

# Estimativa do fator de diluição para efluentes radioativos líquidos empregando os radiotraçadores H-3 e Cs-137 presentes como poluentes

Marcelo Bessa Nisti<sup>1</sup> e Adir Janete Godoy dos Santos<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – Comissão Nacional de Energia Nuclear  
055080-000, Brasil  
[mbnisti@IPEN.br](mailto:mbnisti@IPEN.br)  
<http://www.IPEN.br>

**Resumo.** Estimou-se o fator de diluição para efluentes líquidos, no ponto de descarga do IPEN, empregando como radiotraçadores os radioisótopos liberados rotineiramente para a rede de esgoto da CUASO  $^3\text{H}$  e  $^{137}\text{Cs}$ , não gerando custo monetário ou ambiental associados à estimativa. O radiotraçador  $^{137}\text{Cs}$  foi determinado por espectrometria gama e para o radiotraçador  $^3\text{H}$  o método utilizado foi cintilação em fase líquida. Os resultados mostraram que o valor do fator de diluição variou por radioisótopo empregado, em ordem crescente do  $^3\text{H}$  e  $^{137}\text{Cs}$ , de acordo com as características de cada elemento. As médias dos fatores de diluição obtidas no primeiro e segundo dia de liberação respectivamente foram 4,3 e 7,4 para o  $^3\text{H}$  e 6,2 e 13,9 para o  $^{137}\text{Cs}$ . As razões dos fatores de diluição do  $^3\text{H}$  e  $^{137}\text{Cs}$  calculados foram coerentes com a razão verificada nos doze hidrômetros distribuídos pelo campus do IPEN. Os resultados obtidos contribuem para fornecer subsídios que permitam a melhoria da conduta ambiental institucional e para estabelecer procedimentos otimizados, sob a regulamentação vigente. Os fatores de diluição foram estimados em estudo operacional e laboratorial, numa única descarga controlada do tanque TR1. O estudo sistêmico ambiental deve ser estabelecido caso a caso.

## 1 Introdução

O Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN) está localizado na Cidade Universitária Armando de Salles Oliveira (CUASO) em São Paulo, e ocupa uma área aproximada de 500.000 m<sup>2</sup>. A rede coletora de esgoto do IPEN é constituída de tubulações de diâmetros de 150 mm e 200 mm, sendo de 200 mm na saída da rede de esgoto [1]. O ponto de descarga E1, próximo à guarita na Rua Prof Marcello Damy de Souza Santos conecta-se à rede da CUASO. Todo o esgoto produzido no IPEN, assim como em toda a CUASO, segue para a Estação de Tratamento de Esgoto de Barueri (ETE-Barueri), da Companhia de Saneamento Básico do Estado de São Paulo (SABESP) [2]. Os efluentes radioativos líquidos gerados pela instalação do Reator Nuclear IEA-R1 localizado no IPEN são encaminhados ao local de estocagem (tanque de retenção TR1), para posterior análise qualitativa e quantitativa, sob o ponto de vista radiológico. Após esta avaliação os efluentes são então descartados na rede de esgoto da Cidade Universitária [3]. O objetivo do trabalho é estabelecer a estimativa do fator de diluição dos efluentes radioativos líquidos na saída da rede de

esgoto do *ipen* em interface com a rede coletora da Cidade Universitária Armando Salles de Oliveira (CUASO) em São Paulo e contribuir para adequações inerentes ao cumprimento da regulamentação ambiental vigente.

## 2 Metodologia

Na determinação do fator de diluição na saída de esgoto denominado ponto de descarte E1 localizado próximo a guarita na Rua Prof Marcello Damy de Souza Santos foram coletadas três amostras de 1L cada do tanque de retenção TR1 antes de liberação, para a determinação das concentrações iniciais dos radiotraçadores obtendo-se as concentrações médias e seus respectivos desvios padrões em Bq L<sup>-1</sup>. Foram executadas duas amostragens antes da liberação controlada do tanque de retenção e a partir da terceira amostragem procedeu-se à liberação do efluente radioativo líquido do tanque TR1 para a rede coletora de esgoto. Durante o período da liberação controlada do efluente radioativo líquido contido no tanque, foram realizadas 5 medidas para determinação do volume de efluente presente no tanque TR1. A primeira medida foi realizada antes de iniciar a liberação controlada do efluente radioativo líquido e no primeiro dia da liberação foram realizadas mais duas medidas. No segundo dia foram realizadas outras duas medidas. Todas as medidas do volume do efluente radioativo líquido presente no tanque TR1 foram realizadas em intervalos de aproximadamente 3 horas. Na determinação da vazão do tanque de retenção TR1 do Reator Nuclear IEA-R1 para a rede de esgoto interna ao IPEN, utilizou-se uma bomba mecânica localizada na parte seca interna do tanque TR1 [4]. Para estimar o fator de diluição existente na liberação dos efluentes radioativos líquidos, empregou-se como traçadores os radionuclídeos de meias-vidas longas, que são gerados rotineiramente como poluentes nos efluentes líquidos no Reator Nuclear IEA-R1, sendo armazenados no tanque de retenção de efluentes radioativos líquidos do Centro do Reator de Pesquisas (CRPq). Adotaram-se os radiotraçadores <sup>3</sup>H e <sup>137</sup>Cs presentes no tanque de retenção TR1, liberados rotineiramente como poluentes, seguindo o limite de descarga exigível. O radiotraçador <sup>137</sup>Cs foi determinado por espectrometria gama. As amostras de efluentes radioativos líquidos foram agitadas no frasco original de coleta, em seguida transferiu-se uma alíquota de 0,85 L com proveta para um frasco de polietileno denominado F850, para posterior análise. Utilizou-se um detector germânio hiperpuro (HPGe) modelo EGPC 25 com 25% de eficiência relativa e resolução 2,1 keV relativo ao <sup>60</sup>Co da marca INTERTECHNIQUE, associado a um sistema eletrônico constituído de BIN 7122 CANBERRA, fonte de alta tensão 659 ORTEC, Amplificador 572 ORTEC, Multicanal 919E ETHERNIM com 4096 canais ORTEC, um computador com programa emulador de multicanal Maestro da ORTEC [5] e programa de análise de espectros InterWinner-WinnerGamma 6.0 da ORTEC [6]. O tempo de contagem de cada amostra variou dependendo do radionuclídeo de interesse e do volume total de estocagem do efluente. Para a determinação da curva de eficiência de contagem utilizou-se padrões de referência da Amershan, <sup>241</sup>Am, <sup>133</sup>Ba, <sup>109</sup>Cd, <sup>139</sup>Ce, <sup>57</sup>Co, <sup>60</sup>Co, <sup>134</sup>Cs e <sup>88</sup>Y, com atividades na ordem de kBq. A verificação da curva de eficiência foi realizada utilizando amostras de intercomparações do Programa Nacional de

Intercomparação do Instituto de Radioproteção e Dosimetria (PNI-IRD), e as eficiências calculadas foram ajustadas para elaboração de uma curva de eficiência utilizando o programa InterWinner [6, 7]. A radiação de fundo do detector foi determinada utilizando-se a mesma geometria empregada para a amostra, contendo 0,85 L de água super pura, para o tempo de contagem de 150.000 segundos. Para o radiotraçador  $^3\text{H}$  o método utilizado foi cintilação em fase líquida. Para o preparo, as amostras foram agitadas e sub-amostradas. Transferiu-se uma alíquota de 50 mL com pipeta volumétrica para um sistema de destilação, submetendo-a a uma destilação lenta. O sistema de destilação foi constituído por um balão de fundo redondo acoplado a um condensador reto, mantendo-se a temperatura controlada de 96 a 97° C com manta aquecedora elétrica. O primeiro volume de 10 mL do destilado foi desprezado, esperou-se obter um segundo volume de 10 mL do destilado, este foi homogeneizado e transferiu-se 1,2 mL do mesmo, com auxílio de uma micro-pipeta Gilson P1000, para um recipiente de 20 mL próprio para cintilação. Acrescentou-se 18 mL da solução cintiladora Instagel-XF da Packard, agitou-se a mistura por aproximadamente 1 minuto até a homogeneização da solução cintiladora em fase líquida. Após a homogeneização o coquetel foi refrigerado e guardado em local escuro por um período mínimo de duas horas antes da contagem no sistema de detecção da cintilação em fase líquida. O sistema de detecção utilizado foi o Cintilador Líquido Tri-Carb, modelo 2100TR da marca Packard [8]. Para a determinação de eficiência utilizou-se o método tSIE, que consiste em relacionar a eficiência em cintilação para cada amostra com base na indução externa do espectro Compton de uma fonte de  $^{133}\text{Ba}$ , fornecendo o parâmetro de indicação de quench-QIP [8]. Utilizou para construção da curva de quench 6 padrões com diferentes agentes de quenching com atividade de  $327 \pm 18$  Bq e um padrão isento de quench com atividade  $4630 \pm 68$  Bq. A verificação da confiabilidade da eficiência foi realizada empregando-se a análise de amostras do PNI, seguindo a mesma metodologia das amostras de efluentes. O tempo de contagem adotado foi de 120 minutos. Para determinação da radiação de fundo do sistema de detecção utilizou-se a mesma geometria e condições do ensaio com água super pura. Para a estimativa do fator de diluição associado à liberação do efluente radioativo líquido, do tanque TR1 do IPEN ao ponto de descarga E1, foi necessário calcular a vazão do tanque de retenção TR1 e as concentrações dos radionuclídeos presentes no tanque TR1 e nas amostras coletadas no ponto de descarga E1 do IPEN [3, 7]. O fator de diluição foi estimado no ponto E1, pois este é o ponto de saída de esgoto mais importante para a liberação do efluente radioativo líquido no IPEN [2]. As medidas do volume de efluente radioativo líquido presente no tanque TR1 iniciaram-se no dia 13/05 às 9h09, antes da primeira liberação controlada do efluente na rede de esgoto. A seguir, executaram-se mais duas medidas do volume de efluente presente no tanque TR1, sendo às 12h00 e após a bomba mecânica de descarga ser desligada às 15h00. No segundo dia foram feitas mais duas medidas do volume do efluente presente no tanque TR1, a primeira antes de ligar a bomba mecânica de descarga, às 9h00, e a última medida após a bomba mecânica de descarga ser desligada, às 11h40. Com as cinco medidas dos volumes de efluente no tanque de retenção TR1, calculou-se a vazão da bomba mecânica de descarga. Para medir os volumes no tanque de retenção TR1, executou-se a medida manual da altura, com uma régua de madeira graduada onde a graduação representa o volume de efluente presente no tanque TR1, em  $\text{m}^3$ .

### 3 Resultados e conclusões

No cálculo da vazão consideraram-se os volumes medidos presentes no tanque de retenção TR1, o total de horas que a bomba mecânica de descarga ficou liberando o efluente do tanque TR1 e o volume residual do tanque de retenção TR1 que foi de 27,5 m<sup>3</sup>. A vazão média calculada foi de 10,9 ± 0,9 m<sup>3</sup> h<sup>-1</sup>. Aplicando a vazão calculada pelo intervalo de horas utilizadas na liberação e somada com o volume residual do tanque de retenção TR1, obteve-se o volume inicial no tanque de retenção TR1 de 120,2 m<sup>3</sup>. O volume inicial medido de efluente no tanque de retenção TR1 foi de 120 m<sup>3</sup>, isto demonstra que a vazão média calculada expressa a situação real do descarte para o tempo avaliado. Na estimativa do fator de diluição no ponto E1, para as três amostras de 1 L coletadas no tanque de retenção TR1 antes da liberação, foram determinados os radiotraçadores <sup>3</sup>H e <sup>137</sup>Cs. Calculou-se as médias das concentrações obtidas e seus respectivos desvios padrões. Os valores encontrados foram 56881 ± 3255 Bq L<sup>-1</sup> para o <sup>3</sup>H, e 291 ± 7 Bq L<sup>-1</sup> para o <sup>137</sup>Cs.

Os resultados das concentrações e incertezas dos radiotraçadores <sup>3</sup>H e <sup>137</sup>Cs nas amostras coletadas na rede de esgoto do IPEN no ponto E1 durante a liberação controlada do tanque de retenção TR1 são apresentados na Tabela 1.

Tabela 1. Concentração e incerteza dos radiotraçadores <sup>3</sup>H e <sup>137</sup>Cs (Bq L<sup>-1</sup>) em amostras da rede de esgoto do IPEN no ponto de descarte E1

Data	Hora	<sup>3</sup> H	<sup>137</sup> Cs
12/05	11h15	24,1 ± 1,4	< 1,4
13/05	8h30	67,0 ± 3,8	< 1,5
13/05	9h37	10361 ± 518	72,2 ± 3,0
13/05	10h35	14881 ± 748	43,4 ± 2,1
13/05	11h31	21963 ± 1098	65,9 ± 2,9
13/05	12h37	14629 ± 732	55,8 ± 2,6
13/05	13h33	11247 ± 563	39,4 ± 2,1
13/05	14h30	11913 ± 596	30,8 ± 1,8
13/05	15h30	3855 ± 193	11,2 ± 0,6
14/05	9h35	9727 ± 486	34,8 ± 1,9
14/05	10h30	9849 ± 493	24,7 ± 1,7
14/05	11h20	5367 ± 269	13,5 ± 1,3
14/05	14h15	491 ± 21	2,1 ± 0,4

Considerando a concentração dos radiotraçadores <sup>3</sup>H e <sup>137</sup>Cs (Bq L<sup>-1</sup>) presentes no tanque TR1 e após o início da liberação controlada do efluente radioativo líquido, estimou-se o fator de diluição no ponto E1, a partir da equação 1.

$$Fd_{E1,i} = \frac{C_{tr1,i}}{C_{E1,i}} . \quad (1)$$

Onde:

$Fd_{E1,i}$  = Fator de diluição no ponto E1, para o radiotraçador i.

$C_{tr1,i}$  = concentração inicial ( $Bq L^{-1}$ ), do radiotraçador i, no tanque TR1.

$C_{E1,i}$  = concentração determinada no ponto E1 ( $Bq L^{-1}$ ), para o radiotraçador

Na Tabela 2 são apresentados os resultados dos fatores de diluição dos radiotraçadores  $^3H$  e  $^{137}Cs$  calculados para o ponto de coleta E1, durante o período da liberação controlada do efluente radioativo líquido do tanque de retenção TR1.

**Tabela 2.** Fatores de diluição do tanque de retenção TR1 no ponto de coleta E1.

Data	Hora	$^3H$	$^{137}Cs$
13/05	9h37	5,5	4,0
13/05	10h35	3,8	6,7
13/05	11h31	2,6	4,4
13/05	12h37	3,9	5,2
13/05	13h33	5,1	7,4
13/05	14h30	4,8	9,4
<b>13/05</b>	<b>média</b>	<b>4,3</b>	<b>6,2</b>
14/05	9h35	5,8	8,4
14/05	10h30	5,8	11,8
14/05	11h20	10,6	21,5
<b>14/05</b>	<b>média</b>	<b>7,4</b>	<b>13,9</b>

As médias estimadas para os fatores de diluição obtidas no primeiro dia de liberação foram 4,3 para o  $^3H$  e 6,2 para o  $^{137}Cs$ . No segundo dia os fatores de diluição foram 7,4 para o  $^3H$  e 13,9 para  $^{137}Cs$ . As médias foram obtidas no período de funcionamento da bomba mecânica de descarga do tanque de retenção TR1. As razões das médias da estimativa dos fatores de diluições entre os dias das coletas para o  $^3H$  foi de 1,7 e  $^{137}Cs$  foi de 2,2. As razões dos fatores de diluição do  $^3H$  e  $^{137}Cs$  calculados estão coerentes com a razão verificada nos doze hidrômetros distribuídos pelo campus do IPEN nos dias das amostragens; a razão dos hidrômetros foi da ordem de 1,9. Observou-se pelos dados obtidos que o valor do fator de diluição variou por radiotraçador empregado, em ordem crescente do  $^3H$  e  $^{137}Cs$ . O trício apresenta comportamento similar ao seu isótopo estável, o hidrogênio, apresentando assim alta mobilidade na água [9,10]. Em meio aquoso, o isótopo  $^3H$  participa do equilíbrio de ionização da água, podendo estar presente na forma molecular ou de íons, substituindo o isótopo estável H-1 na reação reversível de ionização das moléculas de

água. O fator de diluição estimado para o trício corresponde ao fator de diluição aplicável à água, que é o solvente ou macro-constituente dos efluentes radioativos líquidos liberados pelo IPEN. Verificou-se que a razão do fator de diluição estimado para o trício nos dois dias de investigação resultou muito próxima ao valor da razão do consumo de água nos dias respectivos, possibilitando obter uma estimativa significativa no comportamento do meio aquoso na rede de esgoto durante a liberação. O Césio, metal alcalino, é altamente solúvel em água, sendo fortemente transportado neste meio e apresenta analogia química com o nutriente potássio, e pode ser encontrado em organismos biológicos em concentrações detectáveis, mostrando sua grande mobilidade ambiental [11]. Por ser fortemente iônico (eletrovalência 1+) e possuir solubilidade e mobilidade elevada em meio polar como a água, apresentou fator de diluição próximo ao do trício. Um fato que influenciou significativamente na variação dos valores estimados no dia 1 e no dia 2 do estudo, foi o consumo de água institucional, que variou por dia e horário. O ponto E1 adotado da rede coletora de esgoto é a saída mais importante atualmente para a liberação do efluente radioativo líquido no IPEN. No nível operacional, verificou-se que o fator de diluição é diferenciado por grupo químico. Para as estimativas dos fatores de diluição do  $^3\text{H}$  e o metal alcalino  $^{137}\text{Cs}$ , obteve-se valores coerentes entre eles e com a razão dos doze hidrômetros instalados no IPEN. Foi verificado pelos resultados obtidos que os fatores de diluição variaram durante o período de amostragem, tendo sido estimado para uma liberação controlada do tanque TR1 (operacional). Os fatores de diluição deveriam ser estimados para outras liberações. A estimativa dos fatores de diluição não gerou custos monetários adicionais, além de impedir a adição de radionuclídeos que seriam liberados ao meio ambiente. Os resultados gerados contribuem e fornecem subsídios para o ajuste de conduta institucional, sob os mecanismos regulatórios vigentes e para estabelecer procedimentos otimizados de gestão ambiental. Os parâmetros envolvidos neste estudo são válidos para o IPEN durante o período estudado. Outros cenários devem ser avaliados caso a caso. O estudo apresentado poderá ser aplicado para instalações radiativas, nucleares ou convencionais de diversos portes, considerando-se os poluentes potencialmente liberados como possíveis traçadores e radiotraçadores em estudos ambientais, sob o enfoque da produção mais limpa e gestão ambiental sistêmica.

## Referências

1. IPEN.: Planta geral do *IPEN* – desenho Gilberto em 12/07/94 e alterado por Elizabeth em 12/07/03, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo, (2003)
2. IPEN.: RGI-IPN-3.04-00. RELATÓRIO GERAL DO IPEN. Hidrologia, documento interno, Sistema Gestão Integrada, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo, (2006)
3. Nisti, MB., Santos, AJG.: Assessment of radioactive liquid effluents release at IPEN-CNEN/SP.. In: The Natural Radiation Environment, Vol. 1. American Institute of Physics (2008)
4. IPEN.: Planta detalhe geral das ligações para o tanque de retenção de efluentes radioativos líquidos do Reator Nuclear IEA-R1 - desenho Carlos 17/05/74, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo, (1974)
5. MAESTRO.: Maestro for Windows model A65-B32 version 5.30 (2001)
6. INTERWINNER.: InterWinner (WinnerGamma) Spectroscopy Program Family Version 6.0 (2004)
7. Nisti, M.B.: Sistema Ambiental Aplicado à Liberação de Efluente Radioativo Líquido. Dissertação (Mestrado) - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo, (2009)

8. TRI-CARB LIQUID SCINTILLATION ANALYZERS MODELS 2100TR/2300TR.: Operation Manual, Parckard Instruments (1995)
9. Lurie, J.: Handbook of Analytical Chemistry. MIR Publishers (1978)
10. Leonardo, L.: Determinação de trício e estrôncio-90 no controle radiológico do IPEN-CNEN/SP. Dissertação (Mestrado) - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo, (2004)
11. Rocca, F.F.D.: Estimativa da dose nos indivíduos do público decorrente da liberação de efluente líquido pelo *IPEN*. Dissertação (Mestrado) - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo, (1995)