

CÁLCULO DE CORRELAÇÃO DE ATIVIDADES PARA CARACTERIZAÇÃO DE REJEITOS RADIOATIVOS.

Paloma Suzane Cabrera¹, Roberto Vicente²

¹Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN / CNEN – SP)
Av. Professor Lineu Prestes 2242
05508-000 São Paulo, SP
paloma.cabrera@usp.br

²Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN / CNEN - SP)
Av. Professor Lineu Prestes 2242
05508-000 São Paulo, SP
rvicente@ipen.br

RESUMO

O objetivo deste trabalho é colaborar com os diversos trabalhos realizados na Gerência de Rejeitos Radioativos, do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, (IPEN) no sentido de desenvolver métodos de caracterização de rejeitos, neste caso em particular, para os rejeitos gerados no tratamento da água de resfriamento do reator nuclear IEA-R1 do IPEN. Os dados referentes a dois lotes de tambores de 200 L contendo resina de troca iônica ou carvão ativado, retirados do reator, que haviam sido amostrados e analisados por métodos de radioquímica anteriormente, foram usados para se determinar o inventário radioisotópico de cada um, utilizando o método dos fatores de escala.

1. INTRODUÇÃO

O IEA-R1 é um reator do tipo piscina aberta (ou MTR – Materials Testing Reactor), isto é, cujo núcleo está imerso sob uma coluna de água desmineralizada que age tanto como líquido refrigerante para o cerne do reator como blindagem biológica e refletor de nêutrons. Atualmente, o combustível nuclear de tal reator é constituído de U_3Si_2 disperso em uma matriz de alumínio contendo $3,0 \text{ gUcm}^{-3}$, grau de enriquecimento do isótopo ^{235}U igual a 19,75% e revestido por uma liga essencialmente de alumínio.

A água presente no reator está sujeita à presença de radionuclídeos gerados pela ativação do material estrutural, irradiação de urânio contaminante presente em baixa concentração na superfície externa do combustível nuclear ou ainda, proveniente de vazamentos ocorridos a partir de descontinuidades no próprio revestimento do combustível nuclear.

Assim, para garantir a desmineralização, a água do reator passa por um sistema de filtragem constituída por filtros de polipropileno, dois leitos de carvão ativado e dois leitos de resinas de troca iônica a fim de que a concentração de impurezas permaneça em torno de 2 ppm em substâncias solúveis.

Este trabalho trata de dois tipos de rejeitos gerados no reator IEA-R1: carvão ativado e resinas de troca iônica.

Desde que iniciou suas operações em 1957 o reator IEA-R1 teve seus leitos de carvão e resinas de troca iônica substituídos por duas vezes e encaminhados à GRR, onde foram devidamente armazenados em tambores no depósito de rejeitos radioativos.

Assim, neste trabalho, dois lotes de tambores contendo rejeitos radioativos serão estudados:

1º Lote: removido do reator em 08/01/1993, é composto por 9 tambores; dois contém resina de troca iônica e os demais contém carvão ativado;

2º Lote: Removido do reator em 06/11/2003, é composto por 12 tambores, cinco contém resina de troca iônica e os demais contém carvão ativado.

Em ambos os casos o rejeito é constituído de grãos esféricos com 1 mm de diâmetro no caso da resina e irregulares de 2 mm a 4 mm no caso do carvão ativado, em suspensão em água.

A Figura 1 apresenta algumas imagens dos rejeitos estudados.

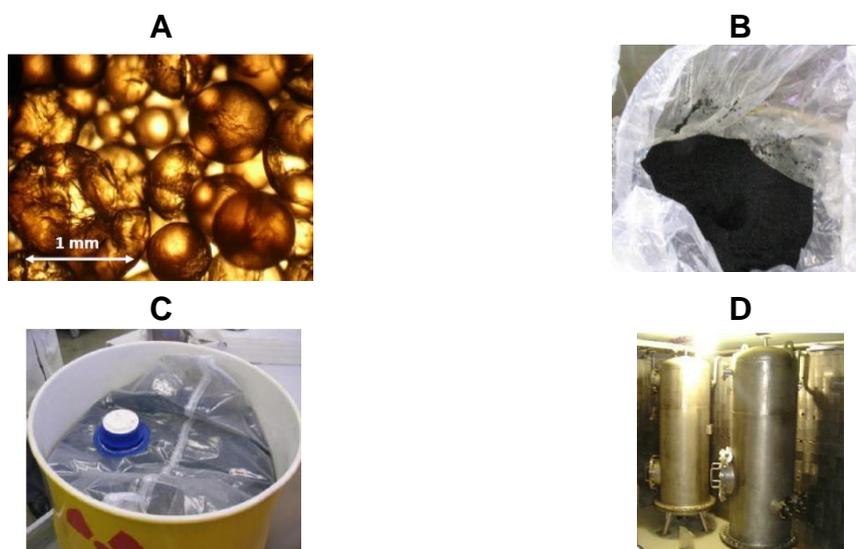


Figura 1: A – Micrografia óptica de Resina de troca iônica [1]. B – Carvão ativado usado no processo de tratamento de água do IEA – R1 [2]. C – Embalado de um dos lotes estudados contendo carvão ativado [1]. D – Vista dos leitos de carvão ativado e resina de troca iônica.

2. CARACTERIZAÇÃO DOS REJEITOS

Diversos radionuclídeos estão presentes na água do reator IEA-R1, sendo eles de três tipos diferentes quanto à sua origem no reator: produtos gerados na fissão do urânio e do plutônio e que têm rendimentos (yield) característicos; produtos de ativação, por nêutrons ou raios gama, de elementos presentes nas estruturas próximas do núcleo; isótopos de urânio e elementos transurânicos.

Espera-se que a quantidade desses radioisótopos na água da piscina do reator seja pequena, pois esta seria produto de descontinuidades no revestimento do combustível do reator, problema pouco frequente desde o início de suas operações.

Quanto ao tipo de radiação emitida em tais radionuclídeos podem ser classificados como: emissores gama (produtos de fissão e ativação); emissores beta exclusivos (produtos de fissão e ativação); aqueles que decaem por captura de elétrons emitindo raios-x com energias muito baixas (produtos de ativação) ou ainda como emissores alfa exclusivos (isótopos de U e elementos transurânicos).

Os radionuclídeos emissores gama ou beta exclusivos que emitem raios gama com frequência e energia suficientemente alta para permitir a detecção de forma simples (utilizando espectrometria dos embalados, por exemplo) ou têm meia vida suficientemente longa ou ainda aqueles que estão presentes em quantidades significativas podem ser detectados utilizando métodos externos e simples, são por isso, denominados radionuclídeos de fácil medição ou radionuclídeos chaves (RCs).

No entanto, a detecção é dificultada e requer métodos radioquímicos complexos nos casos de radionuclídeos que não emitem raios gama ou raios-x; emitem raios gama ou raios-x com energia e/ou intensidades muito baixas); têm baixa atividade por terem meia vida muito longa e também nos casos em que são gerados em pouca quantidade ou estão presentes em pequena quantidade na matriz do rejeito radioativo. Assim, são chamados radionuclídeos de difícil medição (RDMs).

2.1. O método dos fatores de escala

O método de fatores de escala (FE) permite uma estimativa das concentrações de atividade a partir da correlação entre um RDM e um RC, já que se espera uma correlação entre RDMs e RCs produzidos de forma semelhante ou que tenham características químicas próximas.

Sejam C_{RDM} e C_{RC} as concentrações de atividade, respectivamente, de um RDM e de um RC. De acordo com a tese [1], o fator de escala é dado por

$$FE = \frac{C_{RDM}}{C_{RC}} \quad (1)$$

em que A_{RDM} e A_{RC} devem ser corrigidas por um fator de decaimento do radionuclídeo desde a data de entrada no depósito da GRR até o início da contagem para sua determinação. Tal fator é dado por

$$K_w = \exp \left[- \frac{\ln(2)}{T_{1/2}} \Delta t \right] \quad (2)$$

em que $T_{1/2}$ é a meia vida do radionuclídeo e Δt é o intervalo de tempo.

No entanto, se a equação (1) não é satisfeita, deve-se utilizar o método dos mínimos quadrados (MMQ) para ajustar uma reta aos valores dos logaritmos naturais das

concentrações de atividade do RC e do RDM, de forma a obter uma função de correlação (FC), da seguinte forma

$$A_{\text{RDM}} = a(A_{\text{RC}})^b \rightarrow \ln(A_{\text{RDM}}) = \ln(a) + b\ln(A_{\text{RC}}) \quad (3)$$

em que a e b são constantes reais determinadas no ajuste MMQ.

Assim, o método dos fatores de escala consiste em determinar os RDMs e os RCs e medir suas concentrações de atividade em cada matriz. Utilizar a equação (2) para determinar o fator de correção por decaimento de cada RDM e RC e utilizar a equação (1) para determinar o FE para cada RDM. Em seguida, multiplicar o FE pela concentração de atividade do RC a que se relaciona o RDM para determinar sua concentração de atividade. No entanto, caso a (1) não seja satisfeita, é necessário fazer o ajuste MMQ e utilizar a equação (3) para encontrar a concentração do RDM. Se ainda assim nenhum FE ou FC for encontrado para um RDM, determina-se que sua concentração de atividade é dada pela média aritmética das medidas das concentrações em cada matriz separadamente.

2.2. Bases de dados utilizadas

Os fatores de escala (FE) são específicos de cada instalação e matriz de rejeitos radioativos. Assim, fizeram-se necessários dois estudos sobre os rejeitos aqui considerados, isto é, os 21 tambores contendo carvão ativado ou resina de troca iônica, ambos provenientes do reator IEA-R1. São os dados destes estudos posteriores, provenientes das referências [1] e [2], que foram analisados no presente trabalho.

Em [1] procedimentos radioquímicos foram desenvolvidos, adaptados e padronizados a fim de determinar os RDM contidos nas amostras do rejeito considerado. Dessa forma, após avaliar a matriz de rejeito, os radionuclídeos apresentados na Tabela 1 foram considerados RDMs.

Tabela 1: Radionuclídeos considerados RDMs no rejeito.

^3H	^{14}C	^{55}Fe	^{59}Ni	^{63}Ni
^{90}Sr	^{99}Tc	$^{108\text{m}}\text{Ag}$	^{129}I	^{135}Cs
^{234}U	^{235}U	^{236}U	^{238}U	^{237}Np
^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu
^{241}Am	^{243}Am	^{242}Cm	^{243}Cm	^{244}Cm

Além disso, considerou-se dois RCs, descritos na Tabela 2.

Tabela 2: Radionuclídeos considerados RCs no rejeito.

RC	Características
^{60}Co	Produto de ativação Meia vida de 5,27 anos Decai por emissão β^- com energia de 0,31 MeV emitindo dois fótons com energia de 1,17 MeV e 1,33 MeV.
^{137}Cs	Produto de fissão Meia vida de 30,3 anos Decai por emissão β^- com energia de 1,17 MeV para ^{137}Ba (yield = 5,4%) sendo este um núcleo estável; ou por emissão β^- com energia de 0,51 MeV para $^{137\text{m}}\text{Ba}$ (yield = 94,6%) o qual emite um fóton com energia de 0,66 MeV.

Todos os 21 tambores foram amostrados e todas as amostras foram analisadas para determinar as concentrações de atividade de cada radionuclídeo, de forma que as condições gerais permitiam considerar que as amostras eram, de fato, representativas do rejeito.

Para verificar a homogeneidade dos rejeitos a partir dos dados de [1], considerou-se que um rejeito homogêneo é aquele para o qual as concentrações de radionuclídeos ou substâncias intervalo relativo de 30% (IAEA, 2007). Sendo assim, de acordo com tal critério, a análise dos dados de [1] permite afirmar que os rejeitos estudados são homogêneos, já que praticamente todos as diferenças relativas são menores que 30%, como se verifica nos gráficos contidos nas Figuras 2 e 3.

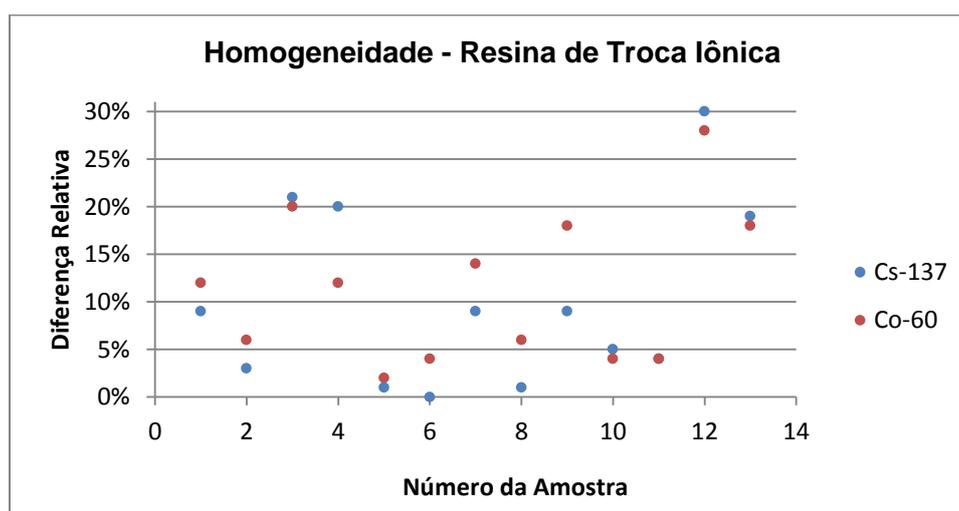


Figura 2: Diferença relativa entre as concentrações de atividade de ^{137}Cs e ^{60}Co para amostras de resina de troca iônica, construído com base em dados da referência [1].

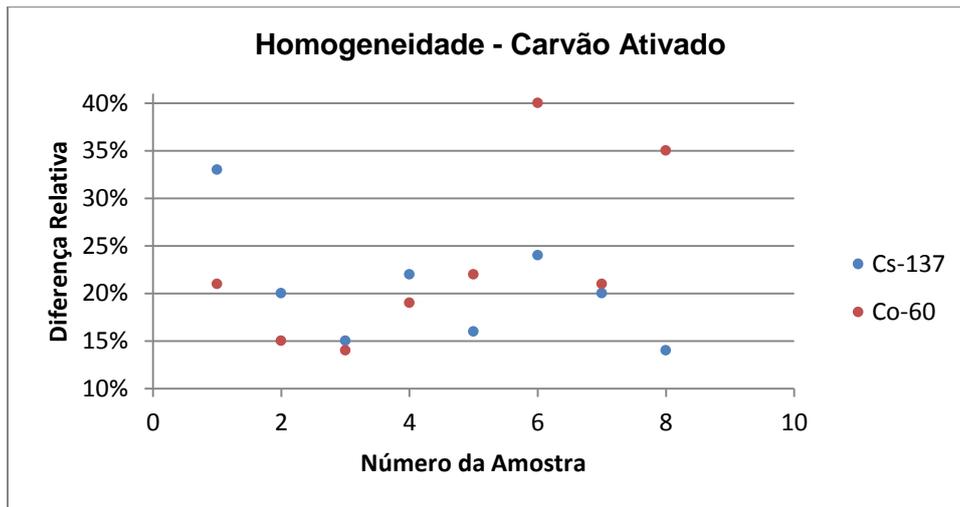


Figura 3: Diferença relativa entre as concentrações de atividade de ^{137}Cs e ^{60}Co para amostras de carvão ativado, construído com base em dados da referência [1].

Sendo os rejeitos homogêneos, determinou-se a concentração de atividade de cada uma das amostras de cada um dos tambores de forma que, utilizando a equação (1), calculou-se para cada RC, três valores de FE para cada um dos RDMs: o primeiro considera somente o primeiro lote, de 1993; o segundo considera somente o segundo lote, de 2003 e o terceiro considera os dois lotes em conjunto.

Todas as amostras retiradas dos tambores foram analisadas em base seca, no entanto, é necessário considerar que os tambores não contêm somente resina de troca iônica ou carvão ativado sólidos. Dentro dos tambores os rejeitos estão suspensos em água líquida, de forma que há água intersticial na maioria dos tambores, como indica a Figura 4.

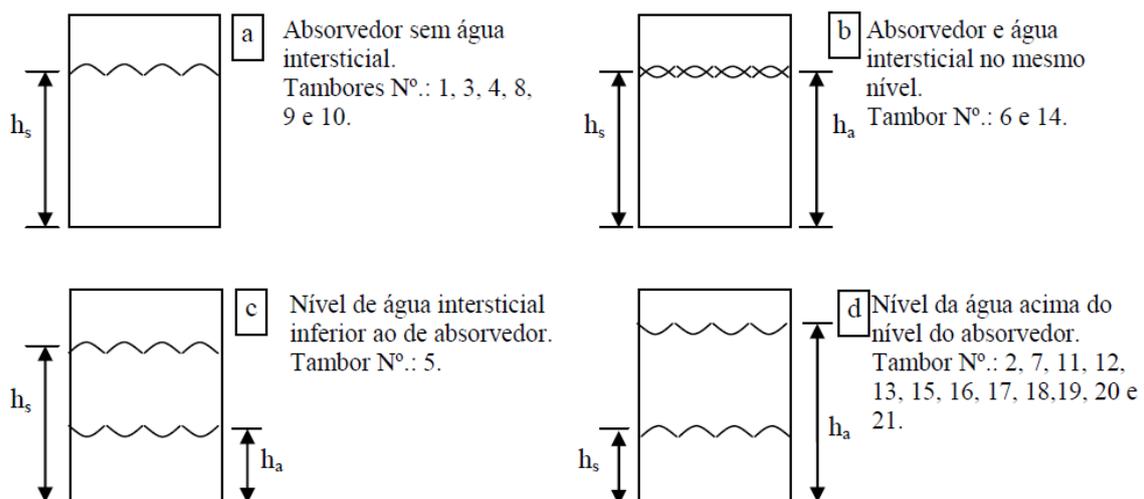


Figura 4: Representação das configurações observadas nos tambores estudados, indicando os níveis de água líquida e sólido absorvedor nos tambores, conforme referência [2].

Sendo assim, em [2], mediu-se a altura da superfície livre da água e do sólido dentro de cada tambor para fins de determinar o teor de resina ou carvão. Estimou-se a atividade total dos dois RCs com base nas concentrações de atividade de amostras do rejeito obtidas através de métodos analíticos (radioquímicos).

Para isso, mediu-se externamente a taxa de dose de cada tambor e, em seguida, utilizou-se o método de Point-Kernel para determinar a atividade total de cada um dos dois RCs considerados (^{137}Cs e ^{60}Co) em cada um dos 21 tambores. Tal método considera a contribuição de cada um dos pontos de uma fonte de fótons de forma a integrá-las tridimensionalmente e fornecer a taxa de dose, isto é, a dose depositada por unidade de tempo.

A taxa de dose é dada por:

$$\dot{D} = \Phi \cdot G \quad (4)$$

Em que \dot{D} é a taxa de dose em um ponto P (Gy h^{-1}); G é uma constante denominada fator de dose por unidade de fluxo de fóton ($\text{Gy h}^{-1}\text{cm}^2 \text{s}$) obtida por interpolação de gráficos (Rockwell, 1956, pág. 19); Φ é o fluxo de fótons em um ponto P ($\text{fótons cm}^{-2} \text{s}^{-1}$) e dado por

$$\Phi = \frac{B \cdot S_v \cdot R_0^2}{2(a + Z)} \cdot F(\theta, b) \quad (5)$$

Em que B é o fator de build up; S_v é a concentração de atividade (Bq cm^3); R_0^2 é o raio do tambor (cm); a é a distância entre o ponto de medição e a superfície do tambor (cm); Z é a distância de atenuação (cm); $F(\theta, b)$ foi determinado por interpolação gráfica (Rockwell, 1956, pág. 386), é uma função de $b = \mu_s Z$, onde μ_s é o coeficiente de atenuação linear (cm^{-1}) determinada para cada energia por interpolação de dados da tabela “Coeficientes de interação parcial e coeficientes de atenuação total para a água líquida” (NIST, 2011).

2.3. Resultados obtidos

Utilizando os três Fatores de Escala (para o lote de 1993, para o lote de 2003 e para os lotes em conjunto) provenientes de [1], bem como as duas atividades totais dos Radionuclídeos Chaves (RCs) (atividade na água intersticial e no sólido absorvedor) provenientes de [2] calculou-se as atividades de cada Radionuclídeo de Difícil Medição (RDM) em cada tambor para cada um dos dois RCs de duas formas diferentes.

Primeiramente, através do método dos fatores de escala, utilizou-se

$$A_{\text{RDM}} = (\text{FE}) \cdot A_{\text{total,RC}} \quad (6)$$

Em que A_{RDM} é a atividade do RDM no tambor (Bq); FE é o fator de escala do RDM no tambor, determinado em [1] e $A_{\text{total,RC}}$ é a atividade total do RC no tambor (Bq), determinado em [2].

Nos tambores que contêm resina de troca iônica utilizou-se os FE obtidos para cada lote, exceto para o ^{55}Fe , para o qual utilizou-se o FE obtido para os lotes em conjunto. Já no caso

dos tambores que contêm carvão ativado, utilizou-se os FE obtidos para os lotes em conjunto. No caso de ^{235}U e ^{236}U , utilizou-se o FE obtido para cada um em separado quando em carvão ativado e o FE obtido para estes dois radionuclídeos conjuntamente, como indica [1].

Para alguns radionuclídeos não foram obtidos FE ou obteve-se somente em uma matriz de rejeito. No entanto, estes radionuclídeos apresentam baixa concentração de atividade nas matrizes de rejeitos analisadas e constatou-se que é possível tomar as concentrações de atividades desses radionuclídeos como iguais à atividade mínima detectável, de forma a conseguir um parâmetro seguro no sentido de decidir o tratamento a ser dado ao rejeito.

Posteriormente, atentando à disposição do rejeito no tambor considerado, utilizou-se o produto da concentração de atividade pela massa de cada tambor

$$A_{\text{rad},i} = M_i C_{\text{rad},i} \quad (7)$$

Em que $A_{\text{rad},i}$ é a atividade de um radionuclídeo específico no tambor i (kBq); M_i é a massa do tambor i (kg) e $C_{\text{rad},i}$ é a concentração de atividade deste mesmo radionuclídeo no tambor i (Bq/g).

Na Figura 5 é possível comparar os valores obtidos para a atividade total de cada tambor utilizando o método dos fatores de escala para cada RDM (com ^{60}Co e ^{137}Cs como RCs) e aquela obtida utilizando a massa e a concentração de atividade dos RDMs, já os valores numéricos são apresentadas na Tabela 3.

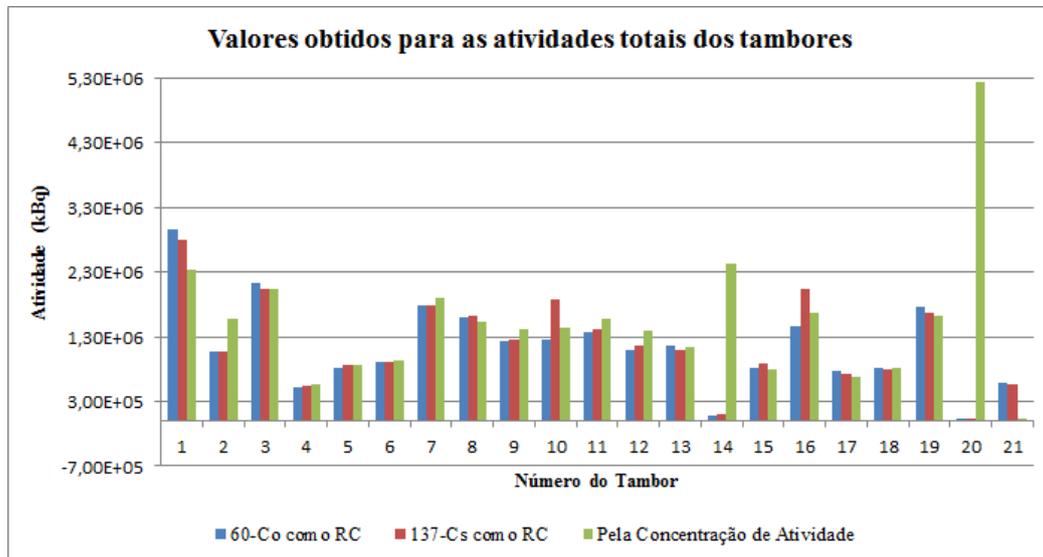


Figura 5: Comparação entre os valores obtidos para a atividade total de cada tambor.

Tabela 3: Valores obtidos para a atividade total e conteúdo de cada tambor caracterizado.

Tambor	Conteúdo	Atividade Total do Tambor obtida utilizando o ^{60}Co como Rc (kBq)	Atividade Total do Tambor obtida utilizando o ^{137}Cs como Rc (kBq)	Atividade Total do Tambor obtida utilizando a massa e a concentração de atividade (kBq)
1	Resina	2,95E+06	2,80E06	2,33E+06
2	Carvão	1,08E+06	1,06E+06	1,57E+06
3	Resina	2,14E+06	2,03E+06	2,04E+06
4	Carvão	5,24E+05	5,31E+05	5,64E+05
5	Carvão	8,20E+05	8,74E+05	8,57E+05
6	Carvão	8,99E+05	9,05E+05	9,36E+05
7	Carvão	1,79E+06	1,79E+06	1,89E+06
8	Carvão	1,60E+06	1,62E+06	1,52E+06
9	Resina	1,23E+06	1,25E+06	1,42E+06
10	Resina	1,25E+06	1,87E+06	1,44E+06
11	Resina	1,36E+06	1,41E+06	1,57E+06
12	Resina	1,09E+06	1,17E+06	1,40E+06
13	Carvão	1,17E+06	1,10E+06	1,14E+06
14	Resina	8,63E+04	1,07E+05	2,43E+06
15	Carvão	8,27E+05	8,90E+05	7,88E+05
16	Resina	1,45E+06	2,04E+06	1,68E+06
17	Carvão	7,60E+05	7,22E+05	6,75E+05
18	Carvão	8,25E+05	7,92E+05	8,10E+05
19	Carvão	1,75E+06	1,66E+06	1,62E+06
20	Carvão	7,23E+03	6,04E+03	5,23E+06
21	Carvão	5,80E+05	5,57E+05	3,45E+02

Como é possível melhor verificar na Figura 5, as atividades totais dos tambores obtidas utilizando o ^{60}Co diferem das atividades totais obtidas utilizando o ^{137}Cs como RC, mas essa diferença já era esperada, pois verificou-se que a atividade do ^{137}Cs era mais baixa que a atividade do ^{60}Co em todos os tambores, de forma que esta diferença pode ser interpretada como um intervalo onde o valor verdadeiro da atividade total do tambor se encontra e nos fornece um bom parâmetro para o tratamento do rejeito.

A primeira vista, os valores das atividades totais de cada tambor são compatíveis com os resultados esperados (da ordem kBq a MBq), no entanto, seria necessário avaliar as incertezas destes valores. Não foi possível estabelecer um método para determinar tais incertezas, já que diversos métodos diferentes foram usados para obter os resultados acima apresentados, assim, embora as concentrações de atividades utilizadas possuíssem incertezas [1], o método do Point Kernel não fornece incertezas.

Então, faz-se necessário determinar um método seguro, do ponto de vista da gestão de rejeitos radioativos, para avaliar tais incertezas. Para isso, pode-se avaliar os valores das

atividades totais obtidas a partir da relação das concentrações de atividades obtidas em [1] com as massas dos tambores obtidas em [2]. Neste ponto, verifica-se que, na maioria dos tambores as atividades obtidas com o uso dos fatores de escala e aquelas obtidas com o uso da massa do tambor e da concentração de atividade são bastante próximos e da mesma ordem de grandeza. As exceções são os tambores 14, 20 e 21 em que os rejeitos se encontram como indica a configuração b da Figura 4, isto é, a coluna de água e de sólido absorvedor têm o mesmo comprimento. Este fato não acarreta grandes preocupações, já que, nestes tambores, há mais água que sólido absorvedor e, portanto, menor quantidade de material radioativo retido e, por fim, têm baixa atividade.

3. CONCLUSÕES

Os trabalhos [1] e [2] desenvolvidos na GRR foram relacionados de forma que obteve-se valores para as atividades totais de cada Radionuclídeo de Difícil Medição (RDM) relacionando-os a dois Radionuclídeos Chaves (RCs) e, então, a atividade de cada um dos 21 tambores analisados, dada pela soma das atividades dos RDMs e RCs presentes em cada tambor. A primeira vista, os resultados parecem ser compatíveis do ponto de vista da gestão de rejeitos radioativos.

Todos os tambores foram caracterizados de forma a determinar não somente os radionuclídeos contidos no tambor, mas também a atividade de cada um deles e, por fim, a atividade total de cada tambor. Embora não seja possível determinar as incertezas de tais valores, a compatibilidade e veracidade de tais dados podem ser afirmadas quando os valores para as atividades totais obtidas para cada tambor utilizando o método dos fatores de escala são comparados com os valores obtidos pelo produto da massa de cada tambor pela concentração de atividade de cada radionuclídeo no tambor.

Dessa forma a diferença entre as atividades obtidas pelos diferentes métodos pode ser considerada um intervalo dentro do qual se encontra o valor verdadeiro da atividade de cada tambor. Esta aproximação, do ponto de vista da gestão de rejeitos radioativos, pode ser coerente com fatores econômicos, sociais e éticos. Sendo assim, no caso dos tambores 14 e 21, que contém mais água que material sólido absorvedor, embora a caracterização tenha sido particularmente mais difícil e os resultados obtidos pelos dois métodos utilizados não sejam compatíveis entre si, nestes casos as atividades são seguramente menores que no caso dos demais tambores, de forma que trata-los como os demais já assegura a correta gestão dos resíduos.

Em geral, os valores obtidos para as atividades utilizando o método dos fatores de escala em ambos os casos (utilizando o ^{60}Co e o ^{137}Cs como RC) são da mesma ordem de grandeza dos valores obtidos para as mesmas atividades utilizando o produto da massa do tambor pela concentração de atividade (as únicas exceções são os tambores 14 e 21). Sendo assim, aconselha-se adotar a atividade de cada radionuclídeo em cada tambor e também a atividade total por tambor como o maior dentre os três valores obtidos, de forma a garantir a segurança da gestão dos rejeitos.

O método dos fatores de escala mostrou-se simples e verídico, de forma que futuramente, seu uso poderá não somente facilitar como demandar menos tempo e gastos financeiros para promover a caracterização de outros rejeitos do reator IEA-R1.

REFERÊNCIAS

1. M. H. T. Taddei, “Determinação de fatores de escala para estimativa do inventário de radionuclídeos em rejeitos de média e baixa atividades do reator IEA-R1”, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (2013).
2. D. C. B. de Souza, “Desenvolvimento de método para caracterização de embalados de rejeitos radioativos”, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (2013).
3. G. Hiromoto, J. C. Dellamano, J. T. Marumo, L. S. Endo, R. Vicente, T. Hiravama, “Introdução à gerência de rejeitos radioativos”, Gerência de Rejeitos Radioativos (IPEN / CNEN) (1999).
4. E. Okuno, E. M. Yoshimura, *Física das Radiações*, Oficina de Textos, São Paulo, Brasil (2010).
5. “Norma CNEN NE 6.05: Gerência de rejeitos radioativos em instalações radiativas” <http://www.cnen.gov.br/seguranca/normas/pdf/Nrm605.pdf> (1985).
6. “Norma CNEN NN 8.01: Gerência de rejeitos radioativos de baixo e médio níveis de radiação” <http://www.cnen.gov.br/seguranca/normas/pdf/Nrm801.pdf> (2014).