

# ANÁLISE DOS RADIONUCLÍDEOS ENCONTRADOS NA ÁGUA DO REATOR IEA-R1

*Guilherme S. Zahn, Regina B. Ticianelli,  
Paulo S. C. da Silva, Frederico A. Genezini*

Centro do Reator de Pesquisas – IPEN-CNEN/SP  
Av. Professor Lineu Prestes, 2242  
05508-000 São Paulo – SP  
gzahn@ipen.br

## RESUMO

O reator IEA-R1 é do tipo piscina aberta, construído nos anos 1950. Nos últimos anos, ele opera a 4,5MW por oito horas às segundas, terças e quartas. Em todo dia de operação, duas amostras da água do reator são retiradas, uma antes de o reator ser ligado pela manhã e outra em torno das 16h, próximo ao final as operação. Essas amostras são contadas em um detector HPGe por 1500 s para verificar possíveis problemas com os elementos combustíveis, entre outros. Neste trabalho, os resultados obtidos nessas análises ao longo de alguns meses de 2019 são discutidos em termos dos radionuclídeos encontrados, bem como da dependência da sua atividade com o tempo.

## 1. INTRODUÇÃO

IEA-R1 é o reator mais antigo em operação no Brasil, e também o maior reator de pesquisa do país. É um reator tipo piscina aberta construído no final dos anos 1950, com uma potência nominal de 5MW; nos últimos anos, no entanto, ele opera 8,5h por dia (das 7h30 às 16h, principalmente), três dias por semana (de segunda a quarta), a 4,5MW.

A água da piscina do reator nuclear é um elemento essencial na operação segura do reator [1] e, como esta entra em contato próximo com o núcleo, onde o fluxo neutrônico é mais alto, ela deve ser altamente desmineralizada para reduzir a formação de radionuclídeos por irradiação com nêutrons. Além disso, a água da piscina é um excelente indicador de problemas nos elementos combustíveis, já que qualquer vazamento irá inevitavelmente introduzir produtos de fissão na água da piscina.

Como parte do processo de garantia da qualidade do reator IEA-R1, a água da sua piscina é analisada duas vezes por dia para verificar a presença de radionuclídeos que possam indicar problemas, seja nos elementos combustíveis ou no processo de purificação da água. Para tal, 100 mL da água da piscina são coletados duas vezes por dia de operação, uma às 7h, antes do reator ser ligado, e outra às 15h, próximo ao final da operação diária. A radiação gama emitida por essa água é então analisada em um detector HPGe, e no espectro resultante checa-se a presença de picos gama espúrios. A coleta da água propriamente dita é feita utilizando-se uma pequena bomba conectada a uma torneira, e a água é coletada diretamente sobre o núcleo, a 1 m de profundidade (ou seja, a aproximadamente 5 m do topo do núcleo) em um recipiente plástico.

Neste trabalho, as amostras de água do reator foram contadas em um detector HPGe caracterizado para identificar e quantificar os radionuclídeos mais relevantes encontrados; as medidas foram feitas ao longo de dois meses, para permitir uma discussão sobre a dependência das atividades com o tempo.

## 2. PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

Após as amostras de água serem coletadas pelos operadores do reator e analisada da maneira usual (ou seja, num detector HPGe convencional), como exigido pela garantia de qualidade do reator, as mesmas amostras foram contadas uma segunda vez, num detector HPGe caracterizado, de modo a obter-se valores precisos para as atividades dos radionuclídeos presentes na amostra; como consequência

deste procedimento, as amostras de água foram contadas entre trinta e quarenta minutos após a coleta.

O detector utilizado foi um HPGe marca Canberra, tipo *Extended Range*, com 40% de eficiência nominal e janela de compósito de carbono; o detector foi caracterizado na fábrica, de modo que sua eficiência pode ser calculada precisamente usando-se o software LabSOCS, também da Canberra [2].

As amostras foram contadas por 1500 s (tempo vivo) e os espectros foram analisados usando o software Genie-2000, também da Canberra. O primeiro passo na identificação dos nuclídeos foi feito usando-se a rotina NID (*Nuclide IDentification*, ou identificação de nuclídeos) do Genie-2000 com uma biblioteca de nuclídeos especialmente preparada que inclui os produtos de fissão mais comuns, além de uma série de produtos de ativação neutrônica que poderiam ser encontrados na piscina. Como o software falhou em identificar nuclídeos que estavam claramente presentes, um segundo passo foi então incluído no procedimento, localizando-se as transições gama mais intensas que não foram associadas automaticamente a nenhum nuclídeo e associando-as manualmente aos nuclídeos correspondentes. As eficiências de detecção utilizadas no cálculo das atividades foi a obtida no software LabSOCS, as intensidades gama foram obtidas de [3]. Usando estes dados, a atividade de cada radionuclídeo foi determinada pela Equação 1, em que  $A$  é a atividade total na amostra de 100 mL,  $cps$  é o número de contagens por segundo de uma transição específica,  $\varepsilon(E)$  é a eficiência para esta energia e  $I_\gamma$  é a intensidade da transição. Quando mais de uma transição foi associada ao mesmo radionuclídeo, uma média ponderada pelo inverso do quadrado das incertezas foi empregada para chegar-se ao resultado final. É importante ressaltar que não foi feita nenhuma correção para o decaimento da amostra desde a sua coleta.

$$A = \frac{cps}{\varepsilon(E) \cdot I_\gamma} \quad (1)$$

### 3. RESULTADOS E DISCUSSÃO

Os principais nuclídeos identificados nas amostras de água são mostrados na Tabela 1, junto com suas meias-vidas e as transições gama usadas na sua identificação e quantificação. Deve-se ressaltar que, como as análises foram feitas entre 30 e 40 minutos após a água ser coletada da piscina, nuclídeos de meia-vida curta que se espera encontrar na água da piscina do reator, como  $^{16}\text{N}$  e  $^{28}\text{Al}$ , por exemplo [1], não puderam ser observados. Além disso, o pico de 511keV da aniquilação elétron-pósitron foi observado mas não pode ser associado unicamente a qualquer

nuclídeo específico, já que pode advir de qualquer nuclídeo emissor de  $\beta^+$  e, numa proporção menor, também de qualquer nuclídeo que emita radiação gama de alta energia que possa gerar pósitrons pelo processo de produção de pares.

A Figura 1 mostra a variação das atividades dos nuclídeos identificados, a figura do lado esquerdo refere-se às amostras matinais enquanto a do lado direito mostra os resultados obtidos com as amostras da tarde.

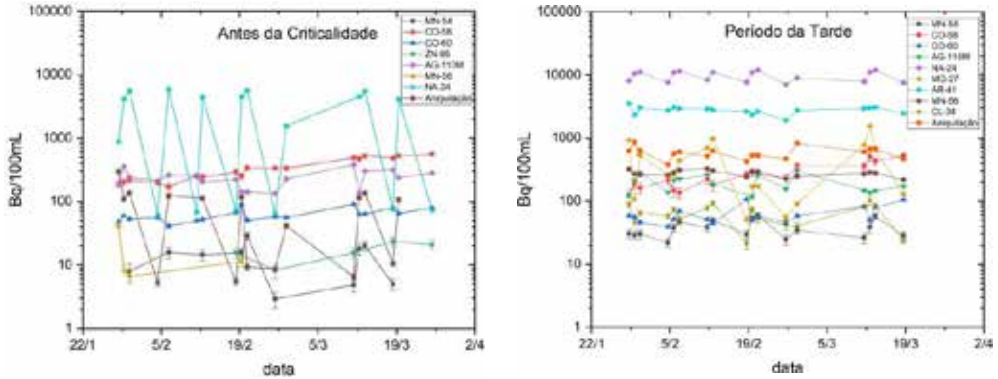
**Tabela 1** – – Dados básicos sobre os radionuclídeos identificados – os dados nucleares foram extraídos de [3]

Radionuclídeo	Energia da transição gama (keV)	Meia-vida
24Na	1368,6 <sup>1</sup>	14,96 horas
27Mg	843,7; 1014,4	9,46 minutos
38Cl	1642,7; 2167,4	37,2 minutos
41Ar	1293,6	109,3 minutos
54Mn	834,8	312,3 dias
56Mn	846,8; 1810,8; 2113,1	2,58 horas
58Co	810,8	70,86 dias
60Co	1173,2; 1332,5	5,27 anos
65Zn	1115,5	244,3 dias
110mAg	657,8; 706,7; 763,9; 884,7; 937,5; 1384,3; 1505,0	249,8 dias
Aniquilação	511	Indefinido <sup>2</sup>

A transição gama extremamente intensa de 2754,0 keV estava acima da faixa de operação do detector e não pôde ser observada; os picos de escape simples e duplo referentes a ela foram observados, mas não foram utilizados na quantificação.

A emissão de 511 keV é consequência de qualquer processo de aniquilação elétron-pósitron, de modo que não pode ser unicamente associada a qualquer nuclídeo – ela pode, no entanto, ser um bom indicador da presença de nuclídeos emissores  $\beta^+$ .

**Figura 1** – Variação das atividades dos núclídeos com a data de amostragem; à esquerda estão os resultados referentes às amostras coletadas logo antes da partida do reator, e à direita, às amostras coletadas com o reator em operação, próximo à hora da parada.



De maneira geral, como o reator fica desligado por mais de quinze horas toda noite, as amostras colhidas antes da partida (manhã) apresentam basicamente isótopos de meia-vida longa, enquanto alguns de meia-vida mais curta podem ser observados nas amostras da tarde; além disso, como o reator opera de segunda-feira a quarta-feira e fica desligado da tarde de quarta-feira até a manhã da segunda-feira seguinte, pode-se observar uma variação semanal – esta é mais perceptível nas atividades de  $^{24}\text{Na}$  das amostras matinais. Também pode-se observar que a atividade dos núclídeos de meia-vida mais longa tendem a crescer com o tempo – isso pode ser facilmente percebido nas atividades do  $^{58}\text{Co}$  e  $^{60}\text{Co}$ .

Observando-se os radionuclídeos identificados, alguns trabalhos na literatura [4-6] indicam que  $^{24}\text{Na}$  e  $^{27}\text{Mg}$  são produzidos em reatores a partir das reações  $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$  e  $^{27}\text{Al}(n, p)^{27}\text{Mg}$ , uma vez que o Al é o principal componente do encapsulamento dos elementos combustíveis – o núclídeo  $^{28}\text{Al}$ , produzido diretamente a partir da ativação neutrônica direta do Al, tem meia-vida curta (2,2 minutos) e desse modo não seria observado nessas medidas.  $^{38}\text{Cl}$  e  $^{41}\text{Ar}$  também são comumente encontrados na água de reatores nucleares, originando-se na ativação neutrônica de Cl e Ar, respectivamente. Os isótopos de magnésio, cobalto e zinco originam-se na ativação de componentes do aço usado na superfície interna da piscina e na tubulação do circuito primário de refrigeração, e  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  vem da ativação da prata usada nas barras de controle.

Alguns radionuclídeos com atividade muito baixa foram identificados em um número pequeno de amostras, mas não foram incluídos na presente análise e mereceriam uma inspeção mais cuidadosa, possivelmente com um tempo de

contagem bastante superior aos 1500s usados neste trabalho. Entre estes estão  $^{59}\text{Fe}$ , da ativação do aço, e também alguns isótopos de índio, das barras de controle.

Um resultado muito importante é que nenhum nuclídeo ligado diretamente à irradiação de urânio ( $^{239}\text{Np}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , entre outros) foi encontrado, indicando que a integridade dos elementos combustíveis está preservada.

## 4. CONCLUSÕES

Neste trabalho a água da piscina do reator IEA-R1 foi analisada e os radionuclídeos mais ativos nela presentes foram identificados. Estes nuclídeos puderam ser associados com a ativação de elementos atmosféricos, bem como com a ativação neutrônica de componentes do reator – principalmente do alumínio dos elementos combustíveis, do aço da superfície interna da piscina e da tubulação do circuito primário, e da prata das barras de controle. Por outro lado, nenhum nuclídeo associado com a ativação do urânio ou com a fissão foi encontrado, indicando que a integridade dos elementos combustíveis está preservada.

## AGRADECIMENTOS

Os autores gostariam de agradecer ao corpo de operação do reator IEA-R1, sem o qual este trabalho não seria possível.

## REFERÊNCIAS

1. IAEA. *Good practices for water quality management in research reactors and spent fuel storage facilities*. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2011.
2. BRONSON, F. Validation of the accuracy of the LabSOCS software for mathematical efficiency calibration of Ge detectors for typical laboratory samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, v. 255, p. 137-141, 2002.
3. CHU, S. Y. F.; EKSTRÖM, L. P.; FIRESTONE, R. B. *The Lund/LBNL Nuclear Data Search*. 1999. Disponível em: <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/>.
4. MECK, R. A. *Argon-41 production by the OSU TRIGA-III reactor 1968*. Master of Science (General Science, Radiological Physics) – Oregon State University, Oregon, 1968.
5. KRISTAN, J. *et al. Radiation protection measurements around the TRIGA reactor of the Institute J. Stefan, Ljubljana*. Ljubljana, Iugoslávia,

1977. Disponível em: [https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/\\_Public/40/038/40038208.pdf](https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/40/038/40038208.pdf).

6. AZIZ, A. *Gamma emitting radionuclides in the cooling system of pakistan research reactor*. PINSTECH-73-2, Pakistan Institute of Nuclear Science and Technology ISLAMABAD, 1973. Disponível em: [https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/\\_Public/04/071/4071749.pdf](https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/04/071/4071749.pdf).

