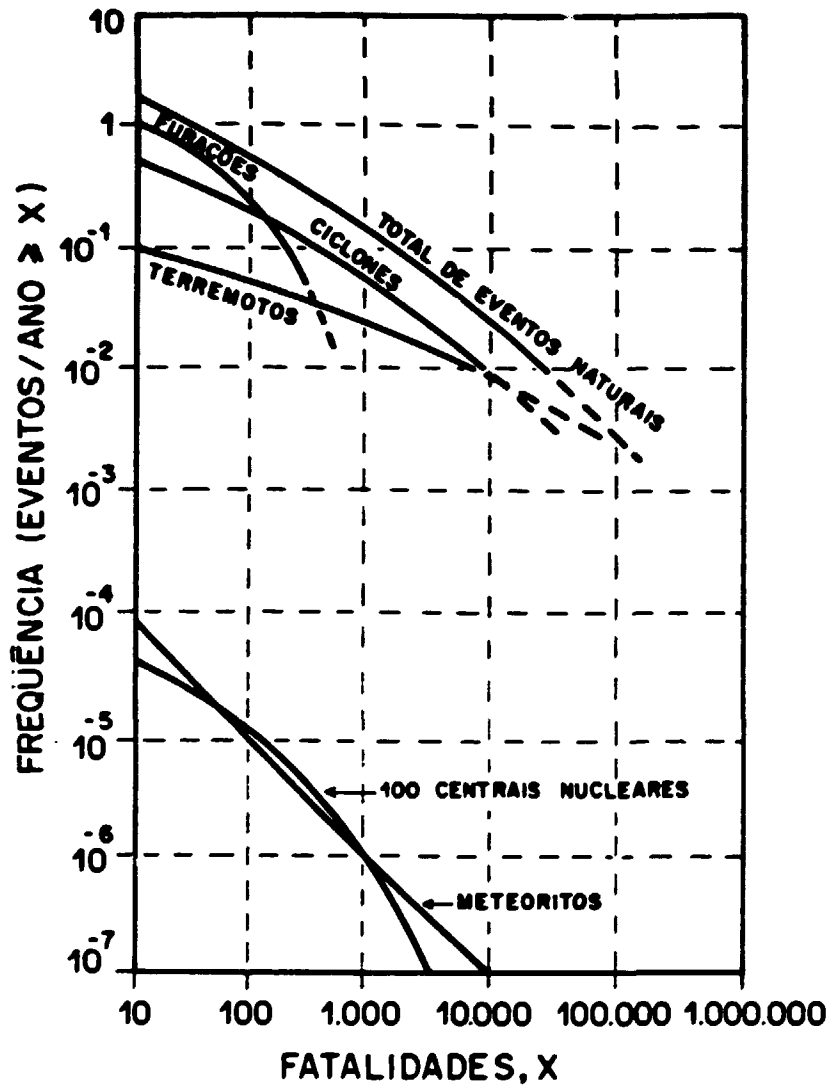


FIG.1.1 - FREQUÊNCIA DE FATALIDADES DE EVENTOS NATURAIS.

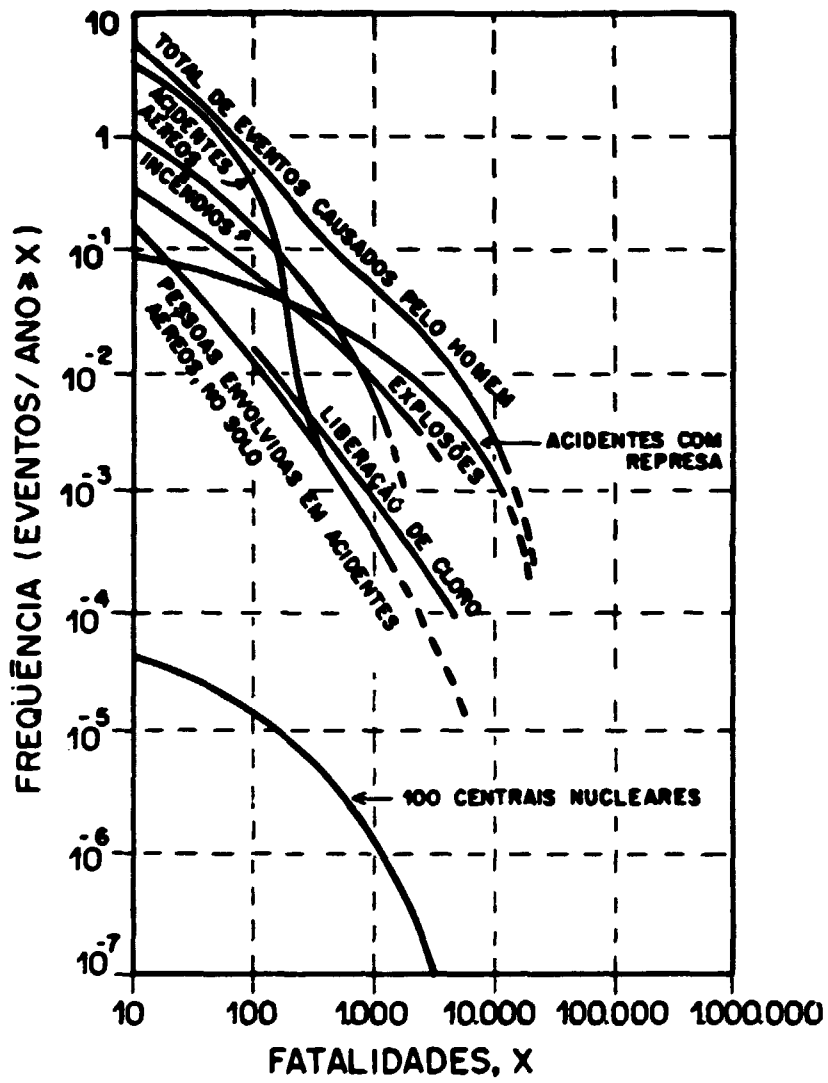


FIG. I.2- FREQUÊNCIA DE FATALIDADES DE EVENTOS CAUSADOS PELO HOMEM.

- 1) Não se deve adotar qualquer atividade envolvendo radiação a não ser que sua introdução produza um benefício líquido positivo.
- 2) As doses devem ser mantidas em níveis tão baixos quanto razoavelmente exequíveis, levando-se em conta fatores econômicos e sociais.
- 3) A dose equivalente para os indivíduos não deverá exceder os limites recomendados.

Entende-se por dose equivalente uma grandeza composta, que procura avaliar o dano biológico em função da dissipação da energia no corpo ou no órgão.

Analicamente, é expressa pela seguinte equação:

$$H = D \times Q \times N \quad (I.1)$$

onde: H = dose equivalente
 D = dose absorvida
 Q = fator de qualidade
 N = produto de todos os outros fatores modificadores

O primeiro requisito, isto é, a adoção de qualquer atividade ligada à energia nuclear, é na maioria dos casos de competência dos Órgãos Nacionais de Energia Nuclear, no nosso caso, a Comissão Nacional de Energia Nuclear - CNEN, pois trata-se de uma decisão que além dos fatores sócio-econômicos, deve considerar decisões políticas.

O benefício líquido positivo pode ser avaliado pela equação custo-benefício que pode ser expressa pela relação:

$$B = V - (P + X + Y) \quad (I.2)$$

onde: B = benefício líquido

V = benefício bruto

P = custo da produção básica até a desativação da atividade

X = custo para alcançar um nível selecionado de proteção

Y = custo do detrimento biológico causado pela operação ou produção

A autoridade considerará uma atividade justificável, só quando o valor de B for positivo.

O segundo requisito, em que as doses de radiação devem ser mantidas em níveis tão baixos quanto razoavelmente exequíveis, implica numa otimização da Proteção Radiológica. Esta é obtida por meio de uma análise diferencial custo-benefício.

Uma vez que a autoridade aprove uma atividade como tendo benefício líquido positivo, pode-se em geral, considerar que o benefício bruto (V) e o custo total da produção (P) são constantes. Neste caso, o benefício líquido (B) será máximo quando a soma do custo da Proteção Radiológica e o custo do detrimento (X + Y) for mínima.

A Figura I.3 mostra a relação entre o custo da Proteção Radiológica (X) e o custo do detrimento (Y).

Para se chegar ao terceiro requisito, é necessário determinar os limites derivados a partir dos limites estabelecidos pelas normas de Proteção Radiológica.

No caso dos indivíduos do público, devem ser determinados os Limites Derivados de Descarga (LDD) que representam a atividade anual de uma dada composição isotópica que, se liberada no ambiente, resultará num compromisso de dose no grupo crítico igual ao limite de dose^(4.8).

Entende-se por grupo crítico, o conjunto de indivíduos da população que recebe a maior dose e deve ser selecionado visando a obter um grupo razoavelmente homogêneo no que se refere a seus usos e costumes.

Para se determinar a dose na população, necessita-se conhecer o tipo de material que é liberado no ambiente pela instalação nuclear, e saber como esse material radioativo se difunde e chega ao homem.

Os efluentes radioativos eliminados no ambiente percorrem diversos caminhos, por meio das vias de transferência, até chegarem ao homem. Seu movimento pode ser descrito matematicamente por modelos de compartimento.

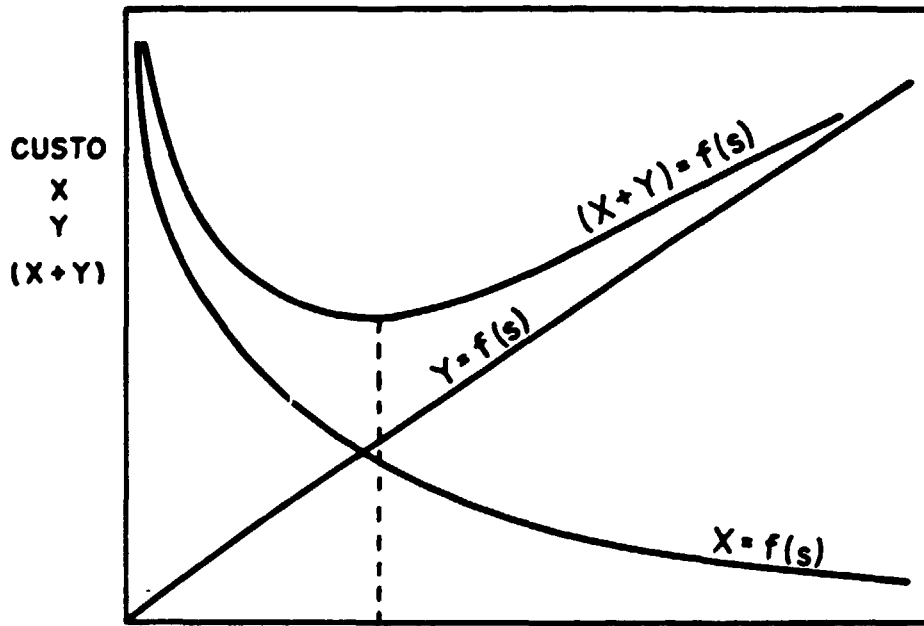


FIG.I.3 - RELAÇÃO ENTRE O CUSTO DA PROTEÇÃO RADIOLOGICA E O CUSTO DO DETRIMENTO.

A Figura I.4 apresenta um modelo típico de vias de transferência para a eliminação de efluentes no ar e na água⁽⁴¹⁾.

As vias de transferência que produzem a maior dose no homem são conhecidas como vias críticas. Estas são características peculiares de cada instalação nuclear e dependem das condições ambientais, da topografia, hábitos alimentares e distribuição da população^(4.14.9.10.15.16).

I.2 - PROGRAMAS DE MONITORAÇÃO AMBIENTAL PRÉ-OPERACIONAL E OPERACIONAL.

O critério para se avaliar o local de construção de uma instalação nuclear está baseado nas condições ambientais, especificamente fatores geológicos, hidrológicos e meteorológicos e outros fatores tais como densidade da população, utilização da terra pelo homem, hábitos alimentares, etc. É necessário também conhecer a radioatividade natural nesta região, com o objetivo de determinar as variações produzidas por futuras descargas de material radioativo proveniente da instalação.

Os principais contribuintes à radioatividade natural são os radionuclídeos das séries radioativas naturais, juntamente com o potássio-40 e a radiação cósmica.

A análise das condições ambientais e de outros fatores mencionados acima é conhecida como análise pré-operacional e é

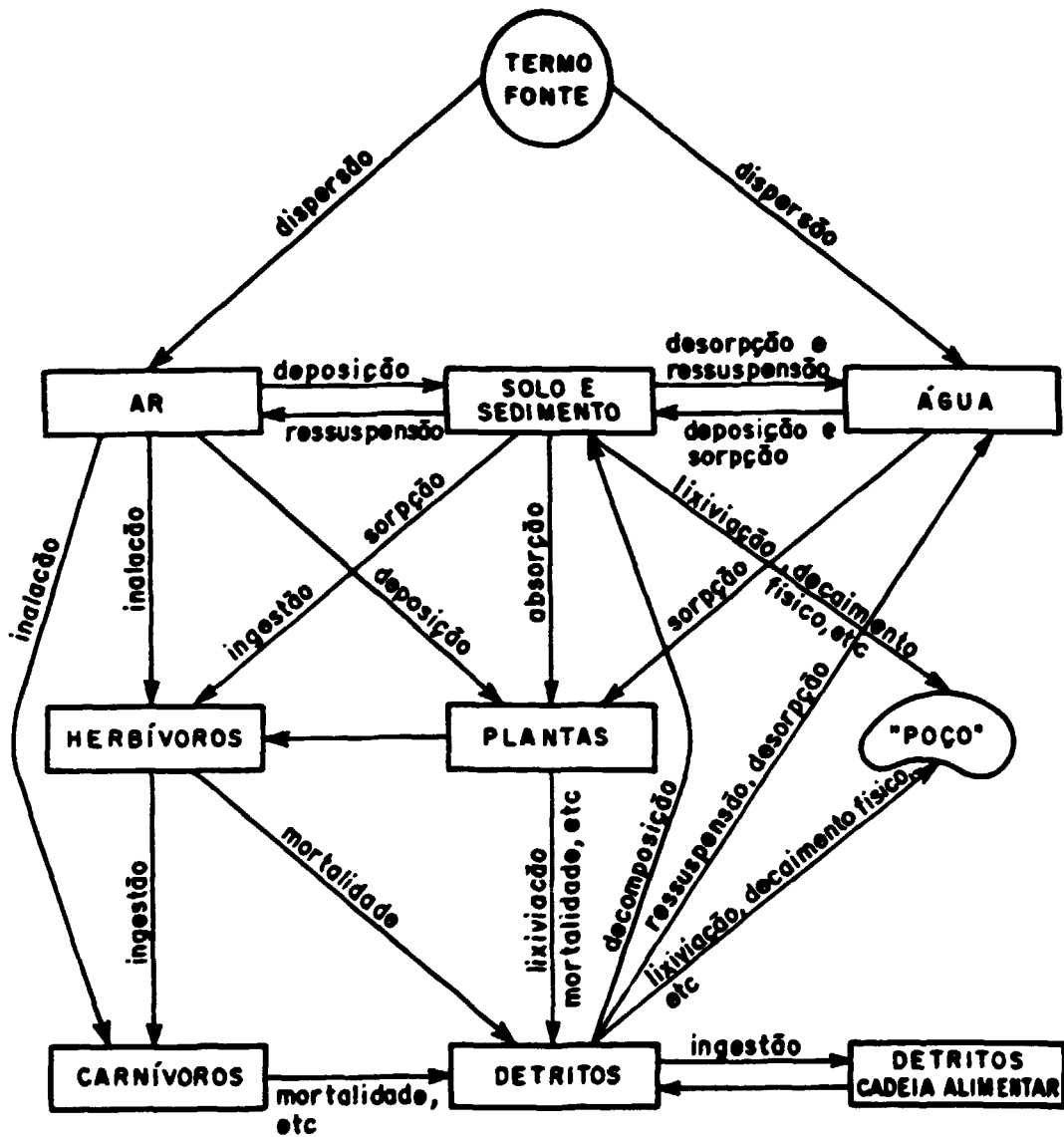


FIG.I.4 - PRINCIPAIS PROCESSOS QUE CAUSAM O TRANSPORTE DE RADIONUCLÍDEOS NO ECOSISTEMA. OS BLOCOS REPRESENTAM OS COMPONENTES DO ECOSISTEMA ENQUANTO QUE AS SETAS REPRESENTAM O CURSO DOS MATERIAIS ATRAVÉS DOS PROCESSOS FUNCIONAIS.

necessária para o estabelecimento de limites e condições de descargas radioativas de uma instalação nuclear para o ambiente. A análise pré-operacional inclui o estudo dos seguintes tópicos(15,16):

- os tipos e atividades dos radionuclídeos a serem liberados pela instalação nuclear, suas propriedades físico-químicas e as vias e taxas de descarga.
 - a diluição ou reconcentração dos radionuclídeos nos modelos de transferência que descrevem a sua trajetória no ambiente.
 - os aspectos naturais e artificiais do ambiente que afetam o movimento dos elementos, tais como geológicos, hidrológicos e meteorológicos.
 - a utilização do ambiente para agricultura, suprimento de água e alimento, indústria e recreação.
 - a distribuição da população de acordo com a idade, dieta, ocupações domésticas e recreativas nas circunvizinhanças da instalação nuclear.
 - os níveis existentes de radioatividade natural e radioatividade produzida pelo homem e suas variações periódicas.
 - a identificação de matrizes biológicas e outros indicadores de contaminantes radioativos.
 - a existência de poluentes químicos, os quais podem interferir com os radionuclídeos em sua
-

dispersão e caminho de ação.

- a avaliação de doses significativas e representativas de membros individuais do público.
- a determinação de grupos homogêneos na população, que poderão receber as maiores doses de radiação.

Essa análise deve ser rotineira, mesmo após a instalação nuclear entrar em funcionamento. Os fins do controle ambiental para uma instalação em operação são diferentes dos pré-operacionais; neste caso os objetivos principais são^(3.16):

- controlar as descargas de material radioativo no ambiente.
- avaliar a "exposição potencial" do homem à radiação e materiais radioativos eliminados pela instalação nuclear.
- demonstrar obediência aos regulamentos e outros limites operacionais.
- possibilitar a detecção de algumas mudanças no ambiente, resultantes da instalação, após ter entrado em operação.
- confirmar se os dados utilizados na avaliação pré-operacional estão sendo mantidos.

Para o cumprimento desses objetivos, necessita-se estabelecer um Programa de Monitoração Ambiental específico para cada instalação, considerando-se as características, distribuição

e hábitos da população e o tipo e quantidade de radionuclídeos cuja liberação pode ser prevista.

A Monitoração Ambiental fornece medidas diretas dos níveis de contaminação ambiental. Entretanto, em muitos casos, o Programa de Monitoração Ambiental pode somente afirmar que os níveis ambientais resultantes das emissões radioativas estão abaixo do nível detectável pela sensibilidade do aparelho.

Normalmente, a quantidade de radionuclídeos liberada em uma instalação nuclear é pequena. Além disso, sua concentração geralmente é baixa, próxima ao valor da radioatividade natural, o que torna difícil sua detecção, exigindo outras técnicas para avaliá-la.

Em geral, os Programas de Monitoração Ambiental são planejados de maneira a:

- assegurar que os padrões de Protecção Radiológica pertinentes sejam obedecidos;
- avaliar o impacto ambiental, e
- verificar se o tratamento de rejeitos está sendo eficiente.

O controle ambiental dentro da instalação é feito determinando-se a quantidade de material radioativo liberado ao ambiente, para a contabilização da descarga, que é chamada de Torno-Fonte. A liberação de gases radioativos, através de chaminés, pode ser conhecida colocando-se monitores de radiação em locais

estratégicos e quando necessário, filtros absolutos para pó ou outros filtros como o de carvão quimicamente ativo para gases. Controla-se a liberação de efluentes líquidos radioativos no meio ambiente, fazendo-se medidas da radioatividade antes da liberação. Controlam-se também os resíduos radioativos sólidos que devem ser liberados no ambiente ou armazenados, procurando-se evitar a sua dispersão.

Além desse controle na liberação de material radioativo, deve-se fazer um estudo dos limites derivados de descarga de material radioativo que um ambiente específico pode receber, com a finalidade de otimizar o controle radiológico ambiental.

Para se ter certeza de que o controle ambiental externo à instalação é bem conduzido, são realizadas medidas ambientais externas. A quantidade destas medidas, sua frequência e importância dependem do programa de cada instalação.

Os principais tipos de medidas são⁽³⁷⁾:

- medidas do ar atmosférico, particulados e gases.
- medidas das condições meteorológicas do ambiente, direção e velocidade dos ventos, índice pluviométrico, etc.
- medidas das precipitações radioativas.
- medidas das atividades da água de rios e córregos da redondeza.
- medidas da radioatividade do solo.
- medidas da radioatividade da fauna da redondeza.

- medidas da radioatividade da flora da redondeza.
- medidas da quantidade de iodo ou estrôncio no leite e em outros alimentos, etc.

Esta análise ambiental externa pode ser simplificada criteriosamente se forem estudadas as vias críticas de transferência e os grupos críticos na população. Vale lembrar que as vias críticas de transferência dependem dos diferentes radionuclídeos que podem ser liberados (Termo-Fonte), como veremos adiante.

I.3 - ELABORACÃO DO TERMO-FONTE.

O Termo-Fonte é normalmente uma descrição da descarga de material radioativo de uma instalação nuclear para o meio ambiente, e descreve o tipo de radionuclídeo, sua forma física e química, quantidade e atividade liberadas ao longo do tempo, configuração geométrica da descarga e outras informações pertinentes⁽⁴¹⁾.

Na indústria nuclear, a maior parte das descargas ambientais de material radioativo estão na forma de materiais suspensos ou dissolvidos em efluentes líquidos ou na forma de gases ou particulados em efluentes gasosos.

Os radionuclídeos que se incorporam ao ar ou à água estão sujeitos a processos como difusão turbulenta ou molecular, que

causam dispersão do material, conforme esquematizado na Figura I.4.

Os radionuclídeos presentes no ar ou na água estão sujeitos ao fenômeno de deposição. Tal fenômeno inclui sedimentação gravitacional, remoção por precipitação, impacto e adsorção ou troca química.

A maioria dos radionuclídeos em vários sistemas ecológicos tende a se depositar no solo, sedimentos e em depósitos de detritos orgânicos. Portanto, estes compartimentos frequentemente tornam-se o maior reservatório de materiais radioativos.

Os radionuclídeos podem ser introduzidos nas plantas, através da absorção pelo solo, da deposição pelo ar ou da sorção na água, no caso de plantas aquáticas. A absorção de radionuclídeos, portanto, implica na incorporação interna dentro dos tecidos do organismo em questão.

A passagem de material radioativo das plantas aos herbívoros, se deve principalmente à ingestão. Se qualquer componente das plantas é consumido, então o material será absorvido pelo consumidor. Em alguns casos, o material radioativo incorporado dentro da planta pode estar em uma forma mais solúvel que o material superficial e portanto, uma fração maior pode ser absorvida pelo consumidor. Os herbívoros também ingerem os radionuclídeos absorvidos pelos solos ou sedimentos, após terem sido transferidos à vegetação.

A incorporação de radionuclídeos pelos animais pode ocorrer também pela inalação direta de aerossóis.

Os radionuclídeos contidos nos tecidos dos herbívoros podem ser ingeridos pelos carnívoros, através do processo de predação. Em cada passo da cadeia alimentar, os radionuclídeos podem ser canalizados fisiologicamente para certos tecidos, dependendo de suas propriedades físico-químicas.

As taxas nas quais os radionuclídeos se movem entre os compartimentos do ecossistema, determinam como o material será distribuído e como esta distribuição será alcançada. Entretanto, as taxas de transporte entre os compartimentos varia com o radionuclídeo, natureza e atividade do biota e com as propriedades do ecossistema.

I.4 - PROPÓSITO DO TRABALHO.

Cabe à Divisão de Monitoração Ambiental como parte da Proteção Radiológica, estabelecer um Programa de Monitoração Ambiental, que visa dentre outros objetivos, a monitoração de efluentes para se determinar a quantidade de material radioativo ("Termo-Fonte") liberada para o meio ambiente, assim como o estabelecimento dos limites de descarga desses efluentes e ainda a confirmação de que esses limites são respeitados, de maneira que a concentração de material radioativo no ambiente não ultrapasse os limites anuais máximos admissíveis estipulados para os indivíduos do público.

Portanto, o objetivo do presente trabalho é reavaliar e otimizar os programas de controle de efluentes líquidos e de monitoração ambiental já estabelecidos rotineiramente para as instalações nucleares do IPEN.

No Capítulo II é apresentado o programa de controle de efluentes líquidos estabelecido rotineiramente.

O propósito do Capítulo III é otimizar os tempos de contagem desses efluentes líquidos de forma a agilizar a rotina existente.

No Capítulo IV é apresentado um estudo sobre a viabilidade de se detectar a radioatividade presente na água do rio Pinheiros, decorrente das liberações de efluentes líquidos pelo

IPEN, dentro de um contexto mais amplo de seu Programa de Monitoração Ambiental.

CAPÍTULO II

II - MONITORAÇÃO DOS EFLUENTES LÍQUIDOS RADIOATIVOS GERADOS EM UMA INSTALAÇÃO NUCLEAR - ASPECTOS GERAIS E CONTROLE REALIZADO NO IPEN.

II.1 - ORIGEM DOS EFLUENTES LÍQUIDOS RADIOATIVOS.

Durante a operação de uma instalação nuclear, é inevitável a produção de efluentes líquidos contaminados com radioatividade.

Em uma central nuclear, por exemplo, a água de refrigeração do circuito primário passa continuamente através de uma resina trocadora de ions, que remove os produtos de ativação e os produtos de fissão. O trítio presente na água, entretanto, não é retido por este método e a água do circuito primário é trocada por água fresca toda a vez que se fizer necessário. Neste processo, grandes volumes de água de rejeito contendo quantidades traços de material radioativo, além do trítio, são gerados e também devem ser tratados antes de sua liberação para o meio ambiente.

Em uma planta de reprocessamento, por outro lado, mais de 99% dos produtos de fissão se encontram dissolvidos na água. Os rejeitos de alta atividade são enviados diretamente para um depósito à espera de um processo de solidificação final. Os efluentes líquidos de média e baixa atividade também ocorrem nas plantas de clarificação da água, na recuperação dos solventes orgânicos, na purificação final do urânio e nos processos de descontaminação. A quantidade de efluentes líquidos radioativos de baixa atividade, por outro lado, está mais ligada à operação dos laboratórios analíticos, ao sistema de desmineralização do combustível, etc. e depende muito pouco da massa do elemento combustível irradiado.

Finalmente tem-se o caso, não menos importante, no qual os efluentes líquidos são gerados em instalações nucleares e/ou radioativas tais como, reatores de pesquisa, centrais de produção de radioisótopos e radiofármacos, laboratórios radioquímicos, etc. Neste caso, podemos enquadrar as instalações do IPEN, que englobam:

- o reator IEA - R1, tipo piscina, que opera a uma potência nominal máxima de 2MW durante 40h/semana, destinado a produção de radioisótopos para emprego nos campos mais diversos, incluindo a Medicina, a Engenharia, a Indústria e a Pesquisa Fundamental e Aplicada.
- o Centro de Processamento destinado à produção de substâncias marcadas, geradores de ^{99m}Tc , e radioisótopos primários, tais como: ^{131}I , ^{32}P , ^{51}Cr , etc. para uso em Medicina Nuclear.

- o Laboratório de Descontaminação ligado à Proteção Radiológica.
- o Centro aonde são desenvolvidas as diferentes etapas do ciclo do combustível, contendo as seguintes unidades: purificação e conversão, enriquecimento, fabricação do elemento combustível e tratamento de rejeitos radioativos.
- a unidade de produção de compostos de tório, tais como óxido e nitrato de tório.

II.2 - PRINCIPAIS OBJETIVOS DA MONITORAÇÃO DE EFLUENTES LÍQUIDOS.

A determinação da radioatividade em efluentes líquidos gerados em uma instalação nuclear é de interesse quer do operador de tal instalação, quer do público em geral, pois os efluentes líquidos são despejados diretamente no sistema de esgoto.

A monitoração de efluentes líquidos pode ser dividida em três áreas principais⁽⁴⁰⁾:

- 1 - Monitoração Interna.
- 2 - Monitoração da Emissão.
- 3 - Monitoração do Ambiente.

1 - A Monitoração Interna engloba todo o sistema interno de circuitos de água, a saber: efluentes líquidos de processos radioativos e de laboratórios, efluentes líquidos decorrentes de trabalho de limpeza e descontaminação, águas de regeneração de reatores, águas de resfriamento, águas de rejeito doméstico, águas pluviais, etc.

O alvo principal de uma monitoração de efluentes líquidos interna, consiste não somente em garantir a observância das normas de Proteção Radiológica no que se refere ao uso da água, mas também em manter os custos da descontaminação tão baixos quanto possível.

A monitoração interna contínua, realizada em pontos selecionados e estratégicos do escoamento das águas de rejeito, além de permitir um controle, ou melhor, uma estimativa da atividade liberada para o ambiente, fornece indicações ao operador de uma instalação nuclear, que possibilitam reduzir o teor da atividade total de água de rejeito.

2 - Ao contrário da monitoração interna, cujo controle depende única e exclusivamente da iniciativa e do interesse em Proteção Radiológica do operador, a Monitoração da Radioatividade Emitida ao Meio Ambiente, juntamente com os efluentes líquidos de uma instalação nuclear, é regida por normas e critérios estabelecidos pela autoridade competente fiscalizadora - CNEN.

O conceito de monitoração aceita, estabelece que todo efluente líquido radioativo possível, seja armazenado em tanques de retenção e/ou decaimento para análise antes de ser liberado.

Efluentes com atividade normalmente alta, devem ser estocados em bombonas de polietileno apropriadas, separadamente, a fim de evitar a contaminação de grandes volumes de água presentes no reservatório.

Uma medida gama total de 1,0 litro da amostra em Frasco Marinelli (ver Figura II.2), abrangendo um intervalo de energia maior que 0,1 MeV fornece informações sobre a possibilidade de liberação total ou parcial do efluente ou estocagem para tratamento do rejeito radioativo.

3 - Os radionuclídeos liberados juntamente com os efluentes líquidos, são despejados na rede de águas e podem eventualmente provocar uma exposição adicional à população. Verifica-se, portanto, que a determinação da radioatividade total eliminada por uma instalação nuclear na rede de águas é de interesse da população como um todo.

Quanto mais confiável e extensiva for a monitoração da emissão, menor a necessidade de se realizar medidas de água no meio ambiente, que são somente significativas como um controle adicional e de suporte. Uma monitoração randômica da água de superfície do canal principal à montante e à jusante do ponto de descarga, deve ser realizada periodicamente, juntamente com a determinação do teor de atividade presente em peixes comestíveis (quando existentes), sedimentos e plancton, uma vez que uma eventual concentração pode estar ocorrendo nesses meios.

A monitoração de águas subterrâneas e potável da comunidade próxima à instalação nuclear, por outro lado, pode se limitar a algumas amostras por ano.

II.3 - TÉCNICAS DE MEDIDA.

A monitoração do teor de radioatividade em amostras de água, pode ser realizada por medida direta ou por medida após sua concentração.

A vantagem da monitoração direta, isto é, medida direta da atividade, reside no fato de fornecer resultados contínuos e praticamente instantâneos, que são indispensáveis por medidas de segurança.

As medidas realizadas após concentração, por outro lado, tornam-se necessárias quando os níveis de radioatividade presentes são muito baixos, ao redor ou inferiores aos limites de sensibilidade dos equipamentos utilizados para a medida direta.

A técnica de concentração por evaporação, embora largamente empregada, apresenta a desvantagem de não contabilizar gases e componentes voláteis, trítio, carbono-14 e alguns compostos de iodo. O rendimento da contagem depende muito pouco da qualidade da água e portanto o método é adequado para se medir a atividade

presente em efluentes líquidos, cuja composição pode sofrer grandes alterações.

Outras técnicas de concentração da atividade, envolvem a absorção e a co-precipitação.

A vantagem desses métodos em relação à evaporação, é o processamento de grandes volumes de água em tempos relativamente mais baixos, razão pela qual os métodos são aplicados para amostras de águas superficiais, subterrâneas, potáveis e pluviais que apresentam atividades extremamente baixas.

O método de Troca Iônica também é indicado para concentrar a atividade das amostras, embora os íons interferentes inativos ou agentes complexantes presentes, possam interferir seriamente na análise dos radionuclídeos.

II.4 - DESCRIÇÃO DO MÉTODO JÁ EXISTENTE PARA A MONITORAÇÃO DE EFLUENTES LÍQUIDOS RADIOATIVOS GERADOS PELO IPEN.

A determinação dos limites para descargas de efluentes líquidos radioativos para o ambiente, exige um conhecimento pormenorizado da instalação, da sua área de influência, do Termo-Fonte, da distribuição da população e de outros parâmetros ambientais característicos da região.

Para o caso do IPEN e outras instalações nucleares no Brasil, o órgão fiscalizador é a CNEN.

A ela compete a elaboração das Normas Básicas de Proteção Radiológica que, para a eliminação de resíduos radioativos líquidos em redes de esgotos sanitários, estabelece no parágrafo 7.4, inciso 7.4.1 que "as descargas diárias de atividades não superiores a 10 vezes os limites da coluna 9 da tabela 10, poderá ser feita mediante licença genérica, desde que os procedimentos de eliminação sejam examinados e aprovados pelo órgão e que a atividade total anual não seja superior a 1 Ci"⁽⁶⁾.

Cabível se torna salientar que atualmente existe uma nova norma⁽⁵⁾, já vigente e que em breve todos os limites de descarga de material radioativo ao ambiente deverão se adequar à essas novas diretrizes.

Portanto, é de responsabilidade da Divisão de Monitoração Ambiental - DMA, controlar os efluentes líquidos que são eliminados através da rede de esgotos e ao mesmo tempo fornecer dados para a elaboração do Termo-Fonte.

A atividade dos radionuclídeos presentes em amostras de efluentes líquidos gerados pelas diversas instalações do IPEN, é determinada pela DMA após o recebimento e análise das mesmas.

Os efluentes líquidos que contêm radionuclídeos de meia-vida curta são armazenados, para fins de controle, em tanques de retenção ou em tanques de decaimento. Para armazenar os efluentes

muito ativos, são utilizadas bombonas de polietileno, evitando desta maneira que grandes volumes presentes nos tanques não sejam liberados para o meio ambiente devido à sua atividade. As instalações ou laboratórios que não possuem seus próprios tanques de retenção também armazenam o efluente líquido em bombonas.

O procedimento de coleta das amostras é de extrema importância, pois a representatividade do resultado final será proporcional ao grau de homogeneidade das amostras a serem analisadas.

No caso das bombonas de polietileno, a homogeneização é feita por agitação prévia manual. Já no caso dos tanques de decaimento e/ou retenção, a homogeneização é feita de forma bastante precária, pois não se dispõe, no momento, de um sistema de agitação automático e os volumes armazenados podem ser consideravelmente elevados.

As amostras para análise, coletadas de bombonas de polietileno e de tanques de decaimento e/ou retenção são provenientes das seguintes instalações: Departamento de Reatores e Circuitos Experimentais (RE); Departamento de Física e Química Nucleares (TF); Departamento de Processamento (TP); Departamento de Rejeitos (NC); Departamento de Processos Especiais (ME); Departamento de Metalurgia Nuclear (MM); Departamento de Engenharia (MQ) e PROCON (MP) e são coletadas de acordo com a produção, com exceção das amostras do Departamento de Reatores e Circuitos Experimentais que invariavelmente são coletadas quinzenalmente.

A determinação da atividade gama dos radionuclídeos presentes nas amostras é feita por espectrometria e para os emissores alfa e beta por meio de detectores específicos, sendo que para esses processos de detecção, quando necessário, são feitas previamente separações radioquímicas para determinados radionuclídeos.

O sistema de contagem utilizado para a identificação e quantificação dos radionuclídeos emissores gama presentes nos efluentes líquidos, é constituído por: (conforme o esquema da Figura II.1)

- . Fonte de alta tensão ORTEC, Modelo 458.
- . Detector semi-condutor de germânio-lítio: Ge(Li) Coaxial EG & G ORTEC, Modelo 8.001-0722.
- . Pré-amplificador ORTEC, Modelo 120-4.
- . Amplificador IPEN/CNEN, Modelo PM-321-2.
- . Analisador Multicanal NORLAND de 4.096 canais ino/tech, Modelo 5.400.
- . Microcomputador ITAUTECH I - 7000 PCxT.

A geometria de contagem utilizada para os efluentes líquidos é o Frasco Marinelli, com as dimensões especificadas para o volume de 1,0 litro da amostra, como apresentado na Figura II.2.

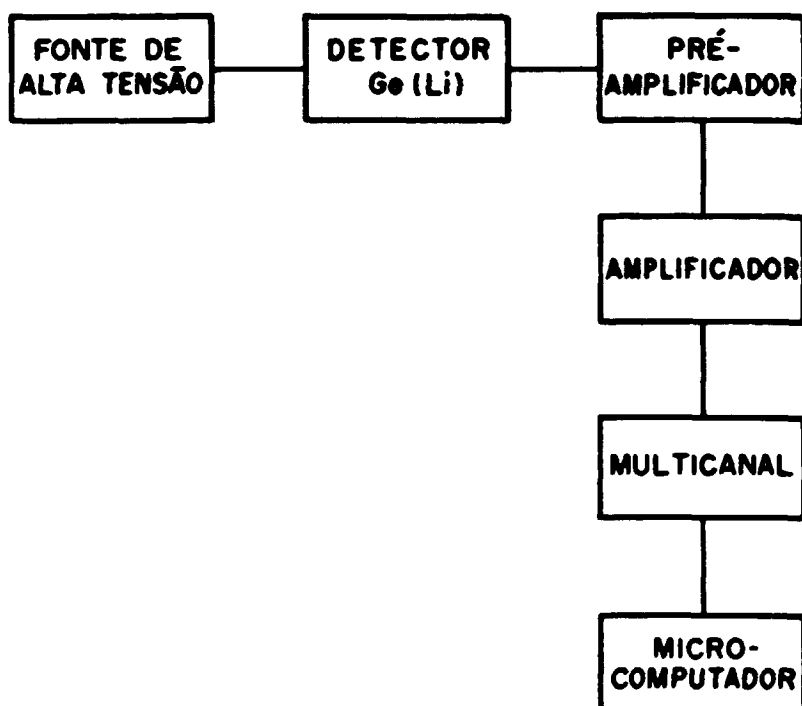
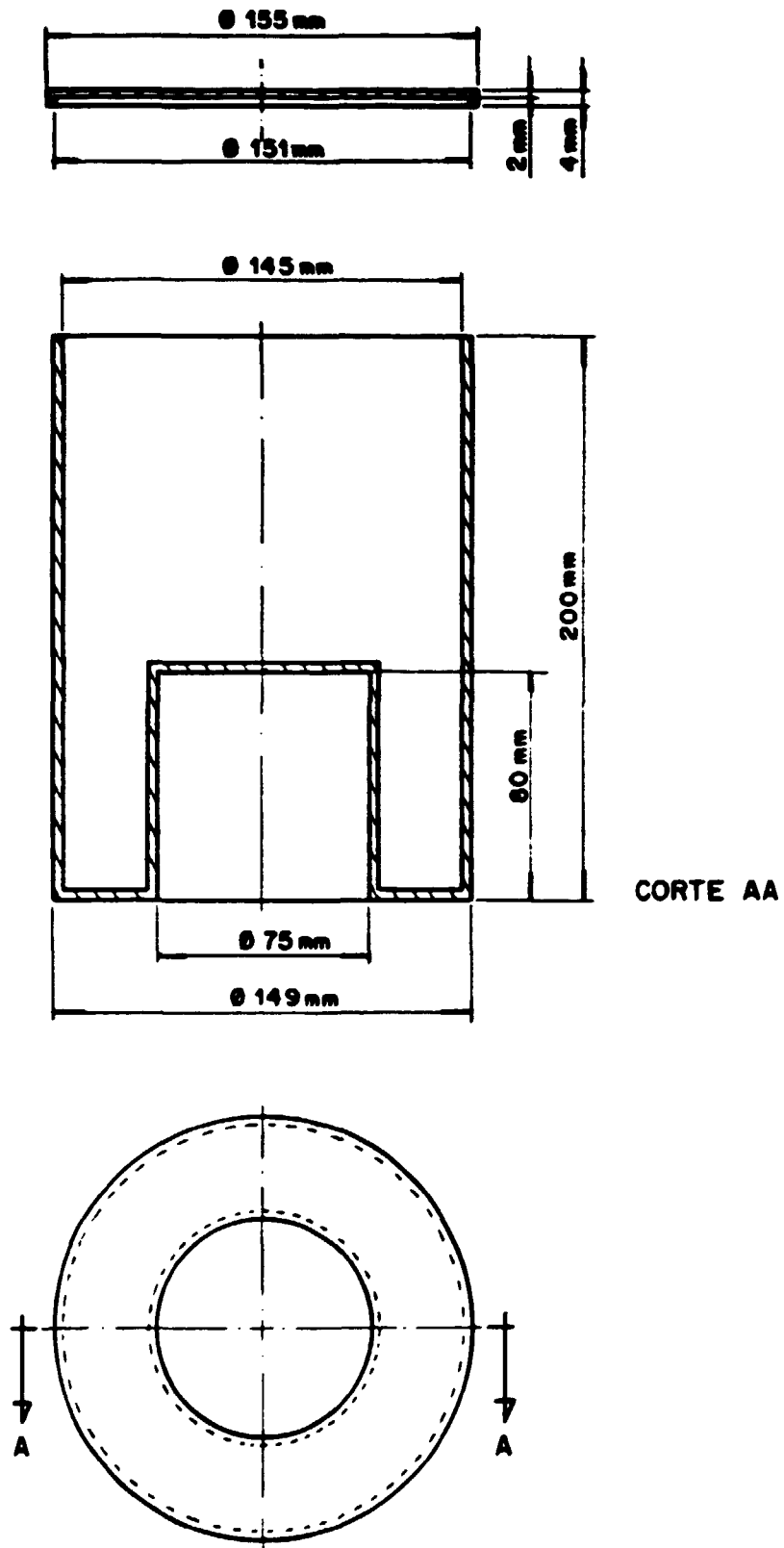


FIG.II.1-DESENHO ESQUEMÁTICO DO SISTEMA DE CONTAGEM.



OBS: FRASCO CONFECCIONADO EM PVC, ESC. 1:25
 FIG.II.2 - DESENHO DO FRASCO MARINELLI

O tempo de contagem dos efluentes líquidos varia desde 1 ks até 4 ks, dependendo da atividade da amostra.

Os dados de contagem (canal x contagem) são então transferidos através de uma porta de comunicação serial (interface RS-232) do multicanal para o microcomputador.

No microcomputador, os dados recebidos são gravados em disquetes de 5 1/4" através de um programa específico.

Esses dados são organizados em arquivos e posteriormente transferidos na ligação micro-"mainframe" a um computador IBM 4381. No computador, o processamento dos arquivos é feito através do programa SAMPO⁽³²⁾, que produz uma listagem onde são apresentados a centróide, a energia (keV) e a área dos picos gama com os respectivos erros.

A identificação do radionuclídeo é realizada através da comparação entre as transições gama listadas na tabela de energia e intensidades absolutas dos radionuclídeos⁽²⁵⁾ e as áreas apresentadas pelo programa SAMPO, levando-se em consideração as intensidades e outras possíveis transições de um mesmo radionuclídeo.

É possível que durante a identificação de uma nova amostra, se encontre um radionuclídeo, cuja ocorrência não seja prevista. Neste caso, ou seja, quando acontecer de serem

identificados radionuclídeos com pouca probabilidade de aparecimento ou, ao contrário, não serem encontrados radionuclídeos com alta frequência de aparecimento, é aconselhável contactar o responsável pela operação, para se obter informações sobre eventuais modificações no processo envolvido.

É necessário salientar que extrapolações são feitas na identificação de alguns radionuclídeos. Trata-se do cézio-137, cuja meia-vida é de 30,2 anos e que, apesar de não ser emissor gama, é detectado através do equilíbrio com o seu filho bário-137, cuja meia-vida é de 16,5 dias e que possui um fotopico bem definido em 611,7 keV.

Além do cézio-137, algumas extrapolações são feitas nas cadeias do urânio e do tório.

O cálculo da atividade dos radionuclídeos será descrito posteriormente.

Após a determinação da concentração dos radionuclídeos presentes na alíquota amostrada, o resultado é corrigido para o volume total do efluente armazenado. Nesta etapa é feita a comparação do valor encontrado com o limite de descarga diário adotado pelo IPEN - CNEN/SP, quando então é tomada a decisão de liberação única ou fracionada.

II.5 - LEVANTAMENTO DA ATIVIDADE LIBERADA DOS RADIONUCLÍDEOS GERADOS COMO EFLUENTE LÍQUIDO PELAS DIVERSAS INSTALAÇÕES DO IPEN.

Para se fazer este levantamento ou seja, uma descrição do tipo de radionuclídeo, bem como sua atividade liberada ao longo do tempo, lançou-se mão do Termo-Fonte elaborado pela DMA, sendo que os dados obtidos são referentes ao período de 1.984 a 1.986 e lista todos os radionuclídeos liberados como efluente líquido pelas diversas instalações do IPEN, conforme Tabela II.1.

Pode-se notar pela tabela, que os radionuclídeos que apresentam maior porcentagem de atividade liberada, em termos de efluente líquido gerado por cada instalação e que são os mais frequentes em termos de aparecimento, são os seguintes: trítio, sódio-24, cromo-51, cobalto-60, nióbio-95, zircônio-95, antimônio-122, telúrio-123m, antimônio-124, iodo-131, cézio-137, chumbo-212, rádio-228, tório-234 e urânio natural. Esses radionuclídeos podem ser divididos em quatro grupos principais que são relacionados a seguir:

Grupo 1: sódio-24, cobalto-60, antimônio-124, iodo-131 e cézio-137 que são provenientes do processo de regeneração das resinas do sistema de retratamento da água da piscina do reator. O sódio-24 e o cobalto-60 são produzidos através da ativação por neutrons; antimônio-122 e

TABELA 11.1- RADIONUCLÍDEOS LIBERADOS PELO IPEN COMO EFLUENTE LÍQUIDO (EM TERMOS DE % DE ATIVIDADE).

RADIONUCLÍDEO	ATIVIDADE LIBERADA NO PERÍODO DE 1984 A 1986											
	NE	NH	NP	HQ	RC	NP	RC	RE	TE	TF	TPF	TP1
H-3	*	*	*	*	*	98,8	*	*	*	*	*	*
Ra-24	*	*	*	*	*	*	*	39,0	*	*	*	*
K-40	*	*	*	*	*	0,01	*	0,99	*	0,22	*	0,20
Cr-51	*	*	*	*	*	*	*	1,21	*	2,72	23,6	13,5
Co-60	*	*	*	*	4,07	0,20	*	18,9	*	0,12	*	0,07
Zn-65	*	*	*	*	2,34	0,01	*	1,56	*	0,07	*	*
Br-82	*	*	*	0,01	*	*	*	*	59,5	0,14	*	*
Nb-95	0,74	0,12	*	15,1	*	*	*	0,02	*	0,32	*	*
Zr-95	0,36	0,10	*	9,89	*	*	*	0,07	*	0,22	*	*
Ru-103	*	*	*	6,81	*	*	*	0,01	*	0,02	*	2,69
Ag-110m	0,01	*	*	*	6,57	*	*	*	*	1,60	*	0,08
Te-121	*	*	*	*	7,88	0,16	*	*	*	1,91	*	0,13
Te-121a	*	*	*	*	3,43	*	*	*	*	1,95	0,13	0,34
Sb-122	*	*	*	*	*	*	*	5,69	*	*	*	*
Te-123a	*	*	*	*	41,9	*	*	0,01	*	46,3	4,82	12,9
Sb-124	*	*	*	*	*	*	*	11,9	*	*	*	*
Te-127a	*	*	*	*	32,3	*	*	*	*	2,99	0,90	10,4
Te-129a	*	*	*	*	*	*	*	*	*	0,08	2,23	1,04
Te-131a	*	*	*	*	*	*	*	*	*	16,7	*	*
I-131	*	*	*	0,34	*	0,35	*	6,54	*	*	68,3	12,3
Ce-134	*	0,01	*	*	1,13	0,27	*	*	*	0,31	*	*
Ce-137	*	*	*	0,17	*	*	*	8,62	*	0,28	*	0,01
La-140	0,03	*	*	0,92	*	*	*	0,08	*	0,06	*	*
Ce-141	*	*	*	4,29	*	*	*	0,01	*	0,01	*	*
Ce-144	0,06	*	*	3,52	*	*	*	*	*	1,87	*	*

TABELA II.1- RADIONUCLÍDEOS LIBERADOS PELO IPEN COMO EFLUENTE LÍQUIDO (EM TERMOS DE % DE ATIVIDADE) - Continuação.

Ir-192	*	*	*	*	0,11	*	*	*	*	0,36	0,01	*
Au-198	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	44,9
Hg-203	*	*	*	*	*	*	*	*	40,5	*	*	0,15
Tl-208	0,14	0,03	0,02	*	*	0,01	*	*	*	*	*	*
Bi-212	*	*	9,52	0,04	*	0,01	*	*	*	*	*	*
Pb-212	0,30	0,01	16,0	0,03	*	0,02	*	*	*	0,01	*	*
Pb-214	0,02	0,01	*	*	*	0,01	*	*	*	*	*	*
Th-227	3,69	0,06	*	0,54	*	*	0,02	*	*	*	*	*
Ra-226	0,01	0,10	7,03	0,14	*	0,01	*	*	*	0,01	*	*
Th-231	*	0,97	*	0,05	*	*	0,01	*	*	*	*	*
Th-234	18,6	32,2	24,9	9,97	*	0,03	48,9	*	*	5,04	*	*
Unat	75,8	66,2	42,6	46,4	*	*	51,0	2,66	*	15,8	*	*
TOTAL (%)	99,76	99,80	100,07	98,22	99,73	99,88	99,93	97,27	100,00	99,11	99,99	98,70

(* RADIONUCLÍDEO NAO FOI DETECTADO COMO EFLUENTE LÍQUIDO NESTE DEPARTAMENTO)

ONDE: ME = DEPARTAMENTO DE PROCESSOS ESPECIAIS

MM = DEPARTAMENTO DE METALURGIA NUCLEAR

MP = PROCON

MQ = DEPARTAMENTO DE ENGENHARIA QUÍMICA

NC = DEPARTAMENTO DE REJEITOS

NP = DEPARTAMENTO DE PROTEÇÃO RADIOLÓGICA

RC = CICLONE

RE = DEPARTAMENTO DE REATORES E CIRCUITOS EXPERIMENTAIS

TE = DEPARTAMENTO DE APLICAÇÃO NA ENGENHARIA E NA INDÚSTRIA

TF = DEPARTAMENTO DE FÍSICA E QUÍMICA NUCLEARES

TP = DEPARTAMENTO DE PROCESSAMENTO

TPI = DIVISÃO DE RADIOFARMÁCIA

TPF = DIVISÃO DE RADIOISÓTOPOS

antimônio-124 são produzidos por ativação de antimônio metálico; iodo - 131 e césio-137 são produtos da fissão nuclear.

Grupo 2: cromo-51 e iodo-131 que são provenientes da área de produção de substâncias marcadas (compostos químicos aos quais se incorpora o radioisótopo). Essas substâncias marcadas são utilizadas em medicina nuclear para diagnósticos.

Grupo 3: telúrio-123m e iodo-131 que são provenientes da produção de radioisótopos primários, assim chamados porque são aqueles que sofrem processamento químico logo após sua produção no reator.

Grupo 4: chumbo-212, rádio-228, tório-234 e urânio natural que são provenientes das diferentes etapas do ciclo do combustível realizadas no IPEN e da unidade de produção de compostos de tório.

O trítio e outros radionuclídeos tais como bromo-82, nióbio-95, zircônio-95, rutênio-103, prata-110m, telúrio-121, telúrio-127m, telúrio-131m, ouro-198 e mercúrio-203, não foram citados em nenhum dos grupos acima por serem provenientes das diferentes pesquisas realizadas nas diversas instalações do IPEN, e

portanto não serem gerados rotineiramente como efluente líquido e não se enquadrarem no propósito do presente estudo.

Ressalta-se que foram deixadas de lado as instalações que geram como efluente líquido determinados radionuclídeos em quantidades de atividade muito baixas, bem como aquelas que não geram resíduos radioativos.

A DMA recebe um volume grande de amostras das diversas instalações para serem analisadas, de modo que a rotina da Divisão fica sobrecarregada, pois os tempos de contagem determinados para as diferentes amostras são aleatórios por não se conhecer a atividade gerada de cada radionuclídeo como efluente líquido, dificultando assim, o andamento do processo. Portanto, o objetivo do presente estudo é agilizar a rotina da divisão, determinando assim os tempos de contagem otimizados para os diferentes efluentes gerados nas diversas instalações do IPEN.

CAPÍTULO III

III - OTIMIZAÇÃO DO MÉTODO DE CONTROLE DOS EFLUENTES LÍQUIDOS RADIOATIVOS GERADOS PELO IPEN.

III.1 - INTRODUÇÃO.

Os radionuclídeos selecionados para o presente estudo são aqueles que apresentaram maior porcentagem de atividade liberada, bem como maior frequência de aparecimento no período de 1.984 a 1.986, conforme visto no Termo-Fonte e apresentado na Tabela II.1.

Esses radionuclídeos são relacionados a seguir: sódio-24, cobalto-60, antimônio-124, iodo-131 e césio-137 provenientes principalmente do Departamento de Reatores e Circuitos Experimentais; cromo-51, telúrio-123m e iodo-131 provenientes principalmente do Departamento de Processamento de Radioisótopos.

A Tabela III.1 lista todos esses radionuclídeos, bem como suas características nucleares e físico-químicas.

TABELA 111.1- CARACTERÍSTICAS DOS PRINCIPAIS RADIONUCLÍDEOS EMISSORES GAMA LIBERADOS COMO EFLUENTE LÍQUIDO PELAS DIVERSAS INSTALAÇÕES DO IPEN.

RADIONUCLÍDEO	MEIA-VIDA ⁽¹⁰⁰⁾	DECAIMENTO ⁽¹⁰⁰⁾	ENERGIA GAMA (keV) ⁽¹⁰⁰⁾	INTENSIDADE DE PICO (%) ⁽¹⁰⁰⁾	UNIDADE DE PRODUÇÃO DO RADIONUCLÍDEO ⁽¹⁰⁰⁰⁾	MEIO DE PRODUÇÃO DO RADIONUCLÍDEO ⁽¹⁰⁰⁰⁾	FORMA QUÍMICA PROVÁVEL DO RADIONUCLÍDEO ⁽¹⁰⁰⁰⁾
Na-24	15,0 h	β^-	1.368,5	100,0	REN	ATIVACÃO POR NEUTRONS	Na_2SO_4
Cr-51	27,7 d	EC ⁽¹⁰⁰⁾	320,1	9,8	TPF • TPC	PRODUÇÃO DE SUBSTÂNCIAS MARCADAS	CrCl_3
Co-60	5,3 a	β^-	1.173,2	100,0	REN	ATIVACÃO POR NEUTRONS	CoSO_4 $\text{Co}_2(\text{SO}_4)_3$
Te-123m	119,7 d	IT ⁽¹⁰⁰⁰⁾	159,0	84,1	TPI	MISTURA DE PRODUTOS DE FISSÃO	H_2TeO_4
Sb-124	60,2 d	β^-	602,7	97,9	REN	ATIVACÃO DE ANTIMÔNIO METÁLICO	$\text{Sb}_2(\text{SO}_4)_3$ $\text{Sb}_2(\text{SO}_4)_5$
I-131	8,0 d	β^-	364,5	81,2	REN TPF • TPC TPI	PF PROD. SUP. MARC. MISTURA DE PF	NaI
Cs-137	30,2 a	IT ⁽¹⁰⁰⁰⁾	661,6	90,0	REN	PRODUTO DE FISSÃO	Cs_2SO_4

(100) EC = Captura de Elétron

(1000) IT = Transição Isométrica

(10000) Dados fornecidos pelos Supervisores de Proteção Radiológica da respectiva instalação

Nesta tabela não foram considerados os elementos urânio e tório e respectivos filhos gerados no Ciclo do Combustível Nuclear, por serem predominantemente emissores α e β , sendo portanto determinados com detectores específicos.

III.2 - DETERMINAÇÃO DA TAXA DE CONTAGEM ESPECÍFICA DOS RADIONUCLÍDEOS LIBERADOS COMO EFLUENTE LÍQUIDO. LEVANDO-SE EM CONSIDERAÇÃO O LIMITE DIÁRIO DE DESCARGA.

Como a DMA recebe muitas amostras das diversas instalações para serem analisadas, a rotina da Divisão fica muito sobrecarregada. Assim, o sistema de contagem fica superutilizado, pois os tempos de contagem determinados para as diferentes amostras são aleatórios por não se conhecer a atividade gerada de cada radionuclídeo como efluente líquido, dificultando assim, o andamento do processo.

Portanto, neste capítulo que visa agilizar a rotina da Divisão, estudos serão feitos sobre os vários tempos de contagem otimizados para os diferentes radionuclídeos em questão, sendo estes tempos dependentes de dois parâmetros fundamentais, a Taxa de Contagem Específica (Nesp) em cps/L calculada a partir do Limite Diário de Descarga (LDD)^(*) em $\mu\text{Ci}/\text{dia}$ e o Limite Inferior de Detecção (LID) do sistema de contagem em cps/L.

A determinação da taxa de contagem específica dos radionuclídeos em questão, tem por finalidade determinar um valor de atividade mais restritivo que possa ser liberado ao meio ambiente, com base no limite diário de descarga das Normas Básicas de Proteção Radiológica para cada radionuclídeo e no sistema de contagem utilizado. Calculou-se desta forma a taxa de contagem específica em cps/L que seria medida no caso de uma liberação equivalente ao limite diário de descarga.

A taxa de contagem é calculada através da seguinte equação:

$$N = I \times A \times \epsilon \quad (\text{III.1})$$

onde: N = taxa de contagem em cps

I = intensidade gama do fotopico (25)

A = limite diário de descarga em dps(26)

ϵ = eficiência calculada através da equação da curva de eficiência, em cps/dps, do sistema de detecção nas condições normais de uso do aparelho para o presente estudo (ver itens III.2.1 e III.2.2).

Portanto, a taxa de contagem específica é assim calculada:

$$N_{\text{esp}} = \frac{N}{V} \quad (\text{III.2})$$

TABELA 111.2- TAXA DE CONTAGEM ESPECÍFICA (Nesp) EM cps/L DOS RADIONUCLÍDEOS LIBERADOS COMO EFLUENTE LÍQUIDO, LEVANDO-SE EM CONSIDERAÇÃO O LIMITE DIÁRIO DE DESCARGA (LDD) EM $\mu\text{Ci}/\text{dia}$.

(****) RADIONUCLÍDEO	UNIDADE DE PRODUÇÃO	(*) LIMITE DIÁRIO DE DESCARGA (LDD) ($\mu\text{Ci}/\text{dia}$)	EFICIÊNCIA (c) (cps/dps)	TAXA DE CONTAGEM (cps)	VOLUME TOTAL MÁXIMO (L)	TAXA DE CONTAGEM ESPECÍFICA (Nesp) (cps/L)
Re-24	REN	100	$7,0 \times 10^{-4}$	2.590	100.000	0,03
Cr-51	TPF e TPC	1000	$4,6 \times 10^{-4}$	16.731	8.000	2,09
Co-60	REN	100	$8,0 \times 10^{-4}$	2.960	100.000	0,03
Te-123a	TPI	10	$1,2 \times 10^{-3}$	3.641	8.000	0,46
Sb-124	REN	10	$2,0 \times 10^{-3}$	724	100.000	0,01
I-131	REN	10	$3,9 \times 10^{-3}$	1.172	100.000	0,01
I-131	TPF / TPC / TPI	10	$3,9 \times 10^{-3}$	1.172	8.000	0,15
Ce-137	REN	100	$1,8 \times 10^{-3}$	5.994	100.000	0,06

(*) REN = Departamento de Restores e Circuitos Experimentais.

(**) TPF / TPI = Departamento de Processamento de Radioisótopos.
TPC

(****) Esses radionuclídeos são armazenados como efluente líquido em tanque de retenção.

onde: N_{esp} = taxa de contagem específica em cps/L
 N = taxa de contagem em cps
 V = volume total do tanque de retenção e/ou
bombona plástica em L

Os resultados obtidos se encontram na Tabela III.2.

III.2.1 - DETERMINAÇÃO DA RETA DE CALIBRAÇÃO.

Os equipamentos utilizados para a identificação e quantificação dos radionuclídeos presentes nos efluentes líquidos já foram descritos anteriormente, no Capítulo II - item II.4.

Com o detector Ge(Li) obteve-se uma resolução de 4,2 keV para a energia de 1.332,5 keV do cobalto-60.

Para se determinar a reta de calibração, utilizaram-se 2.048 canais dos 4.096 canais disponíveis do analisador e as fontes de bário-133, césio-137, cobalto-60 e európio-154 de energias conhecidas.

As energias correspondentes a cada radionuclídeo e o respectivo canal estão representados na Tabela III.3.

TABELA 111.3- ENERGIAS DAS FONTES UTILIZADAS NA CALIBRAÇÃO E O RESPECTIVO CANAL.

FONTE	ENERGIA (keV)	CANAL
Co-60	1.173,2	1.030
	1.332,5	1.170
Ba-133	81,0	59
	160,6	129
	276,4	231
	302,8	256
	356,0	303
	383,3	327
Cs-137	661,6	573
Eu-154	121,8	95
	244,7	205
	344,3	292
	443,9	381
	778,9	679
	867,3	757
	964,0	844
	1.085,8	953
1.112,0	975	
	1.497,9	1.237

Com os dados da Tabela III.3, foi construída a reta de calibração, energia (keV) em função do número do canal, como mostra a Figura III.1.

Do gráfico, energia (keV) em função do número do canal, tirou-se a reta de calibração:

$$y = 1,13x + 15,22 \quad (\text{III.3})$$

Onde y é a energia em keV e x o número do canal.

III.2.2 - DETERMINAÇÃO DA CURVA DE EFICIÊNCIA.

Para se determinar a eficiência do detector Ge(Li), fez-se a contagem de uma solução padrão de európio-152, num volume de 1,0 litro, utilizando-se a geometria de contagem do Frasco Marinelli que é utilizado rotineiramente, com tempo de contagem igual a 58.400 segundos.

O sistema de contagem utilizado, bem como o procedimento, já foram descritos anteriormente.

A análise dos dados de contagem, através do programa SAMPO, produz uma listagem energia x área dos fotopicos existentes na amostra. Desta forma, foram identificados os vários fotopicos do európio-152 de maior intensidade gama, conforme a Tabela III.4.

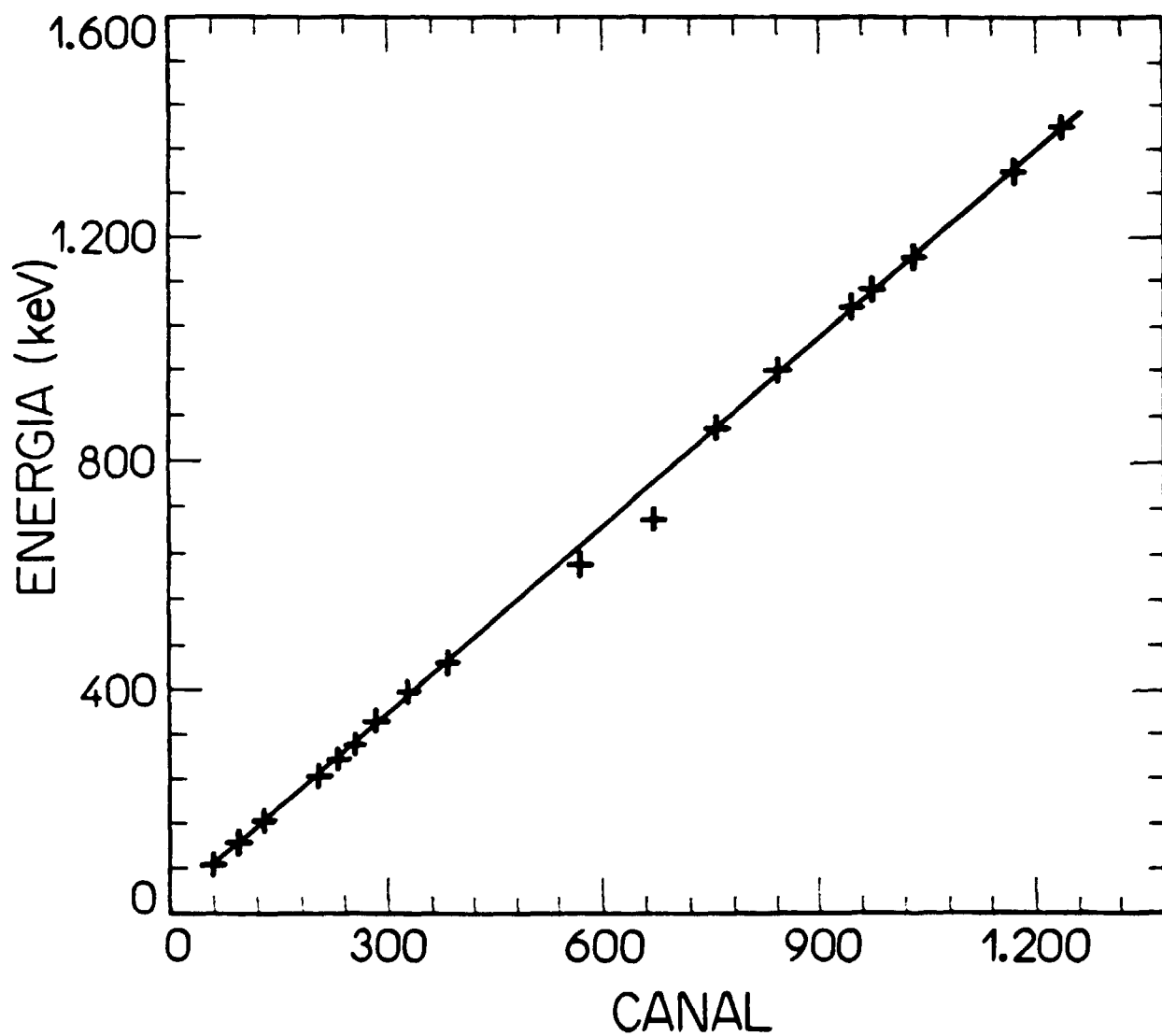


FIG.III.1 - RETA DE CALIBRAÇÃO.

TABELA 111.4- EFICIENCIA PARA CADA ENERGIA DO EUROPIO-152.

RADIONU- CLÍDEO	(BB)	AREA DO FOTO- PICO (cont.) (S)	(BB)	EFICIENCIA (ϵ) (cps/dps)
	INTENSIDADE GAMA (%)		EN. GAMA DO FOTOPICO (E) (keV)	
Eu-152	0,41	773	488,7	0,27
	0,48	838	564,0	0,22
	0,84	1.024	688,6	0,17
	0,86	2.455	367,7	0,39
	1,38	720	1.212,8	0,08
	2,21	5.019	411,1	0,33
	4,16	3.411	867,3	0,12
	10,00	6.987	1.085,8	0,09
	12,74	11.547	778,9	0,14
	13,30	8.215	1.112,0	0,09
	14,40	10.659	964,0	0,11
	20,70	9.943	1.407,9	0,07
26,50	65.803	344,3	0,42	

Nesta tabela, a eficiência foi calculada para cada energia do európio-152, através da seguinte equação:

$$\epsilon = \frac{S}{37 \times I \times T \times A \times V} \quad (\text{III.4})$$

onde:

- ϵ = eficiência em cps/dps
- S = área total do fotopico dada pela listagem do programa SAMPO
- 37 = fator de conversão de unidades (dps/nCi)
- I = intensidade gama relativa de cada fotopico⁽²⁵⁾
- T = tempo de contagem da amostra que é igual a 58.400 s
- A = atividade específica do európio-152 na solução padrão que é igual a 32,37 nCi/L
- V = volume da amostra em L

Com base nas energias e nas eficiências obtidas para a solução padrão de európio-152 (Tabela III.4), definiu-se uma curva de eficiência através de um programa de computador S.A.S. (Statistical Analysis System⁽³⁴⁾) no Centro de Processamento de Dados do IPEN, que proporciona um ajuste estatístico dos dados fornecidos.

Através do programa S.A.S., verificou-se que a reta que melhor se ajusta a estes valores é a seguinte (ver Figura III.2):

$$\ln \epsilon = 2,222 - 1,316 \ln E \quad (\text{III.5})$$

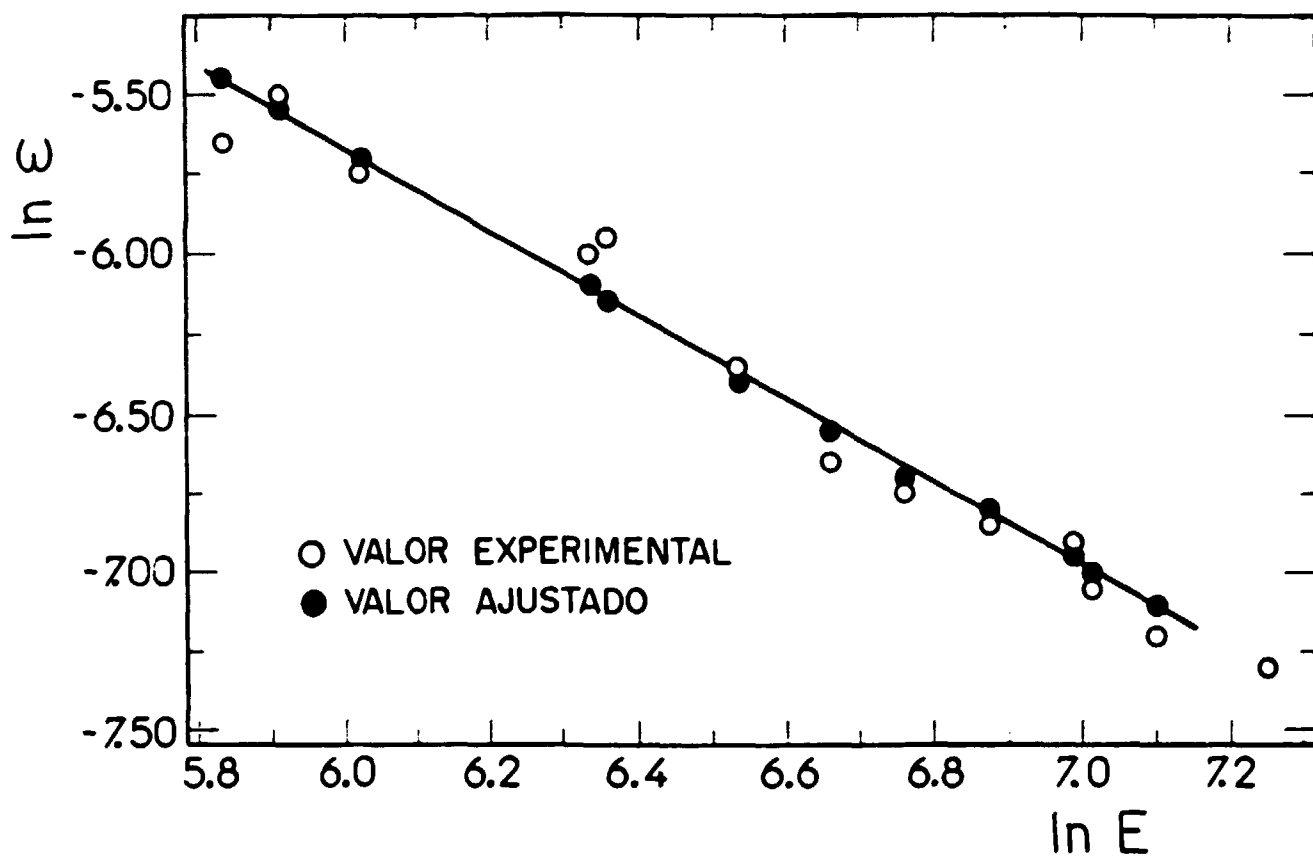


FIG.III.2 - DETERMINAÇÃO DA CURVA DE EFICIÊNCIA UTILIZANDO-SE O PROGRAMA SAS (C.P.D.).

onde: ϵ = eficiência em cps/dps

E = energia do fotopico em keV

Desta maneira, tem-se a possibilidade de se determinar as eficiências de contagem para as respectivas energias dos radionuclídeos em questão. Pode-se, portanto, determinar as eficiências no intervalo de energia de 100 keV até 2,3 MeV.

Esta reta, eficiência em função da energia, $\epsilon = f(E)$, é característica de parâmetros específicos do sistema de detecção (detector, pré-amplificador, amplificador e analisador Multicanal) e da geometria de contagem. A alteração eventual de qualquer um desses parâmetros, implica em se construir outra curva de eficiência. Além disso, ela deve ser recalculada periodicamente para verificar se não estão ocorrendo alterações no sistema de contagem.

III.2.3 - CÁLCULO DO LIMITE INFERIOR DE DETECÇÃO.

O Limite Inferior de Detecção (LID) do sistema de contagem é o menor valor de atividade de uma amostra que pode ser detectado com um certo nível de confiança estatístico.

A fim de se determinar a contagem da radiação de fundo (BG) que será utilizada para o cálculo do LID dos radionuclídeos em questão, fez-se a contagem de água de torneira, num volume de 1,0

litro, utilizando-se a geometria de contagem do Frasco Marinelli, e tempo de contagem igual a 1.000 segundos.

Para as amostras líquidas, a equação seguinte é utilizada, considerando-se um nível de confiança igual a 95% (24.2.7.11):

$$LID = 4,66 \times f \times \sqrt{\frac{h \times \bar{N}u}{T}} \quad (III.6)$$

onde: LID = limite inferior de detecção do sistema de contagem em cps/L

4,66 = valor tabelado que corresponde a $2 K_{\alpha} = K_{\beta}$ (supondo que α e β sejam escolhidos para um mesmo nível de confiança igual a 95%)

K_{α} = nível de confiança estatístico correspondente a um risco pré-selecionado em se cometer um erro de primeira espécie ($\alpha = 0,05$). Este erro leva em conta a decisão de que existe um certo nível de atividade na amostra, quando na realidade não existe.

K_{β} = nível de confiança estatístico correspondente a um risco pré-selecionado em se cometer um erro de segunda espécie ($\beta = 0,05$). Este erro leva em conta a decisão de que não existe atividade presente na amostra, quando na realidade existe.

f = fator de calibração = $\frac{1}{\epsilon \times I}$

onde: ϵ = eficiência em cps/dps

I = intensidade gama do fotopico(2 σ)

h = número de canais que correspondem à largura na meia altura do pico do cobalto-60 (1.173,2 keV). Nesse caso, analisando-se a listagem contagem x canal, obteve-se um valor para h igual a 4 canais (Ver item III.2.3.1)

T = tempo de contagem da amostra em s

\bar{N}_u = número médio de pulsos da radiação de fundo (BG) por canal em cont/canal.

Portanto,

$$\bar{N}_u = \frac{25n}{\sum_{i=1}^{25n} 2,5 \times h} C_i \quad (\text{III.7})$$

onde C_i é a contagem obtida no intervalo de $2,5 \times h$.

A Tabela III.5 apresenta os resultados obtidos para os Limites Inferiores de Detecção.

III.2.3.1 - DETERMINAÇÃO DA LARGURA NA MEIA ALTURA PARA O FOTOPICO DO COBALTO-60.

TABELA III.5- LIMITE INFERIOR DE DETECÇÃO (LID) PARA TEMPO DE CONTAGEM IGUAL A 1000 SEGUNDOS EM cps/L.

RADIONUCLÍDEO	CANAL CENTRÓIDE	CONTAGEM TOTAL NO INTERVALO DE 10 CANAIS ($\sum C_i$) (cps)	NÚMERO MÉDIO DE PULSOS DO BG POR CANAL (\bar{N}_u) (cont/canal)	LIMITE INFERIOR DE DETECÇÃO (LID) (cps/L)
Na-24	1.185	2.0	0.2	0.004
Cr-51	270	20.0	2.0	0.013
Co-60	1.031	2.2	0.2	0.004
Te-123m	126	68.1	6.8	0.024
Sb-124	522	5.9	0.6	0.007
I-131	305	13.3	1.3	0.011
Cs-137	575	6.3	0.6	0.007

Para se obter o número de canais que correspondem à largura na meia altura (h) que vai ser utilizado para o cálculo do Limite Inferior de Detecção dos radionuclídeos em estudo, contou-se 1,0 litro de uma solução de cobalto-60, utilizando-se a geometria de contagem do Frasco Marinelli, e um tempo de contagem igual a 1.000 segundos.

O sistema de contagem utilizado, bem como o procedimento, já foram descritos anteriormente.

A análise do espectro obtido, através do programa SAMPO, produz uma listagem energia x área dos fotopicos existentes na amostra. Desta forma, foi identificado o fotopico do cobalto-60 (1.173,2 keV) de intensidade gama igual a 100%.

Através da listagem contagem x canal foi construída a curva apresentada na Figura III.3, e levando-se em consideração 15 canais de cada lado da centróide, calculou-se graficamente o número de canais (h) que correspondem à largura na meia altura (FWHM). Este valor é utilizado para o cálculo do Limite Inferior de Detecção (LID) conforme descrito anteriormente.

III.3 - CÁLCULO DO TEMPO OTIMIZADO DE CONTAGEM.

Como citado anteriormente, esse estudo sobre o tempo otimizado de contagem, visa agilizar a rotina da Divisão e depende de dois parâmetros fundamentais que são a Taxa de Contagem

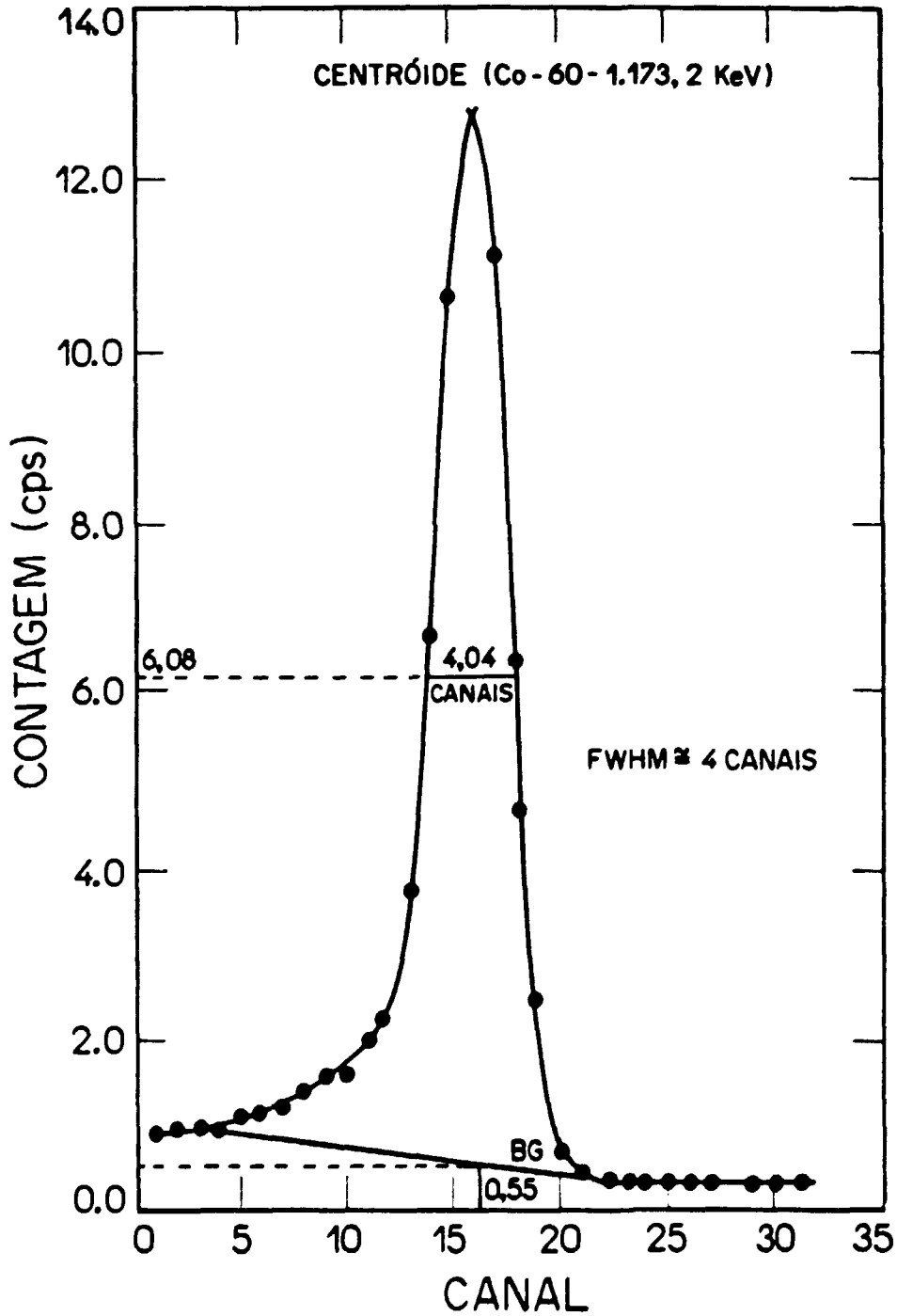


FIG. III.3 - CURVA CONTAGEM X CANAL DO PICO DO COBALTO-60 (1.173,2 KeV)

Específica (Nesp) calculada no item III.2 e o Limite Inferior de Detecção (ver item III.2.3).

A equação que será utilizada para o cálculo desse tempo é demonstrada abaixo.

Sabendo-se que o Limite Inferior de Detecção é definido pela equação III.6 (ver item III.2.3):

$$LID = 4,66 \times f \times \frac{\sqrt{h \times \bar{N}_u}}{T}$$

Pode-se reescrevê-la da seguinte forma:

$$LID = \frac{C_1}{T} \sqrt{BG}$$

onde: $C_1 = \text{constante} = 4,66 \times f$

$T = \text{tempo de contagem em s}$

$BG = \text{radiação de fundo em cps/L}$

Considerando-se que o que se detecta de uma amostra de efluente líquido é uma certa taxa de contagem, que para efeito de cálculo equivale à taxa de contagem específica mais a radiação de fundo (BG), o tempo otimizado de contagem pode ser obtido por meio da seguinte expressão:

$$N_{\text{esp}} + \frac{BG}{T} > LID = \frac{C_1}{T_{\text{Tot}}} \sqrt{BG}$$

Chamando $\frac{BG}{T}$ de C_2 e BG' a radiação de fundo para o tempo otimizado de contagem e resolvendo a inequação acima, tem-se:

$$N_{esp} + C_2 \geq \frac{C_1 \sqrt{C_2 Tot}}{Tot}$$

Portanto,

$$Tot \geq \frac{C_1^2 C_2}{(N_{esp} + C_2)^2} \quad (III.8)$$

Onde Tot = tempo otimizado de contagem em segundos.

Os resultados obtidos se encontram na Tabela III.6.

Os resultados obtidos mostram que um tempo razoavelmente baixo de contagem (5 min.) já é suficiente para se detectar os radionuclídeos em questão, com atividades superiores ao Limite Diário de Descarga.

Se neste tempo de contagem não for identificado nenhum pico, a amostra pode ser liberada, com a certeza de que o Limite Diário de Descarga não está sendo ultrapassado.

TABELA 111.6- TEMPO OTIMIZADO DE CONTAGEM (Tot) EM min.

(****)				
RADIONUCLÍDEO	UNIDADE DE PRODUÇÃO	RADIAÇÃO DE FUNDO (C ₂) (cps/L)	TAXA DE CONTAGEM ESPECÍFICA (N _{esp}) (cps/L)	TEMPO OTIMIZADO DE CONTAGEM (Tot.) (min)
Na-24	REN ^(**)	9,0 × 10 ⁻⁴	0,03	< 1
Cr-51	TPF e TPC ^(***)	2,8 × 10 ⁻³	2,09	< 1
Co-60	REN ^(**)	9,0 × 10 ⁻⁴	0,03	< 1
Te-123m	TPI ^(**)	5,2 × 10 ⁻³	0,46	< 1
Sb-124	REN	1,5 × 10 ⁻³	0,01	5
I-131	REN	2,3 × 10 ⁻³	0,01	4
I-131	TPF / TPI TPC / TPI	2,3 × 10 ⁻³	0,15	< 1
Cs-137	REN	1,6 × 10 ⁻²	0,06	< 1

(**) REN = Departamento de Reatores e Circuitos Experimentais.

(***) TPF / TPI = Departamento de Processamento de Radioisótopos.
TPI / TPI

(****) Esses radionuclídeos são armazenados como efluente líquido em tanque de retenção.

III.4 - DETERMINAÇÃO DA TAXA DE CONTAGEM DOS RADIONUCLÍDEOS LIBERADOS COMO EFLUENTE LÍQUIDO, LEVANDO-SE EM CONSIDERAÇÃO OS LIMITES DE INCORPORAÇÃO ANUAL POR INGESTÃO.

Os valores das taxas de contagem específica (Nesp) apresentados na tabela III.2, para os diversos radionuclídeos em estudo, são valores limitantes baseados no Limite Diário de Descarga (LDD), ou seja, o efluente líquido de uma determinada instalação do IPEN terá a aprovação para a sua liberação na rede de esgotos e posteriormente para o meio ambiente quando o valor encontrado para a sua atividade, estiver abaixo deste valor limitante. Caso contrário, ou seja, quando nesta análise se verificar que o valor da atividade está acima do valor limitante, a liberação implicará num estudo posterior que visa comparar a taxa de contagem para os radionuclídeos em questão com os respectivos Limites de Incorporação Anual por Ingestão (LIAI)^(*), assumindo-se uma hipótese restritiva de que todo o efluente líquido gerado seja solúvel no meio ambiente e que o indivíduo do público possa consumir normalmente essa água.

Portanto, esse estudo visa complementar as conclusões já obtidas (item III.3) no que se refere à liberação dos efluentes líquidos provenientes das instalações do IPEN.

A taxa de contagem (M) é calculada através da seguinte equação:

$$M = I \times L \times \epsilon \quad (\text{III.9})$$

onde:

- M = taxa de contagem em cps/L
- I = intensidade gama do fotopico⁽²⁸⁾
- L = limite de incorporação por ingestão em dps/L. Este valor foi obtido a partir do LIAI e levando-se em consideração que o homem referência ingere aproximadamente 2,0 litros de líquido por dia ⁽²⁰⁾
- ϵ = eficiência calculada através da equação da curva de eficiência do sistema de detecção nas condições normais de uso do aparelho para o presente estudo, em cps/dps (ver itens III.2.1 e III.2.2)

A Tabela III.7 apresenta os resultados obtidos.

III.5 - CÁLCULO DO "FATOR DE SEGURANÇA"

Com a finalidade de se comparar os resultados obtidos nos dois estudos no que concerne a liberação de efluentes líquidos para o meio ambiente, definiu-se um fator denominado "Fator de Segurança" que representa a relação entre a Taxa de Contagem (M), obtida a partir do Limite de Incorporação Anual por Ingestão (LIAI) e a Taxa de Contagem Específica (Nesp), obtida a partir do Limite Diário de Descarga (LDD).

TABELA III.7- TAXA DE CONTAGEM (R) EM cps/L DOS RADIONUCLÍDEOS LIBERADOS COMO EFLUENTE LÍQUIDO, LEVANDO-SE EM CONSIDERAÇÃO OS LIMITES DE INCORPORAÇÃO ANUAL POR INGESTÃO (LIA) EM $\mu\text{Ci}/\text{ano}$.

(****) RADIONUCLÍDEO	UNIDADE DE PRODUÇÃO	(*) LINITE DE INCORPORAÇÃO ANUAL POR INGESTÃO (LIA) ($\mu\text{Ci}/\text{ano}$)	(**) LINITE DE INCORPORAÇÃO POR INGESTÃO (dps/L)	EFICIÊNCIA (c) (cps/dps)	TAXA DE CONTAGEM (R) (cps/L)
Na-24	REN	$1,5 \times 10^{25}$	7.700	$7,0 \times 10^{-4}$	5,4
Cr-51	TPF e TPC	$1,3 \times 10^{23}$	65.860	$4,6 \times 10^{-3}$	29,7
Co-60	REN	$3,9 \times 10^4$	1.850	$8,0 \times 10^{-4}$	1,5
Sb-124	REN	$1,8 \times 10^4$	740	$2,0 \times 10^{-4}$	1,5
I-131	REN	1,6	81	$3,9 \times 10^{-3}$	0,3
I-131	TPF / TPI TPC / TPC	1,6	81	$3,9 \times 10^{-3}$	0,3
Cs-137	REN	$1,2 \times 10^4$	740	$1,8 \times 10^{-3}$	1,2

(*) REN = Departamento de Reatores e Circuitos Experimentais.

(**) TPF / TPI = Departamento de Processamento de Radioisótopos.
TPC / TPC

(****) Esses radionuclídeos são armazenados como efluente líquido em tanque de retenção.

Os resultados obtidos encontram-se na Tabela III.8.

Os valores encontrados para o Fator de Segurança indicam que, embora se esteja trabalhando com hipóteses menos restritivas, estes fatores podem ser utilizados para a decisão sobre a eliminação dos efluentes líquidos em questão, desde que seja obtida uma licença específica por parte da autoridade competente.

Neste caso, deve-se levar em conta todos os radionuclídeos que estão sendo liberados simultaneamente.

TABELA 111.8- FATOR DE SEGURANÇA.

RADIONUCLÍDEO	TAXA DE CONTAGEM ESPECÍFICA (N _{esp}) (cpe/L), LEVANDO-SE EM CONSIDERAÇÃO O LIMITE DIÁRIO DE DESCARGA- LDD EN $\mu\text{Ci}/\text{dia}$	TAXA DE CONTAGEM (N) (cpe/L), LEVANDO-SE EM CONSIDERAÇÃO O LIMITE DE INCORPORAÇÃO ANUAL POR INGESTÃO - LIAI EN $\mu\text{Ci}/\text{ano}$	FATOR DE SEGURANÇA (N/N _{esp})
Na-24	0,03	5,4	180
Cr-51	2,09	29,7	14
Co-60	0,03	1,5	50
Sb-124	0,01	1,5	150
I-131	0,01	0,3	30
I-131	0,15	0,3	2
Cs-137	0,06	1,2	20

CAPÍTULO IV

IV - ESTUDO DOS NÍVEIS DE CONTAMINAÇÃO EM AMOSTRAS LÍQUIDAS AMBIENTAIS.

IV.1 - INTRODUÇÃO.

Com o objetivo de se controlar a descarga de material radioativo para o sistema aquático do rio Pinheiros sob influência do IPEN - CNEN/SP, é feita a monitoração dos efluentes líquidos gerados por suas diversas instalações nucleares, antes de sua liberação para o meio ambiente. Como já discutido anteriormente, este controle é feito medindo-se primeiramente por espectrometria gama a atividade de cada um dos radionuclídeos contidos nos efluentes (Termo-Fonte), a seguir os resultados são comparados com os limites de descarga adotados pela CNEN, quando então é autorizada a sua liberação.

A fim de verificar se estas liberações estão sendo feitas de forma controlada, e que portanto resultam em um grau de risco aceitável para a população em geral, deve-se realizar a monitoração ambiental, medindo-se "in loco" o nível de radioatividade ao qual

os membros do público estão expostos. Este programa de monitoração ambiental tem, portanto, um caráter confirmatório e irá avaliar se as suposições feitas no cálculo da dose a partir do Terno-Fonte estão corretas.

De acordo com este programa⁽²²⁾, todos os efluentes radioativos líquidos autorizados para liberação alcançam o rio Pinheiros, o que implica na necessidade de uma monitoração periódica dessas águas, para a comprovação de que não está ocorrendo nenhum tipo de contaminação acidental.

Portanto, o objetivo do presente capítulo é verificar a viabilidade de se monitorar as águas do rio Pinheiros, tendo em vista a baixa atividade dos radionuclídeos liberados e os fatores de diluição envolvidos.

Para tanto, torna-se necessário estabelecer um método de concentração dos radionuclídeos eventualmente presentes, a fim de que sejam alcançados os limites de sensibilidade dos equipamentos usualmente disponíveis nos laboratórios de medida.

O método escolhido deve necessariamente submeter a amostra a ser analisada a uma pré-concentração, pois os elementos traços tais como, sódio-24, cromo-51, cobalto-60, telúrio-123m, antimônio-124, iodo-131 e césio-137 se encontram normalmente presentes em baixas concentrações, da ordem de 0,44 Bq/L.

Os radionuclídeos listados anteriormente, foram definidos com base no levantamento da atividade liberada dos radionuclídeos gerados como efluente líquido pelas diversas instalações do IPEN, no período de 1.984 a 1.986, conforme apresentado no Capítulo II do presente trabalho.

Várias técnicas de pré-concentração para a determinação de elementos traços e radionuclídeos em amostras líquidas têm sido descritas na literatura(38,21,33,1,6,13,28-31,38,42,10).

As resinas de troca iônica têm sido muito eficientes em separações químico - analíticas e têm sido extensivamente usadas na purificação de águas, na concentração de radionuclídeos e na remoção de íons específicos(21), sendo portanto a técnica de Troca Iônica selecionada para o presente propósito.

No item IV.2 do presente capítulo serão apresentados os ensaios realizados com soluções simuladas contendo os radionuclídeos selecionados para o presente trabalho. Essas soluções serão percoladas por resinas catiônica e aniônica a fim de se determinar as porcentagens de retenção e de recuperação desses radionuclídeos, com o objetivo de se avaliar a sua capacidade de concentração.

No item IV.3 serão avaliadas as concentrações desses radionuclídeos nas águas do rio Pinheiros e a seguir, item IV.4,

estas concentrações serão comparadas com os Limites Inferiores de Detecção dos equipamentos disponíveis.

Levando-se em consideração os fatores de concentração obtidos no item IV.2, será avaliado o volume de água do rio Pinheiros que deve ser amostrado. Desta forma, verificar-se-á se a monitoração da água do rio Pinheiros é realmente viável, dentro de um contexto mais amplo de um controle radiológico ambiental⁽²²⁾.

IV.2 - DETERMINAÇÃO DOS FATORES DE CONCENTRAÇÃO.

Neste item será descrita a Parte Experimental referente à concentração dos radionuclídeos presentes em amostras simuladas, utilizando-se Colunas Trocadoras Aniônica e Catiônica, visando a determinação dos Fatores de Concentração.

IV.2.1 - REAGENTES UTILIZADOS.

IV.2.1.1 - Ácido Clorídrico, Para Análise, da Merck S.A. Indústrias Químicas.

IV.2.1.2 - Cloreto de Sódio Cristalino, Para Análise, da Chemie Test Produtos Químicos Ltda.

IV.2.1.3 - Hidróxido de Sódio em Lentilhas, Para Análise, da Carlo Erba - Divisão Química.

IV.2.1.4 - Resina Aniônica Fortemente Básica, 1 x 8, 50 - 100 Mesh, Forma Cloreto.

IV.2.1.5 - Resina Catiônica Fortemente Ácida, 50W x 8, 100 - 200 Mesh, Forma Hidrogênio.

Ambas resinas da Dow Chemical Co. Midland, Michigan, U.S.A.

IV.2.1.6 - Iodeto de Sódio Seco da Hoeschst do Brasil - Química e Farmacêutica S.A.

IV.2.1.7 - Nitrato de Cronio-III nona hidratado da Hoeschst do Brasil - Química e Farmacêutica S.A.

IV.2.1.8 - Óxido de Antimônio da Carlo Erba do Brasil S.A.

IV.2.1.9 - Carbonato de Cobalto da Carlo Erba do Brasil S.A.

IV.2.2. - TRACADORES RADIOATIVOS.

Os radionuclídeos ^{51}Cr ($t_{1/2}^* = 27,7\text{d}$), ^{131}I ($t_{1/2} = 8,0\text{ d}$) e ^{129}Te ($t_{1/2} = 119,7\text{ d}$) foram fornecidos pelo Departamento de

Processamento de Radioisótopos do IPEN; ^{137}Cs ($t_{1/2} = 30,2$ a) foi fornecido pelo Departamento de Proteção Radiológica do IPEN; ^{24}Na ($t_{1/2} = 15,0$ h), ^{60}Co ($t_{1/2} = 5,3$ a) e ^{124}Sb ($t_{1/2} = 60,2$ d) foram obtidos por irradiação no reator nuclear IEA-R1 do IPEN.

* $t_{1/2}$ = meia-vida física do radionuclídeo.

IV.2.2.1 - PREPARO DA SOLUÇÃO DE TRACADOR DE ^{24}Na .

IV.2.2.1.1 - IRRADIAÇÃO.

A solução de traçador de sódio-24 foi preparada dissolvendo um sal de sódio, irradiado no reator IEA-R1 do IPEN, onde o fluxo de neutrons é da ordem de $10^{12} \text{ ncm}^{-2}\text{s}^{-1}$.

Para isso, cerca de 20mg de cloreto de sódio em pó foram envolvidos em um invólucro de papel alumínio limpo e depois, acondicionados num recipiente de irradiação de polietileno, com tampa rosqueada e dimensões de 25 milímetros de diâmetro e 70 milímetros de comprimento.

O tempo de irradiação necessário foi de cerca de 30 minutos.

IV.2.2.1.2 - DISSOLUCAO.

Após um tempo de resfriamento de cerca de 12 horas, o sódio irradiado foi transferido para um bequer. Este tempo de resfriamento foi necessário, para evitar a exposição do operador à dose de radiação, proveniente da ativação do invólucro de papel alumínio e do próprio sódio.

O cloreto de sódio irradiado, foi então dissolvido em 10mL de água deionizada em um balão volumétrico.

IV.2.2.2 - PREPARO DA SOLUCAO DE TRACADOR DE ^{60}Co .

IV.2.2.2.1 - IRRADIACAO.

A solução de traçador de cobalto-60 foi preparada irradiando-se cerca de 5mg de carbonato de cobalto durante 8 horas, sob um fluxo de $10^{12} \text{ ncm}^{-2}\text{s}^{-1}$.

Após uma semana de tempo de resfriamento, o sal foi dissolvido com HCl 0,5N a quente e diluído a 10mL em balão volumétrico.

IV.2.2.3 - PREPARO DA SOLUÇÃO DE TRACADOR DE ^{124}Sb .

IV.2.2.3.1 - IRRADIAÇÃO.

A solução de traçador de antimônio-124 foi preparada irradiando-se cerca de 5mg de óxido de antimônio durante 8 horas, sob um fluxo de $10^{12} \text{ ncm}^{-2}\text{s}^{-1}$.

Após uma semana de tempo de resfriamento, o sal foi dissolvido com HCl 0,5N a quente e diluído a 10mL em balão volumétrico.

IV.2.3 - EQUIPAMENTOS.

Neste capítulo, os aparelhos utilizados para a medida da contagem dos radionuclídeos emissores gama presentes nas amostras líquidas são aqueles já descritos anteriormente - item II.4, com exceção do detector de germânio.

O detector utilizado para esta série de medidas foi o detector semi-condutor de germânio de alta pureza: HPGe Coaxial da EG & G ORTEC, Modelo GEM 20.200, com uma resolução determinada no pico de 1.332,5 keV do cobalto-60 de 3,2 keV.

Toda a vez que se trabalhou com radionuclídeos de meia-vida curta, foi feita uma correção para o tempo de decaimento, utilizando-se a seguinte equação:

$$A = A_0 e^{-0.693t/t_{1/2}} \quad (\text{IV.1})$$

onde: A = atividade no instante t
 A₀ = atividade inicial no instante t=0
 t_{1/2} = meia vida física do radionuclídeo
 t = intervalo de tempo, desde o instante t = 0 até o instante t.

O sistema de detecção foi calibrado diariamente, usando-se para tanto uma fonte padrão de cobalto-60 e uma de césio-137.

IV.2.4 - METODOLOGIA.

IV.2.4.1 - PREPARO DA SOLUÇÃO SIMULADA.

Foi preparada uma solução contendo os traçadores radioativos, ²⁴Na, ⁵¹Cr, ⁶⁰Co, ^{123m}Te, ¹²⁴Sb, ¹³¹I e ¹³⁷Cs numa

concentração tal que se tenha cerca de 5.000 contagens de cada radionuclídeo em 30 minutos de contagem.

O pH da solução foi condicionado entre 1 e 2. Este pH baixo é necessário para a eliminação dos possíveis carbonatos presentes, pois esses se ligam efetivamente às colunas de resinas e assim diminuem a ligação dos radionuclídeos às resinas⁽³⁰⁾.

Antes de percolar essa solução simulada pelas colunas de resinas, o pH foi ajustado entre 5 e 6⁽³⁰⁾.

Essa solução foi levada a um volume de 1.000mL em balão volumétrico.

Recolheu-se uma alíquota de 25mL dessa solução e levou-se à contagem por 30 minutos em frasco de vidro de 120mL.

Na Figura IV.1 apresenta-se o espectro obtido dessa solução.

IV.2.4.2 - PREPARO DA COLUNA TROCADORA CATIONICA.

Dez gramas de resina cationica DOWEX 50W X 8 foram pré-condicionadas, percolando-se cerca de 25mL de uma solução de

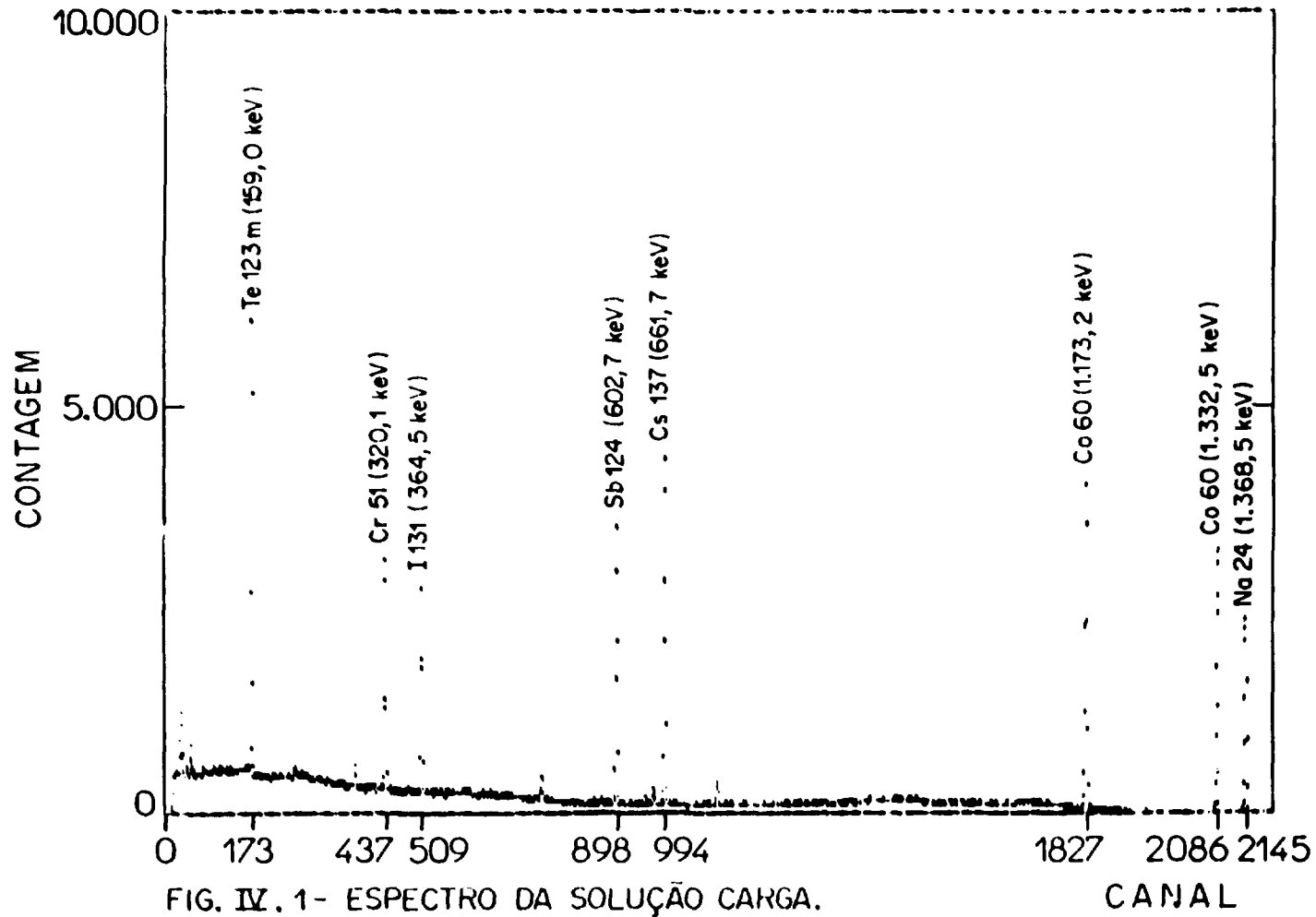


FIG. IV. 1- ESPECTRO DA SOLUÇÃO CARGA.

cloreto de sódio 10% e água deionizada até que o efluente estivesse neutro.

O tratamento final da resina catiônica, foi feito de forma a deixar a resina na forma iônica desejada, ou seja, percolaram-se cerca de 25mL de uma solução de ácido clorídrico 2M e água deionizada até que o efluente estivesse neutro.

IV.2.4.3 - PREPARO DA COLUNA TROCADORA ANIÔNICA.

Dez gramas de resina aniônica DOWEX 1 x 8 foram pré-condicionadas, percolando-se cerca de 25 mL de uma solução de hidróxido de sódio 2M e água deionizada até que o efluente estivesse neutro.

O tratamento final da resina aniônica, foi feito de forma a deixar a resina na forma iônica desejada, ou seja, percolaram-se cerca de 25mL de uma solução de ácido clorídrico 2M e água deionizada até que o efluente estivesse neutro.

As colunas assim preparadas, foram acopladas ao sistema, conforme a Figura IV.2.

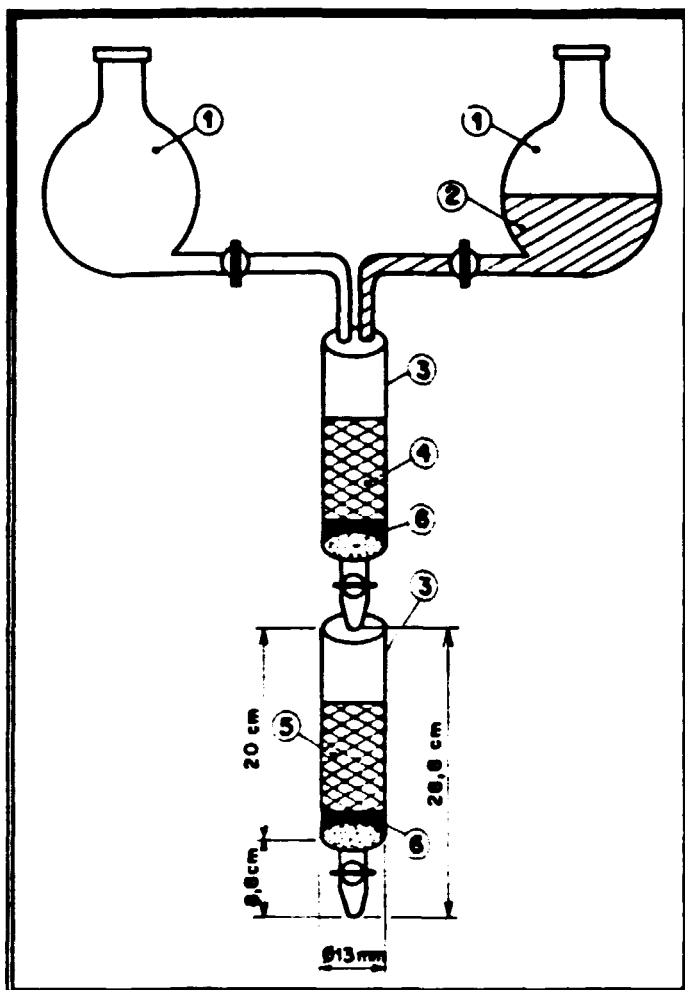


FIGURA IV.2 - SISTEMA DE TROCA IÔNICA.

LEGENDA:

- 1- Balão Volumétrico de Vidro de 1.000 ml.
- 2- Solução Simulada.
- 3- Coluna de Vidro com as seguintes dimensões: 13,0 mm de diâmetro e 200,0 mm de comprimento.
- 4- Resina Catiônica DOWEX 50W x 8, 100 - 200 Mesh, Forma Hidrogênio.
- 5- Resina Aniônica DOWEX 1x 8, 50 x 100 Mesh, Forma Cloreto.
- 6- Lã de Vidro.

IV.2.4.4 - ELUIÇÃO DA SOLUÇÃO CARGA.

Os 1.000mL da solução carga foram percolados pelas colunas trocadoras catiônica e aniônica, à uma vazão constante de aproximadamente 4,0 mL/min.

Recolheu-se uma aliquota de 25mL dessa solução efluente e levou-se à contagem por 30 minutos, utilizando a mesma geometria de contagem da solução carga.

As colunas foram separadas para se realizar a eluição dos radionuclídeos retidos pelas resinas.

IV.2.4.5 - ELUIÇÃO DAS COLUNAS TROCADORAS CATIÔNICA E ANIÔNICA COM ÁCIDO CLORÍDRICO.

Foram realizados experimentos nos quais os traçadores radioativos retidos nas Resinas Aniônica e Catiônica foram eluídos com 50 mL de HCl 6N, e os efluentes foram coletados em duas frações de 25 mL para cada coluna utilizada.

Estas condições experimentais foram definidas com base no trabalho de Krieger e Frishkorn⁽²⁸⁾, que utilizaram as resinas Dowex 50W x 8 e Dowex 1 x 8 para concentrar os radionuclídeos presentes em amostras ambientais líquidas nas proximidades de um

reator de potência. De acordo com esses autores, os radionuclídeos cobalto-60, estrôncio-85, césio-137 e iodo-131 foram quantitativamente eluidos com ácido clorídrico 6 N, partindo-se de um volume de 40 L de uma amostra líquida de dureza de 150 ppm.

A vazão foi mantida à 4,0 mL/min durante a operação.

Cada fração coletada foi levada à contagem por 30 minutos.

IV.2.4.6 - CÁLCULO DAS PORCENTAGENS DE RETENÇÃO E RECUPERAÇÃO

Os resultados obtidos para a retenção e recuperação dos radionuclídeos em estudo nas colunas trocadoras aniônica e catiônica são apresentados na Tabela IV.1.

Como era de se esperar pelos dados da literatura⁽³³⁾, ^{24}Na , $^{51}\text{Cr(III)}$, $^{60}\text{Co(II)}$ e ^{137}Cs foram fortemente retidos na resina catiônica em meio ácido clorídrico 10^{-5} a 10^{-6} M, sendo facilmente eluidos com HCl 6M.

Embora a retenção do ^{131}I tenha sido satisfatória, a sua eluição só é possível com concentração de HCl acima de 10 M⁽³³⁾. Essa concentração, entretanto, não seria indicada para a eluição do

TABELA IV.1-PORCENTAGEM DE RETENÇÃO E RECUPERAÇÃO NAS COLUNAS TROCADORAS ANIÔNICA E CATIONICA,UTILIZANDO-SE UMA SOLUÇÃO DE HCl 6N COMO ELUENTE.

RADIONUCLÍDEO	PORCENTAGEM DE RETENÇÃO	PORCENTAGEM DE RECUPERAÇÃO ^(*)
Na-24	100	96
Cr-51	98	78
Co-60	100	88
Te-123m	11	18
Sb-124	63	27
I-131	100	--
Cs-137	100	91

(*) Esta Porcentagem de Recuperação foi calculada com base na atividade de cada radionuclídeo presente na solução carga.

^{123}mTe , cuja retenção na resina catiônica⁽³³⁾ e na resina aniônica^(12.35) não foi quantitativa em meio HCl 10^{-5} a 10^{-6} M.

No caso do $^{124}\text{Sb(III)}$, a retenção nesse mesmo meio ocorre parcialmente nas resinas aniônica e catiônica, sendo sua eluição com HCl 6 M também parcial⁽³³⁾.

IV.3 - AVALIAÇÃO DA CONCENTRAÇÃO DE MATERIAL RADIOATIVO NAS ÁGUAS DO RIO PINHEIROS.

De acordo com o programa de monitoração ambiental estabelecido⁽²²⁾, todos os efluentes líquidos radioativos gerados pelo IPEN-CNEN/SP autorizados para liberação alcançam o rio Pinheiros. A equação⁽¹⁴⁾ que fornece a concentração de material radioativo no ponto de descarga no rio Pinheiros é apresentada a seguir:

$$C_{w,i} = \frac{P \cdot H_p}{F} \sum_i \dot{Q}_i e^{-\lambda_i t_p} \quad (\text{IV.1})$$

onde: $C_{w,i}$ = concentração do radionuclídeo i na água do rio em Bq/L

P = fator de conversão que relaciona as unidades usadas para a taxa de liberação e vazão do rio, em unidades de concentração na água (no caso, P é igual a 1)

- \dot{Q}_i = taxa de entrada do radionuclídeo i no rio em Bq/ano
- F = volume total anual de efluentes em L/ano
- M_p = fator de mistura que equivale ao inverso do fator de diluição (adimensional)
(M_p é igual a F/R , onde R é a vazão média anual do rio - no caso, R é igual a $2,2 \times 10^{12}$ L/ano⁽²²⁾)
- t_p = tempo de trânsito médio para os radionuclídeos atingirem o ponto de interesse (t_p foi estimado em 1 hora = 3.600 s)
- λ_i = constante de decaimento do radionuclídeo i em s^{-1}

A Tabela IV.2 apresenta os valores obtidos para a concentração dos radionuclídeos em estudo nas águas do rio Pinheiros.

IV.4 - DETERMINAÇÃO DOS VOLUMES DE ÁGUA DO RIO PINHEIROS A SEREM AMOSTRADOS.

Com o objetivo de se determinar a quantidade mínima de amostra de água do rio Pinheiros que deve ser coletada, calculou-se inicialmente a relação entre o Limite Inferior de Detecção e a Concentração do radionuclídeo na água do rio Pinheiros.

TABELA IV.2- CONCENTRAÇÃO DOS RADIONUCLÍDEOS EM ESTUDO NAS ÁGUAS DO RIO PINHEIROS.

RADIONUCLÍDEO	CONCENTRAÇÃO NA ÁGUA DO RIO PINHEIROS (C_u,) (Bq/L)
Na-24	0,92
Cr-51	0,21
Co-60	0,46
Te-123m	0,45
Sb-124	0,28
I-131	0,53
Cs-137	0,21

Uma vez estabelecida esta relação, foram levados em consideração os fatores de concentração obtidos no estudo referente à concentração dos radionuclídeos em colunas trocadoras aniônica e catiônica.

A partir da relação entre essas grandezas obtidas, foi possível determinar os volumes mínimos da água do Rio Pinheiros que devem ser amostrados para se detectar uma eventual descarga não planejada.

Os volumes a serem amostrados são apresentados na Tabela IV.3.

Pela análise dos resultados, verifica-se que os volumes de água do rio Pinheiros que devem ser coletados para que sejam alcançados os Limites Inferiores de Detecção dos radionuclídeos, utilizando-se os equipamentos de medida disponíveis, variaram consideravelmente (10 a 180 litros).

Considerando-se as dificuldades inerentes à coleta das amostras de água do rio Pinheiros e os tempos necessários para se concentrar essas amostras em laboratório, definiu-se como limite o valor de 50 litros de amostra.

Nestas condições, o método de concentração proposto permite a avaliação de praticamente todos os radionuclídeos que

poderiam estar presentes na água do rio Pinheiros, exceção feita ao radionuclídeo cromo-51.

O método proposto pode portanto, ser estabelecido rotineiramente dentro de um contexto mais amplo de um programa de monitoração ambiental das instalações nucleares existentes no IPEN.

TABELA IV.3- VOLUME DE AGUA DO RIO PINHEIROS A SER AMOSTRADO.

RADIONUCLÍDEO	CONCENTRAÇÃO NA AGUA DO RIO PINHEIROS (C_{amostrado}) (Bq/L)	LIMITE INFERIOR DE DETECÇÃO (LID) (Bq/L)	$\frac{LID}{C_{amostrado}}$	(*) FATOR DE CONCENTRAÇÃO	VOLUME A SER AMOSTRADO (L)
Na-24	0,92	5,7	6,2	0,96	6
Cr-51	0,21	28,8	137,3	0,78	175
Co-60	0,46	5,0	10,9	0,88	12
Te-123m	0,45	2,4	5,3	0,18	29
Sb-124	0,28	3,6	12,8	0,27	47
I-131	0,53	3,5	6,6	--	--
Cs-137	0,21	4,3	20,6	0,91	23

(*) Fator de Concentração calculado no item IV.2.4.6, utilizando-se uma solução de HCl 6N como eluente

CAPÍTULO V

V - CONCLUSÃO.

Os resultados obtidos para o estudo de otimização do método de controle dos efluentes líquidos gerados pelo IPEN, mostraram que um tempo razoavelmente baixo de contagem (5 min) já é suficiente para se detectar os radionuclídeos em questão, com atividades maiores que o Limite Diário de Descarga.

Se neste tempo de contagem não for identificado nenhum pico, a amostra poderá ser liberada para o meio ambiente, com a certeza de que o Limite Diário de Descarga não está sendo ultrapassado.

Quando, no mesmo tempo de contagem, for encontrada uma atividade abaixo do Limite Diário de Descarga, a amostra também poderá ser liberada para o meio ambiente.

Quando a atividade encontrada for superior ao Limite Diário de Descarga estabelecido pelas Normas, poder-se-á ainda utilizar hipóteses menos restritivas baseadas nos Limites de Incorporação Anual por Ingestão, para se tomar a decisão sobre a

liberação do efluente em questão. Neste caso, entretanto, deve ser requerida uma licença específica por parte da autoridade competente após um estudo criterioso da capacidade radiológica do meio receptor.

No estudo referente à otimização do método de controle ambiental, verificou-se a viabilidade de se monitorar as águas do rio Pinheiros que é o corpo de água receptor dos efluentes líquidos gerados pelo IPEN.

Os resultados obtidos, utilizando-se como método de concentração resinas trocadoras de íons e considerando-se os fatores de diluição do meio receptor, mostraram que 50 L de água são suficientes para se analisar uma possível contaminação de ^{24}Na , ^{60}Co , ^{129}Te , ^{124}Sb e ^{137}Cs , levando-se em consideração os Limites Inferiores de Detecção do equipamento de medida.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- 1 AKKI, S.B. & RHOPKAR, S.M. Cation-exchange separation of cobalt (II) on DOWEX 50W x 12. Anal. Chim. Acta. 52:393-6, 1970.
 - 2 ALTSHULER, B. & PASTERNAK, B. Statistical measures of the lower limit of detection of a radioactivity counter. Health Phys., 9: 293-8, 1963.
 - 3 BEDANI, M.I. Controle radiométrico ambiental nas imediações do Instituto de Energia Atômica. São Paulo, 1978. (Dissertação de mestrado, Instituto de Energia Atômica).
 - 4 BENINSON, D. Radiation protection requirements in the limitation of the release of radioactive effluents. In: Regional seminar on the application of environmental impact analysis to the nuclear power industry, held in Buenos Aires, Argentina, 29 August - 2 September 1977. s.n.t. (IAEA-SR-24) apud BEDANI, M.I. Controle radiométrico ambiental nas imediações do Instituto de Energia Atômica. São Paulo, 1978. (Dissertação de mestrado, Instituto de Energia Atômica).
-

- 5 COMISSAO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR. Diretrizes básicas de proteção radiológica. Rio de Janeiro, 1986. (CNEN-NE-3.01).
- 6 COMISSAO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR. Normas básicas de proteção radiológica. Rio de Janeiro, 1973. (RESOLUÇÃO CNEN-06/73).
- 7 CORLEY, J.P.; DENHAM, D.H.; JAQUISH, R.E.; MICHELS, D.E.; OLSEN, A.R.; WAITE, D.A. Guide for: environmental radiological surveillance at US department of energy installations. Washington, DC, Department of Energy, July 1981. (DOE/BP-0023) p.3.1 - 3.29.
- 8 ESSLING, M.A.; WARTON, J.W.; ORLANDINI, K.A.; JEWETT, G.; LAWLESS, F. Anion exchange characteristics of elements in nitric acid medium. Anal. Chem. 36(6):1157-9, 1964.
- 9 GARNER, R.J. Transfer of radioactive materials from the terrestrial environment to animals and man. Cleveland, OH, Chemical Rubber, 1972.
- 10 HARLEY, J.H. ed. HASL procedures manual. New York, NY, Health and Safety Laboratory, 1972. (HASL-300).

- 11 HARLEY, J.H. ed. HASL procedures manual. New York, NY, Health and Safety Laboratory, Aug. 1976. (HASL-300 (Suppl.4)).
- 12 HICKS, H.G.; GILBERT, R.S.; STEVENSON, P.C.; HUTCHIN, W.H. California University; Berkeley, Dec., 1953 (LRL - 65) apud LEDDICOTTE, G.W. The radiochemistry of tellurium. Oak Ridge, Tennessee, July 1961. (Nuclear Science Series - NAS - NS 3038).
- 13 HUFF, E.A. Anion exchange study of a number of elements in nitric-hydrofluoric acid mixtures. Anal. Chem., **36** (10):1921-3, 1964.
- 14 INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Generic models and parameters for assessing the environmental transfer of radionuclides from routine releases. Vienna, 1982. (IAEA-SS-57).
- 15 INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Manual of environmental monitoring in normal operation. Vienna, 1966. (IAEA-SS-16).
- 16 INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Objectives and design of environmental programmes for radioactive contaminants. Vienna, 1975. (IAEA-SS-41).
-

- 17 INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION.
Implications of commission recommendations that doses be kept as low as readily achievable. Oxford, NY, Pergamon. Apr. 1973. (ICRP-22).
- 18 INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION.
Principles of environmental monitoring related to the handling of radioactive materials. Oxford, Pergamon, Sept. 1965. (ICRP-7).
- 19 INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION.
Recommendations of the international commission on radiological protection. Oxford, NY, Pergamon, Jan. 1977. (ICRP-26).
- 20 INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION.
Report of the task group on reference man. Oxford, NY, Pergamon, Apr. 1973. (ICRP-23).
- 21 IYER, G.S. & VENKATESWARLU, Ch. Exchange of metal ions on a chelating exchanger. DOWEX-A1. Bombay, India, Bhabha Atomic Research Center, 1974. (BARC-763).
- 22 JACOMINO, V.M.F.; GORDON, A.M.P.L.; VENTURINI, L.
Avaliação radiossanitária do sistema aquático sob influência do IPEN/CNEN-SP. São Paulo, Instituto

- de Pesquisas Energéticas e Nucleares, abr. 1989.
(Publicação IPEN-282).
- 23 JUZNIC, K. Adsorption of radiocesium on an ion-exchange column. Radiochem. Radioanal. Lett., 48(3-4):221-6, 1981.
- 24 KERntechnischer Ausschuss (KTA). Measuring liquid radioactive material for monitoring the radioactive discharge. Federal Republic of Germany, Apr. 1979. (KTA-1504).
- 25 KOCHER, D.C. Radioactive decay data tables. A handbook of decay data for application to radiation dosimetry and radiological assessments. Oak Ridge, TN, Oak Ridge National Lab., 1981. (ORNL-1981).
- 26 KRIEGER, H.L. & FRISHKON, G.W. Evaluation of ion-exchange surveillance sampler for analyzing radioactive liquid effluents. Health Phys., 21:591-5, 1971.
- 27 LUETZELSCHWAB, J.W. A field sampling unit that uses an ion-exchange resin to concentrate radioactive ions in river water. Health Phys., 31(1):387, 1976.
- 28 MATSUZURU, H. & WADACHI, Y. Removal of Co-60 and Zn-65 from a solution containing sodium salts by DOWEX A-1. J. Nucl. Sci. Technol. 10(9):551-5, 1973.
-

- 29 NELSON, F.; MURASE, T.; KRAUS, K.A. Ion exchange procedures. Cation exchange in concentrated HCl and HClO₄ solutions. J. Chromatogr., 13:503-35, 1964.
- 30 OAKES, T.W.; MONTFORD, M.A.; SHANK, K.E.; WAGNER, B.B.; SCOTT, T.G.; ELDRIDGE, J.S. Methods and procedures utilized in environmental management activities at Oak Ridge National Laboratory. Oak Ridge, TN, Oak Ridge National Lab., Mar. 1981. (ORNL/TM-7212). p.4.2.1-4.3.4.
- 31 RAO, T.S.; PATIL, S.F.; BONDE, S.L. A radiotracer study of the kinetics of ion exchange reaction, $RI + I^* \rightleftharpoons RI^* + I^-$. Acta Cienc. Indica, 3(2):104-8, 1977.
- 32 ROUTTI, J.T. SAMPO, a FORTRAN IV program for computer analysis of gamma spectra from Ge(Li) detectors and for other spectra with peaks. Berkeley, CA, Laurence Berkeley Lab., Oct. 1969. (UCRL-19452).
- 33 SAITO, N. Selected data on ion exchange separations in radioanalytical chemistry. Pure Appl. Chem., 58(4):523-39, 1984.
- 34 SAS User's guide: statistics. 5.ed. Cary, NC, SAS Institute Inc., 1985.

- 35 SCHINDEWOLF, U. Geochim. Cosmochim. Acta, 19: 134-8, 1960 apud LEDDICOTTE, G.W. The radiochemistry of tellurium. Oak Ridge, Tennessee, July 1961. (Nuclear Science Series - NAS - NS 3038).
- 36 SINGH, I.J.; KHARBANDA, J.L.; PANICKER, P.K.; RAMANI, M.P.S. In: INDIA DEPARTMENT OF ATOMIC ENERGY. Nuclear chemistry and radiochemistry: proceedings of a symposium held in Waltair, 25-28 February, 1980. India, 1980. p.304-8.
- 37 SORDI, G.M.A.A. Proteção radiológica em centrais nucleares. São Paulo, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, 1979 (Apostila de curso).
- 38 TAKAGI, S. & KOYAMA, H. Preliminary research on isolation and removal of long-lived radionuclides in reactor coolant by ion exchange resin. J. Nucl. Sci. Technol., 11(8):326-33, 1974.
- 39 UNITED STATES NUCLEAR REGULATORY COMMISSION. Reactor safety study: an assessment of accident risks in U.S. Washington, DC, Oct. 1975. (WASH-1400; NUREG-75/014).
- 40 WINTER, M. & TACHLINSKI, W. Monitoring for environmental radioactivity at the Karlsruhe Nuclear Research Center in 1978. Karlsruhe, Kerforschungszentrum, Dec, 1979. (KFK-2897B).

- 41 WHICKER, F.W. & SCHULTZ, V. Radioecology Nuclear energy and the environment. s.l., Chemical Rubber, 1982. v.1.
- 42 ZMIJEWSKA, W.; POLKOWSKA-MOTRENKO, H.; STOKOWSKA, H. Preconcentration of trace elements from water by coprecipitation and ion exchange. J. Radioanal. Nucl. Chem., 84(2):319-28, 1984.
-