



**INSTITUTO DE ENGENHARIA NUCLEAR**

**RT-IEN-13/2006**

**Metodologia para Medição e Determinação da Radioatividade  
na Água do Reator Argonauta**

por

***Luis F. Bellido***

Novembro/2006

NOTA  
ESTE RELATÓRIO É PARA USO EXCLUSIVO DO INSTITUTO DE  
ENGENHARIA NUCLEAR

O direito a utilização de informações relacionadas ao trabalho de pesquisa realizado no IEN é limitado aos servidores da CNEN e pessoal de organizações associadas, nos limites dos termos contratuais que regem os respectivos convênios. O conteúdo dos relatórios não pode ser separado ou copiado sem autorização escrita do IEN.

<b>Título:</b> Metodologia para Medição e Determinação na Radioatividade da Água do Reator Argonauta.				
<b>Autor:</b> Luis F. Bellido				e-mail: lbellido@cnen.gov.br
Identificação: RT-IEN-13/2006	Nº de páginas:	Tipo de Divulgação: Irrestrita (X) Restrita ( )	Divulgar para: IEN	Localização: Intranet.ien
Publicação externa associada (congresso/periódico):				
Palavras chave: Reator Argonauta, Análise da água do reator, Espectrometria gama, Produtos de Fissão, Gases Nobres.				
<p><b>Resumo:</b> Foi desenvolvida uma nova metodologia para a medição e determinação dos radionuclídeos na água do reator Argonauta que é analisada periodicamente para verificar a integridade das placas dos elementos combustíveis. Foram determinadas pela primeira vez, as atividades dos radionuclídeos Kr-89, Xe-137, Xe-138 e Cs-138 que são de meia vida curta. Inicialmente, realizou-se um estudo de possíveis interferências para selecionar os raios gamas mais apropriados nas determinações dos núclídeos normalmente encontrados na água do reator e medidos pela técnica de espectrometria gama. Constatou-se que as contagens muito longas efetuadas no passado estavam comprometendo as análises já que havia perda dos gases nobres durante as contagens. Recomenda-se, no lugar de realizar a coleta mensal (em operações com tempos superiores de 120 minutos e de 340 W), realizar o levantamento radiométrico do tanque de dreno em toda operação do reator e quando houver uma anormalidade coletar a água para realizar as medições por espectrometria gama usando um detector de alta resolução de germânio hiperpuro.</p>				
<p><b>Abstract:</b> A new methodology has been developed for measuring and determining radionuclides in an Argonauta's water reactor that is routinely performed to verify the integrity of fuel elements. For the first time, activities of short-lived radionuclides: Kr-89, Xe-137, Xe-138 and Cs-138 were determined. After a carefully study of possible interferences through gamma ray spectrometry of fission products, commonly found in water reactors, the best gamma rays were selected. It was also found that long counts made in the past were incorrect, due to losses of noble gases by diffusion during the counting. It is recommended that instead of a monthly collection of water for analysis (in reactor operations with 340 W with more than 120 minutes) to carry out a radiometric survey of the water tank after every operation and, when the level of radioactivity is higher, a water sample be taken and an investigation should be performed with a gamma-ray spectrometry using high resolution germanium detector (HPGe).</p>				
Emissão		Nome	Rubrica	Data
Data:	Elaboração:	Luis F. Bellido		30/11/2006
Divisão:	Revisão:			
Serviço:	Aprovação :	Júlio Cesar Suita		
Instituto de Engenharia Nuclear: Via 5 s/n, Cidade Universitária, Ilha do Fundão, CEP 21945-970, CP 68.550, Rio de Janeiro – RJ – Brasil . Tel.: 00 55 21 2209-8080      Internet: <a href="http://www.ien.gov.br">www.ien.gov.br</a>				

## 1. Introdução

O Argonauta foi o primeiro reator construído no Brasil por empresa nacional. Seu nome é oriundo do projeto desenvolvido no Laboratório Nacional de Argonne dos Estados Unidos. O reator Argonauta opera desde 1965 e é licenciado para operar continuamente a uma potência de 500 Watts ou a 1kW por uma hora. Entretanto, atualmente a potência máxima freqüentemente utilizada é de 340 Watts. O reator utiliza U-235 a 20% na forma de óxido ( $U_3O_8$ ), e a configuração atual do núcleo é composta por 8 elementos combustíveis, sendo 4 elementos constituídos por 17 placas com 21 gramas, 2 elementos com 11 placas e mais 6 placas com 10 gramas e por último 2 elementos combustíveis com 7 placas com 10 gramas de óxido de urânio.

Entre as varetas ou placas circula água deionizada, que tem função de refrigeração do núcleo e como moderador de nêutrons. Rotineiramente, para verificar a integridade dos elementos combustíveis, são realizadas medidas da radioatividade dessa água, pois na eventualidade de ocorrer uma fissura ou rompimento de uma vareta haverá presença de produtos de fissão.

O presente relatório apresenta os resultados de análises anteriores e após algumas avaliações e considerações dos resultados experimentais obtidos, propõe-se uma nova metodologia, tanto para a realização das medições como para as determinações dos radionuclídeos presentes na água do reator, que normalmente são gases nobres radioativos de xenônio e criptônio e seus descendentes.

## 2. Histórico das análises realizadas

Nos arquivos da Divisão de Reatores (DIRE) o primeiro relatório da Seção de Proteção Radiológica (SEPRAD), sobre as análises da água do reator Argonauta, data de 18/09/1984. Jesse J.G. Silva fornece as atividades dos radionuclídeos medidos por 16 horas, em um litro da água do reator, num detector de Ge(Li). Os radionuclídeos encontrados foram: Kr-85m, Kr-87, Kr-88 e Xe-135 cujas atividades corrigidas para o fim da operação do reator foram de 0,77 pCi/cm<sup>3</sup>, 8,10 pCi/cm<sup>3</sup>, 2,10 pCi/cm<sup>3</sup> e 0,98 pCi/cm<sup>3</sup> respectivamente. Também foram encontrados os radionuclídeos Rb-88 e Cs-138, filhos respectivamente do Kr-88 e Xe-138, que não foram quantificados.

De acordo com os registros, a maioria das análises eram efetuadas após operações a 170 Watts com duração igual ou superior à uma hora. A título de ilustração citam-se a seguir alguns resultados das análises, com as atividades corrigidas para o final da operação, em Bq/m<sup>3</sup>. No relatório de 8/02/1985, relativo as operações do mês de janeiro, consta que além dos nuclídeos normalmente detectados nas águas do reator houve a presença de quantidades pequenas de I-133 e I-134. Na operação do dia 30/01/85 reporta-se as atividades, do I-135

( $3,7 \times 10^4$ ), além das dos nuclídeos normalmente encontrados. O Xe-133, também relatado, não foi quantificado por falta do fator de eficiência para a energia gama de 81 keV. O relatório da operação No. 2915 mostra a presença de I-133, I-134 e I-135, além de outros nuclídeos normalmente quantificados.

Os radionuclídeos e respectivas atividades relativos à operação No. 2965, de Janeiro de 1987, quando o reator operou a 170 W, são:

Kr-85m	$1,0 \times 10^6$
Kr-88	$3,1 \times 10^5$
Kr-87	$2,3 \times 10^5$
Xe-138	$7,2 \times 10^5$
Xe-135	traços
Ar-41	$2,1 \times 10^4$
I-134	$5,7 \times 10^4$

Na operação 2967 a 850 W em 23/01/1987, de duração em torno de 1 h, os resultados foram:

Kr-85m	$7,8 \times 10^6$
Kr-88	$3,2 \times 10^6$
Kr-87	$4,0 \times 10^6$
Xe-138	$1,2 \times 10^7$
Xe-135	$9,7 \times 10^4$
Ar-41	$1,4 \times 10^5$

Em 06/12/1989, na operação do reator a 170 W por 1 h e 40 min, as atividades obtidas foram:

Kr-85m	$1,0 \times 10^5$
Kr-88	$4,5 \times 10^4$
Kr-87	$6,3 \times 10^4$
Xe-138	$3,6 \times 10^4$
Ar-41	$1,6 \times 10^3$

Os relatórios apontam a presença de traços de Rb-88 e Cs-138 como produtos de decaimento.

Na década de noventa, os relatórios apresentados pelo Serviço de Radioproteção a DIRE, não especificam o sistema de medição utilizado nas análises da água do reator; entretanto o número de nuclídeos reportados, indica a utilização de um detector de cintilação de NaI(Tl). Consta ainda, mas não foram apresentados os dados, que nas operações do reator Nos. 3192 e 3214, de 07/08/91 e 05/09/91 respectivamente, houve a presença de traços de fissão. Apenas dois relatórios verificados indicavam o detector utilizado. Em um deles, com data de 17/06/1991, foi reportada a presença de um raio gama com energia de 132 keV (não identificado). No outro, de 02/12/1997, Donald Binns e Gilson R. Aguiar comunicam a DIRE que a análise por espectrometria gama, utilizando um detector de iodeto de sódio, indicou uma pequena contaminação que não pôde ser devidamente avaliada tendo em vista a resolução desse tipo de detector e a grande quantidade de picos presentes na amostra. As condições de operação foram 340 W por 30 min. A hora da coleta foi às 14:14 h e a análise às 14:30 h.

Em 24 de setembro de 2001 há um relatório onde João C. P. da Silva, usando um detector de NaI(Tl), compara o espectro da água do reator com um espectro de

“background”. No espectro apresentado aparece um fopico em torno de 80 keV que não foi identificado, mas que deve ser o do Xe-133, de meia vida de 5,2 d, pois a energia corresponde a um raio gama emitido por esse nuclide.

Em junho de 2002, duas análises foram realizadas utilizando o sistema de espectrometria gama com detector de germânio hiper puro (GeHP). No dia 4, o presente autor reporta os resultados em cps, tendo em vista que na época não havia solução padrão para calibração de eficiência do detector. Os nuclídeos encontrados foram os seguintes: Kr-88 e seu filho Rb-88, Kr-85m, Xe-135 e Xe-133. Um raio gama de 558,5 keV, também presente no espectro, corresponde a um “prompt gamma” da reação  $Cd(n,\gamma)$ , resultante da incidência de nêutrons provenientes do reator Argonauta com o cádmio da blindagem do sistema de detecção. No relatório do dia 5, estão registrados os nuclídeos: Xe-133, Xe-135 e Ar-41 e o raio gama de 1435,9 keV. O fóton de 1435,9 keV corresponde ao Cs-138, filho do Xe-138, de meia vida 33,4 minutos. Uma vez que a contagem foi de 60.000 segundos e esse nuclide decaiu inteiramente antes do final da contagem, não haveria forma de determiná-lo. Daí a necessidade de elaboração de uma estratégia para a medição adequada dos radionuclídeos presentes na água do reator.

Nos relatórios emitidos pelo Laboratório de Espectrometria em 2003 não há referências à análise da água do reator, apenas às análises da água do tanque de rejeitos do ciclotron. Nos arquivos da DIRE, desse mesmo ano, há somente relatórios de exposição ocupacional e resultados de medida in-vivo apresentados pela DISR.

Em função da complexidade dos espectros gama obtidos nas medições da água do reator, decidiu-se realizar um estudo detalhado sobre as eventuais interferências espectrais provenientes da presença dos produtos de fissão e de seus descendentes. Constantes de decaimento foram determinadas, para identificação e/ou confirmação dos radionuclídeos envolvidos. Para o cálculo das atividades absolutas utilizou-se um coquetel radioativo, com fontes de referência do LNMRI-IRD, para calibração de eficiência nas novas condições de detecção e medição no sistema de espectrometria gama de alta resolução.

### 3. Materiais e Métodos

#### 3.1. Produtos de Fissão

O funcionamento de um reator nuclear está baseado na reação do urânio, no caso U-235, com nêutrons térmicos de energia 0,025 eV. Na reação de fissão nuclear ocorre, principalmente, a fragmentação do U-236 que devido a sua alta instabilidade, divide-se em dois fragmentos conhecidos como produtos de fissão (PF), com emissão de dois ou três nêutrons, responsáveis pela manutenção da reação em cadeia, e liberação, por reação, de uma energia aproximada de 200 MeV.

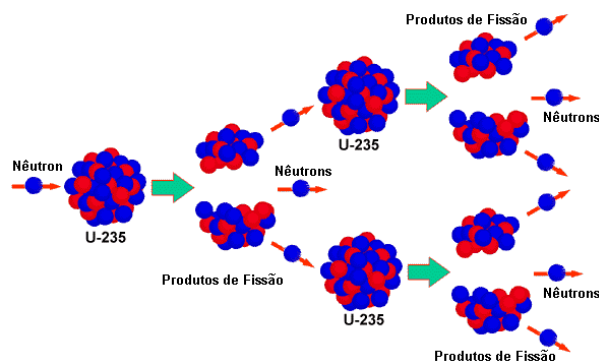


Figura 1. Reação nuclear de fissão do U-235.

Como o material fissionável (U-235), fica confinado dentro de uma vareta, os produtos de fissão não conseguem escapar do elemento combustível. Na figura a seguir, observa-se que a maior probabilidade, das massas atômicas dos fragmentos de fissão formados, fica em torno de 95 e 134.

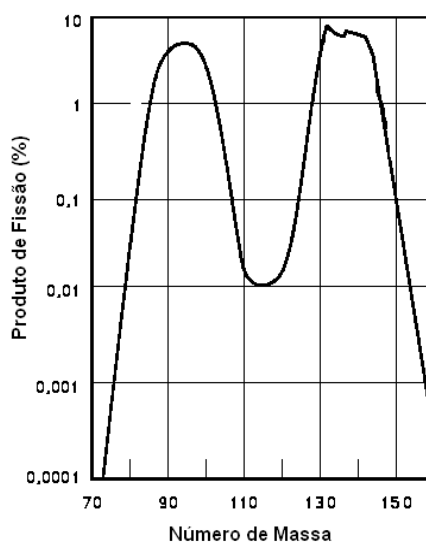


Figura 2. Distribuição dos produtos de fissão em função do número de massa atômica [2].

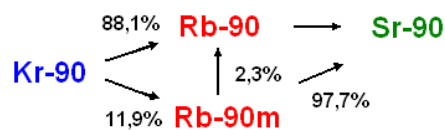
Neste trabalho foi dada ênfase aos isótopos dos gases nobres e a seus descendentes; os gases nobres, quimicamente inertes, difundem-se e atravessam as varetas, contaminando a água que circula pelo núcleo do reator.

Foram escolhidos, com base na tabela abaixo, os seguintes nuclídeos: Xe-138, Xe-133, Xe-135, Xe-137, Kr-90 e Kr-89. E dados nucleares: raios gama, probabilidades de emissão e meias vidas; foram compilados inclusive para seus descendentes.

Tabela 1. Principais rendimentos acumulativos das cadeias isobáricas da fissão do U-235 com nêutrons térmicos [1].

Número de Massa	Rendimento (%)	Número de Massa	Rendimento (%)
134	7,870	93	6,375
138	6,713	96	6,28
133	6,696	92	5,986
135	6,536	97	5,953
137	6,183	91	5,931
132	4,313	90	5,772
131	2,892	89	4,822
95	6,520	88	3,575
94	6,42	87	2,558

No caso do Kr-90 contatou-se uma discrepância nos dados nucleares. O esquema de decaimento, pela referência [3], é o seguinte:



Entretanto, como os dados nucleares adotados para este trabalho são os do Laboratório Nacional Henri Becquerel, BNM-CEA/LPRI, da França [4], considerou-se o Kr-90 como decaindo 100% para o Rb-90.

Os dados dos principais nuclídeos considerados neste estudo estão apresentados na tabela 2.

Tabela 2. Radionuclídeos de interesse neste estudo.

Nuclídeo	Energia (keV) e Prob. Emissão (%)	Meias Vidas
<b>I-133</b>	529,9 (87)    706,6 (1,51)    875,3 (4,51)	20,8 h
↓		
<b>Xe-133m</b>	233,2 (10,3)	2,188 d
↓		
<b>Xe-133</b>	80,998 (38,0)    160,6 (0,066)	5,244 d
↓		
<b>Xe-135</b>	249,8 (90,0)    608,2 (2,9)	9,14 h
↓		
<b>Cs-135</b>	1 beta	2,3 a
↑		
<b>Xe-135m</b>	<b>526,6 (80,9)</b>	15,29 m
↑		
<b>I-135</b>	1131,5 (22,6)    1260,4 (28,7)	6,57 h
↓		
<b>Xe-137</b>	455,5 (31,2)	3,818 m
↓		
<b>Cs-137</b>	2 betas	30,018 a
↘		
<b>Ba-137m</b>	661,6 (84,99)	2,552 m
↙		
<b>Xe-138</b>	258,3 (31,5)    434,6 (20,3)    1768,3 (16,7)	14,08 m
↓		
<b>Cs-138</b>	462,8 (30,7)    547,0 (10,7)    1009,8 (29,8) 1435,9 (76,3)	33,41 m
↓		
<b>Kr-85m</b>	151,2 (75) <b>304,8 (14) NCRP 58</b>	4,45 h
↓		
<b>Kr-85</b>	514 (0,437)	10,71 a
↓		
<b>Kr-87</b>	402,6 (49,6)    673,8 (1,89)    845,4 (7,36)	1,272 h
↓		
<b>Rb-87</b>	beta puro	
↓		
<b>Kr-88</b>	196,3 (26)    834,8 (13)    1529,8 (10,9)	2,84 h
↓		
<b>Rb-88</b>	898,0 (14,7)    1836,0 (22,4)	17,8 m
↓		
<b>Kr-89</b>	221,0 (20,1)    586,0 (16,7)    867,1 (5,9) ...	3,17 m
↓		
<b>Rb-89</b>	1031,9 (63)    1248,1 (46)	15,2 m
↘		
<b>Sr-89</b>	909,0 (0,00956)	
↙		
<b>Kr-90</b>	121,7 (38,5)    234,4 (2,65)    242,2 (9,9)    539,5 (30,8)	32,32 s
↓		
<b>Rb-90</b>	554,4 (5,1)    1118,7 (39)    1780,0 (6,7) 831,7 (40)    1060,7 (9,5)	2,70 m
↘		
<b>Sr-90</b>	Emissor beta puro.	
↓		
<b>Kr-79</b>	261,3 (12,7)    397,5 (9,3)    606,1 (8,1)	35,04 h
↓		
<b>Ar-41</b>	1293,6 (99,1)	1,822 h



Experimentalmente, praticamente todos os raios gama dos núclídeos mencionados na tabela 2 foram detectados na água do reator; inclusive o raio gama correspondente ao Ar-41, que é um produto de ativação. Elaborou-se uma planilha de cálculo, para as determinações das atividades absolutas de todos esses núclídeos. As energias dos raios gama do U-235 e Cs-137 aparecem na planilha, para que, na eventualidade de ocorrer uma ruptura do elemento combustível, as atividades possam ser calculadas, de acordo com as conclusões dos estudos efetuados no presente trabalho. Confirmou-se que esses núclídeos devem constar na planilha, a partir da análise do espectro gama de uma placa usada do reator Argonauta. No espectro aparecem todos os raios gama do U-235 e Cs-137, conforme figura 3. Tratando-se de uma região complexa do espectro, faz-se necessário a verificação de todos os raios gama, por isso foram incluídos os principais raios gama do U-235: 143,8 keV, 163,3 keV, 185,72 keV e 205,3 keV.

Neste trabalho realizou-se o necessário estudo da medição e determinação de radionuclídeos de meia vida curta; nunca antes realizado. Tendo em vista o decaimento radioativo desses núclídeos acrescentou-se na planilha de cálculo, o fator de correção relativo ao tempo de contagem [5]. Para otimizar as contagens, calculou-se, para determinados núclídeos, os tempos em que os filhos atingem as atividades máximas. Na figura 4, observa-se entre outros, os crescimentos e decaimentos do Rb-89 e Rb-88. O Rb-89 tem uma meia vida maior que a de seu precursor, atingindo a atividade máxima 9 minutos após o final da operação do reator. Para o Rb-88, cuja meia vida é mais curta do que seu antecessor, após atingir o equilíbrio (atividade máxima após 65 minutos do final da operação) ele começa a decair com a meia vida do pai.

A planilha de cálculo incluiu também a correção referente à contribuição da radiação de fundo (BG). Por exemplo, o raio gama de 185,7 keV (maior probabilidade de emissão) do U-235 está sempre acompanhado do fotopico correspondente a 186,2 keV do Ra-226, este último proveniente da série do decaimento do urânio natural. O método de Curie [6] é utilizado para calcular o limite de detecção para cada raio gama, a fim de avaliar se o fotopico é significativo para um nível de confiança de 95%.

### **3.2. Coleta da Água do reator**

Ao final da operação do reator, a água, que circula entre os elementos combustíveis, retorna ao denominado tanque de dreno (figura 5). Nesse tanque há uma saída que permite a retirada de amostras de água para análise. Em virtude das limitações impostas pelas blindagens dos detectores do Laboratório de Espectrometria Gama, o volume coletado é de 700 mL. Os frascos para armazenamento de amostra são de plástico, graduados para o volume de água coletada. Antes da coleta das amostras adiciona-se, a cada um dos recipientes plásticos, 1 mL de HCl 8 M.

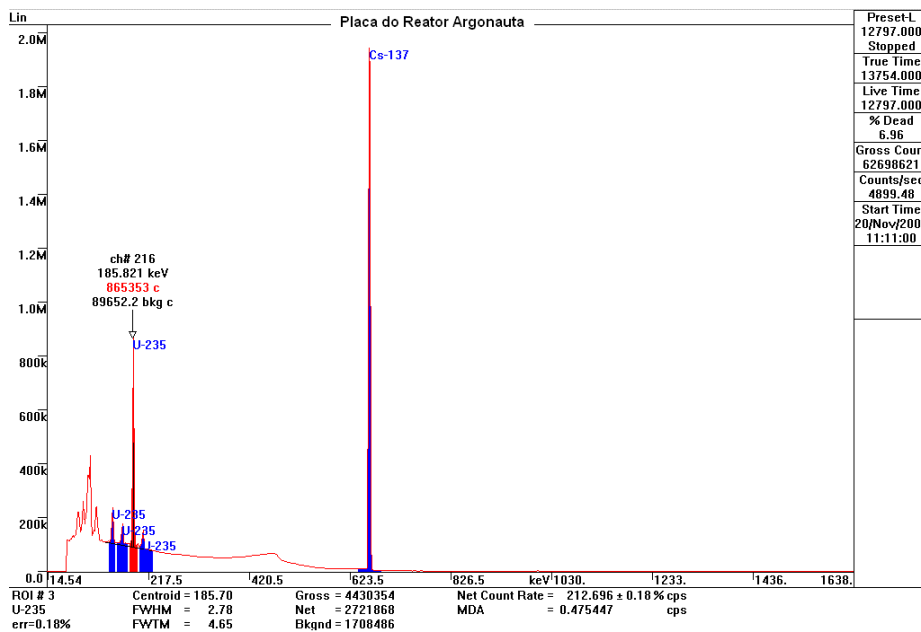


Figura 3. Espectro gama de uma placa do elemento combustível do reator Argonauta.

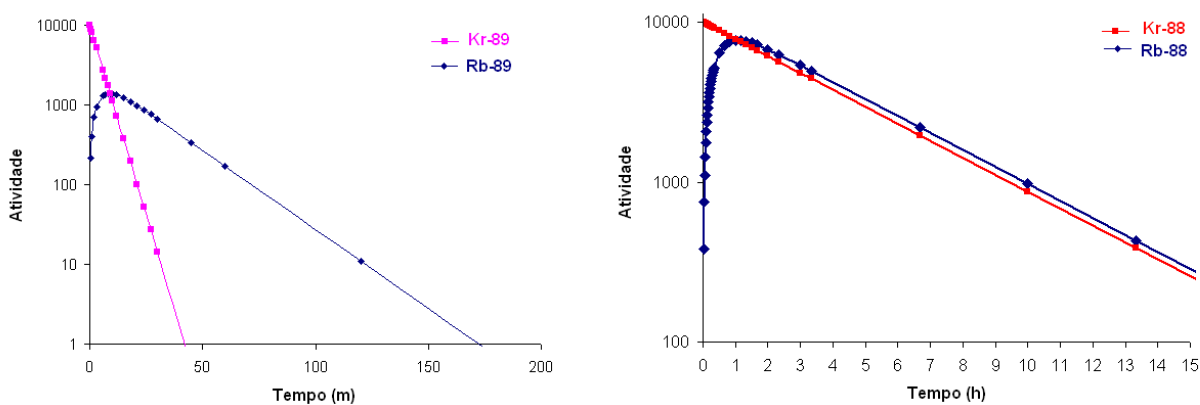


Figura 4. Decaimento do Kr-89 e Kr-88 e os comportamentos dos seus descendentes.

### 3.3. Sistema de Espectrometria Gama

O sistema de espectrometria gama de alta resolução com detector de GeHP entrou em operação no início de 2001, e já foi descrito detalhadamente [7]. O detector utilizado nas análises da água do reator foi o denominado Ge1, com resolução, para a energia gama de 1332,5 keV do Co-60, de 2,3 keV, e eficiência relativa do detector de 30%; acoplado a um analisador multicanal de 8192 canais.

### 3.4. Contagens

Optou-se por realizar três ou quatro medições, levando-se em consideração as diferentes meias vidas dos radionuclídeos detectados, os problemas de interferências e o decaimento e crescimento dos filhos. A primeira contagem tem por objetivo a medição dos radionuclídeos de meia vida curta: Xe-137, Kr-90, Kr-89 e Xe-138; deve ser realizada logo após a parada do reator, com tempo de contagem máximo de 1000 segundos. Após intervalo de 15 minutos a amostra deve ser contada novamente por 4000 segundos, para a detecção dos seguintes nuclídeos: Cs-138, Kr-85m, Rb-89, Kr-88, Rb-88, Xe-135m, (Xe-133) e Ar-41. A fim de evitar as interferências do Cs-138, a próxima medida é feita após um mínimo de 3,5 horas, contando-se novamente a água do reator por 5000 segundos, desta vez para a medição dos nuclídeos de meia vida longa: Kr-87, Xe-135, Xe-133m, Xe-133, (Kr-85), (Kr-88), (Ar-41), (Rb-88). Para amostras de atividade elevada e/ou espectros muito complexos é necessário realizar mais uma contagem, uma quarta medida, com duração de pelo menos 60000 s, com o objetivo de verificar se há outros nuclídeos presentes. Na ausência dos nuclídeos Xe-138 e conseqüentemente Cs-138, suspende-se a terceira contagem. Apesar da meia vida do Ar-41 ser de aproximadamente duas horas, observou-se experimentalmente que sua determinação é melhor na segunda medida. A figura 6 apresenta um espectro gama acumulado por 10.000 segundos, os fotopicos da radiação de fundo estão em negrito.

### 3.5. Análise dos Espectros e Eficiência do Detector

Neste trabalho, adotou-se o programa APTEC [8] para a determinação das áreas dos fotopicos, por sua versatilidade e análise adequada de espectros complexos. Entretanto, há a necessidade de converter para o formato em ASCII os espectros obtidos no sistema da Canberra pelo programa Genie 2000 (formato CNF). No programa **Gamma Acquisition & Analysis** do Genie 2000 executa-se o comando **Spectral Data Report** na opção **Analyze**, copiando em seguida o conteúdo que foi gerado para um arquivo do programa WordPad e salvando-o no formato texto. Para abrir esse arquivo no APTEC utiliza-se a opção NPLASCII.txt. Para uma descrição completa de este procedimento consultar referência [7].

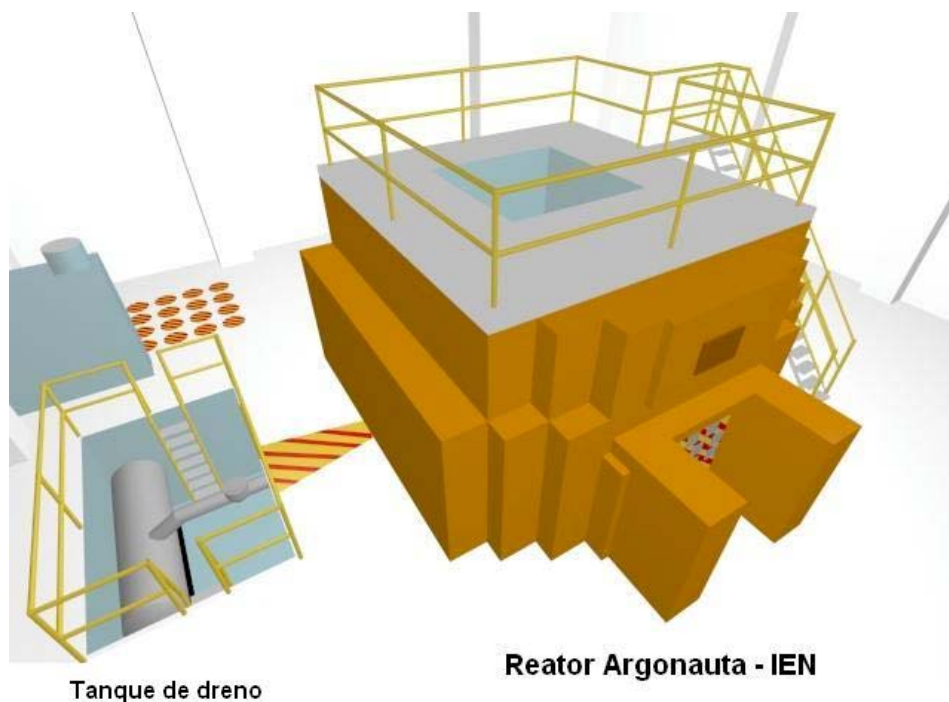


Figura 5. Reator do Instituto de Engenharia Nuclear.

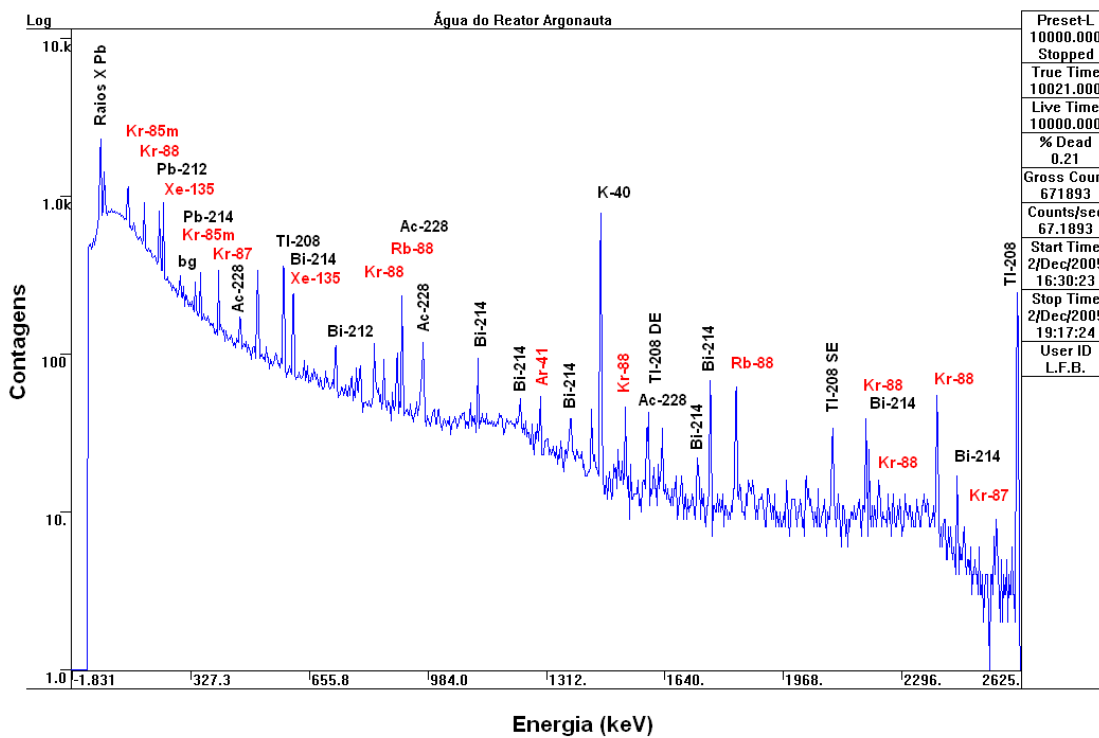


Figura 6. Espectro gama da água do reator, contagem longa.

A calibração de eficiência é realizada medindo-se a solução padrão, de 700 mL, fornecida pelo Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes – LMNRI do IRD/CNEN. O levantamento da curva de eficiência é feito através do programa APTEC, usando-se como opção um polinômio logarítmico de quinto grau. Os valores das constantes obtidas deverão ser transcritos para planilha de cálculo.

### **3.6. Interferências e Cálculo das Atividades**

Segundo o levantamento realizado para os principais produtos de fissão, e também levando em consideração os núclídeos encontrados experimentalmente, elaborou-se, a fim de ajudar nas avaliações das interferências, uma lista com todas as energias dos raios gama encontrados, em ordem crescente com suas respectivas probabilidades de emissões. A listagem encontra-se no apêndice A deste trabalho.

A tabela 3 apresenta os raios gama, criteriosamente selecionados, para realizar as determinações das atividades absolutas dos radionuclídeos, indicando as possíveis interferências. Os problemas de interferências a que estão sujeitos os radionuclídeos analisados são abordados individualmente na próxima seção.

## **4. Resultado e Discussão**

Os produtos de fissão são em torno de 400, com meias vidas variando de segundos a anos, os radionuclídeos dos gases nobres de xenônio e criptônio, com seus respectivos descendentes, são os mais relevantes.

Praticamente todos os núclídeos que foram considerados neste trabalho foram detectados e medidos. Em geral constatou-se que não existe uma relação, da presença dos radionuclídeos na água do reator com a potência ou com o tempo de operação. Portanto, não se justifica realizar análises quando o reator opera a 170 W, como no passado, nem tampouco uma vez ao mês, para operações com potencia de 340 W, procedimento adotado recentemente.

Na Tabela 4, são apresentados os resultados das análises da água do reator. As amostras foram coletadas antes da operação, imediatamente após e no dia seguinte, esta última, com a finalidade de observar o “build-up” dos radionuclídeos na água do tanque de dreno do reator. Pode-se observar que houve um decréscimo acentuado das atividades dos núclídeos de xenônio medidos imediatamente após a operação do reator, fato esperado tendo em vista as altas seções de captura de nêutrons térmicos, respectivamente de 190 e  $2,65 \times 10^6$  barn para o Xe-133 e Xe-135.

Tabela 3. Principais energias dos raios gama selecionados e interferências.

<b>Nuclídeo</b>	<b>Energia [keV]</b>	<b>Possíveis Interferências</b>
Xe-133m	233,22	Kr-90, Cs-138, (I-134)
Xe-133	81,00	(BG)
Xe-135m	526,56	(I-132, I-133, Xe-138))
Xe-135m	786,90	Kr-88, Cs-138
Xe-135	249,79	Kr-90
Xe-137	455,49	
Xe-138	258,41	
Xe-138	434,56	Kr-89, (I-134)
Cs-138	1435,86	
Cs-138	1009,78	
Kr-85m	151,20	Xe-138
Kr-85	513,99	511 keV (aniquilação)
Kr-87	402,58	Xe-138, Cs-138, (I-134)
Kr-87	845,44	Xe-137 , (I-134)
Kr-88	196,32	Cs-138, Kr-89
Kr-88	834,83	Kr-89, Kr-87, Rb-90, Rb-90m, (I-135)
Kr-88	1529,77	Kr-87, Kr-89
Rb-88	898,02	
Rb-88	1836,02	(Kr-89)
Kr-89	220,95	(I-135), (Kr-90)
Kr-89	576,96	
Kr-89	586,03	BG (583 keV)
Kr-89	1472,76	
Rb-89	1031,92	(I-135)
Rb-89	1248,14	Kr-88
Kr-90	121,74	Kr-88
Rb-90	831,69	Kr-89, Kr-88, (Kr-87, I-135)
Ar-41	1293,59	(I-132, I-133)
Cs-137	661,66	(I-132m, I-132, Rb-89)
U-235	185,72	BG (Ra-226)
U-235	143,76	
U-235	163,33	Kr-88, (Xe-135)
U-235	205,31	(Kr-89)
I-131	364,49	Kr-88, Kr-89
I-131	284,31	(Xe-138, I-135)
I-132m	772,60	(I-134, Cs-138)
I-133	529,87	Xe-138, (I-135, Xe-135m)
I-134	847,02	Kr-87
I-134	884,09	Cs-138
I-135	1131,51	(I-134, I-132)
I-135	1260,41	

A medição efetuada no dia seguinte à operação do reator, indicou um pronunciado efeito de “build up”, provavelmente devido aos precursores I-133 e I-135 (Tabela 2), e/ou provenientes do tratamento da água do reator.

A água do reator certamente contém o nuclídeo Xe-131m (meia vida 11,93 dias), que ainda não foi detectado, provavelmente devido à atividade e à probabilidade de emissão baixa (1,98%) para seu único raio gama de 163,93 keV.

Na tabela 4 não se observa o Xe-138, apesar da cadeia isobárica de massa 138 ter um alto rendimento de fissão (Tabela 1). Por não haver o rendimento individual do Xe-138, não se pode afirmar que este radionuclídeo estará sempre presente na água do reator. Experimentalmente, tem sido encontrado, às vezes, com elevada atividade.

A Tabela 5 mostra as atividades encontradas na água do reator da operação No. 5026. Para avaliar os efeitos da presença do Xe-138 e Cs-138, foram efetuadas medidas seguidas com diferentes tempos de contagens. As atividades que estão entre colchetes foram corrigidas para o horário do término da operação do reator. Nessa tabela os nuclídeos estão em ordem crescente de meias vidas, com exceção do Rb-88, que após 65 minutos decai com a meia vida do pai.

Tabela 4. Resultados das medições realizadas antes, depois e no dia seguinte da operação do reator Argonauta.

<b>Nuclídeo</b>	<b>Pré operação Atividade [Bq/L]</b>	<b>Após operação Atividade [Bq/L]</b>	<b>No dia seguinte Atividade [Bq/L]</b>
Xe-133	318 ± 3,2	173 ± 4,6	474 ± 2,6
Xe-135	259 ± 2,1	139 ± 2,7	313 ± 2,0
Kr-85m	14 ± 15	7 ± 21	32 ± 9

Nota: Incertezas 1 sigma em porcentagem.

Tabela 5. Atividades dos radionuclídeos em diferentes condições de resfriamento e contagem, em Bq/L.

T. decaimento	4 m	4 m	1,1 h	1,1 h	3,3 h
T. contagem (s)	1000	2000	3000	4000	4000
Kr-89	<b>282 ± 48</b> [691]	-----			
Xe-137	<b>170 ± 23</b> [357]	168 ± 27 [353]	-----		
Xe-135m	46 ± 18 [55]	45 ± 14 [54]	13 ± 35 [232]	19 ± 27 [323]	19 ± 27 [143614]
Xe-138	628 ± 5,2 [768]	<b>636 ± 4,7</b> [778]	120 ± 16 [2680]	107 ± 20 [2376]	-----
Rb-89	160 ± 12	<b>164 ± 11</b>	43 ± 27	<b>43 ± 27</b>	<b>43 ± 27</b>
Cs-138	1104 ± 3,2	1150 ± 2,6	<b>655,5 ± 2,9</b>	<b>655,8 ± 2,8</b>	<b>655,4 ± 2,8</b>
Kr-87	679 ± 2,8 [705]	680 ± 2,3 [706]	<b>484 ± 2,8</b> [859]	<b>479 ± 2,8</b> [850]	<b>133 ± 3,8</b> [800]
*	1617 ± 7,2 [1678]	1487 ± 5,8 [1543]	650 ± 6,7 [1152]	<b>842 ± 7,3</b> [1491]	<b>269 ± 10,5</b> [1617]
Ar-41	59 ± 13 [61]	60 ± 9,5 [61]	55 ± 7,8 [82]	<b>52 ± 7,3</b> [78]	<b>52 ± 7,3</b> [182]
Kr-88	699 ± 6,7 [711]	745 ± 7,6 [757]	692 ± 6,0 [894]	697 ± 5,4 [901]	<b>697 ± 5,4</b> [1558]**
Rb-88	1718 ± 4,0	1511 ± 3,3	822 ± 3,9 [1778]	<b>843 ± 3,3</b> [2075]	<b>843 ± 3,3</b> [2073]
Kr-85m	220 ± 4,1 [222]	211 ± 2,8 [213]	193 ± 2,6 [228]	<b>195 ± 2,3</b> [229]	<b>132 ± 2,5</b> [220]
Xe-135	164 ± 4,4 [165]	172 ± 3,1 [173]	172 ± 2,5 [187]	175 ± 2,2 [189]	<b>145 ± 2,2</b> [186]
Xe-133	115 ± 15 [115]	124 ± 10 [124]	131 ± 7,4 [132]	146 ± 5,9 [147]	<b>129 ± 4,7</b> [131]

As incertezas são 1 sigma em %.

\* Kr-87  $E_\gamma = 845$  keV.

\*\* Kr-88  $E_\gamma = 1530$  keV.



Os nuclídeos Xe-137 e Kr-89, foram os únicos detectados na primeira contagem, conforme era previsto. A atividade encontrada para o Xe-137 é muito baixa e costuma ser de difícil determinação, como pode ser visto na figura 7, conseqüência do baixo “burn-up” de operação do reator Argonauta. Sendo assim, a análise do fotopico, pode não ser feita adequadamente pelo programa APTEC, sendo necessário selecioná-lo manualmente, expandindo a região de interesse, marcando-a em seguida com a tecla F3, e utilizando a opção “MULTIFIT” para executar a análise.

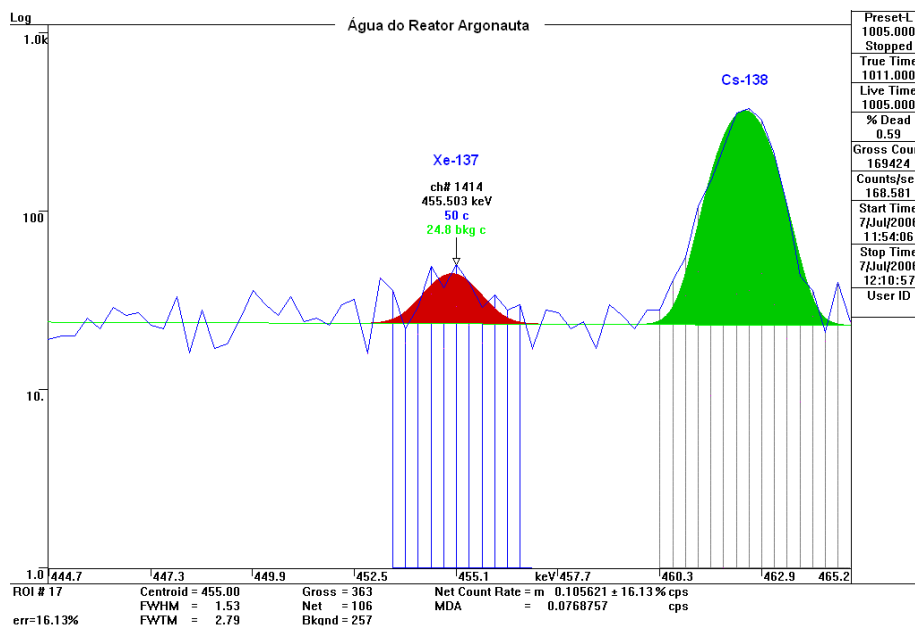


Figura 7. Região expandida do espectro gama mostrando o fotopico do Xe-137.

O Xe-137 (meia vida 3,8 min) decai para o Cs-137 (meia vida 30 a). Tendo em vista as meias vidas, o Cs-137 acumula-se dentro do elemento combustível. O presente trabalho sugere que este nuclídeo seja utilizado para a indicação da presença de fissuras e/ou vazamentos do elemento combustível. A fim de estabelecer um nível de atividade aceitável, para as condições operacionais sem fissuras ou vazamentos, a atividade do Xe-137 - normalmente encontrada - foi multiplicada por um fator igual a 1000. A atividade de Xe-137, acrescida desse fator, resultou no valor igual a  $1,20 \times 10^5$  Bq/L. A partir desse valor calculou-se a atividade do Cs-137 obtendo-se 0,03 Bq/L, muito abaixo do limite de detecção para as condições experimentais. Desse modo qualquer atividade de Cs-137, na água do reator, acima do limite de detecção pode ser considerada resultante de contaminação.

Há controvérsias a respeito das emissões gama do Xe-135m (15,3 min). Segundo as “bibliotecas” de nuclídeos que acompanham os programas de análises da Canberra, APTEC e ANGES, emite um raio gama com energia de 526,6 keV, com

probabilidade de emissão em torno de 81%. Pela Tabela Nucleide, são quatro os raios gama emitidos sendo o de maior probabilidade de emissão o de 786,9 keV (0,0044%). Experimentalmente (tabela 5) o fato da atividade desse nuclídeo ser detectada mesmo após 3 horas do término da operação do reator, significa que o Xe-135m pode estar sendo produzido pelo I-135, (vide tabela 2). Este nuclídeo foi detectado uma única vez (figura 8).

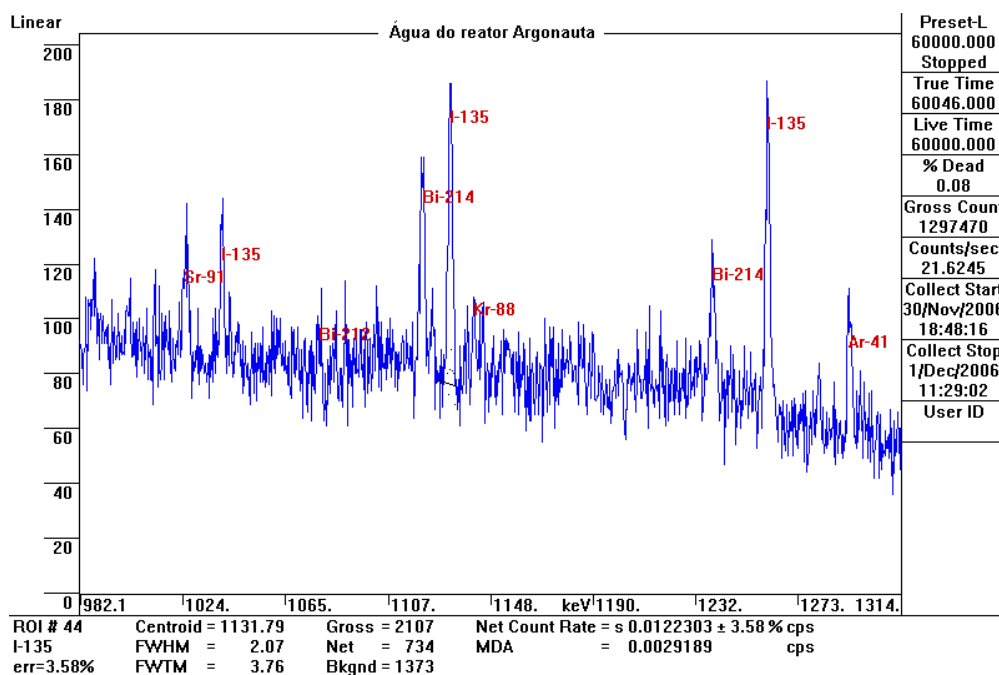


Figura 8. Espectro gama mostrando os fotopicos do I-135.

Até a presente data o nuclídeo Kr-90 não foi detectado, provavelmente por sua baixa atividade na água do reator, e/ou pela meia vida muito curta (32,32 s). Ele emite 103 raios gama, a maioria com probabilidades de emissão muito baixas. Para sua determinação sugere-se o raio gama de 121,7 keV, com probabilidade de emissão de 38,5%, valores que foram calculados, neste trabalho, a partir dos raios gama de 120,92 keV e 121,82 keV e respectivas probabilidades de emissão.

O Rb-90, de meia vida de 2,7 min, filho do Kr-90, também emite um grande número de raios gama (105); mais da metade com alta energia (> 2 MeV), porém poucos com elevada probabilidade de emissão. Para a sua determinação sugere-se o raio gama de 831,7 keV, menos sujeito a interferências, tendo em vista sua maior probabilidade de emissão (40%). Possíveis interferências são os fotopicos mais próximos, de 835 keV do Kr-88 (13%) e Kr-89 (1,11%). Quando esses nuclídeos estão presentes requer-se atenção nos resultados da análise a fim de verificar se houve o registro do dupletto correspondente, pois nem sempre o

programa APTEC é capaz de analisá-los satisfatoriamente. O Rb-90m, quando presente, pode causar severa interferência, pois emite um raio gama de mesma energia e probabilidade de emissão de 94%.

O Kr-89 deve ser medido logo após o encerramento da operação do reator, tendo em vista sua meia vida curta (3,17 min.). Nos experimentos efetuados, o menor intervalo de tempo decorrido entre o final da operação do reator e a medida para este nuclídeo foi de 80 segundos. Ele emite 225 fótons com energia de até 2400 keV. Os resultados dos trabalhos desenvolvidos na presente pesquisa apontam para a utilização das seguintes energias 221 keV (20%), 577 keV (5,7%), 586 keV (16,7%) e 1473 keV (6,9%) para identificação do Kr-89. O filho, Rb-89, tem uma meia vida de 15,2 minutos e emite 62 raios gama. Os de maior intensidade são: 1032 keV e 1248 keV com probabilidades de 63% e 46% respectivamente. O Kr-88 emite um fóton com energia muito próxima (1250 keV), para evitar interferência, no caso do programa APTEC não distingüir as duas energias, utilizar a opção **Close Overlaps** no **Setup** do **Analyse**, para definir o duplete. Recomenda-se que nas medições utilizando detectores sem blindagem ou pouca blindagem, no caso de se utilizar o raio gama de 586 keV, levar em consideração a contribuição do raio gama de 583 keV, da radiação de fundo.

O nuclídeo Kr-88 (meia vida de 2,84 h) foi encontrado na maioria das análises da água do reator, com atividade razoável. Seu principal raio gama é o 196 keV (P.E. 26%), sofrendo interferências do Cs-138 e Kr-89. Outro raio gama característico corresponde ao fotopico de 1529,8 keV (P.E. 10,9%), que pode ser considerado desde que a atividade do Kr-87 esteja baixa (probabilidade de emissão desse nuclídeo é de apenas 0,13%). Outro fotopico que pode ser utilizado na sua determinação é do raio gama de 834,8 keV (P.E. 13%), que no caso da presença de: Kr-89, Kr-87, Rb-90 e Rb-90m, apresentará interferências. Aconselha-se determinar o Kr-88 pelo fotopico de 196 keV, após o decaimento do Kr-89 e Cs-138, e/ou pelo raio gama de 1530 keV, tendo em vista sua meia vida.

O Rb-88, filho do Kr-88, tem aparecido em todas as medições, conforme espectros apresentados. Seus dois picos mais importantes apresentam-se praticamente livres de interferências, sendo possível determiná-lo pelos raios gama de 898 keV e 1836 keV (o Kr-89 tem a mesma energia -1836 keV- porém meia vida muito curta). A partir da atividade do Rb-88 é possível determinar a atividade do pai, deste que a contagem seja feita após 65 minutos, quando há o equilíbrio, e o Rb-88 passa a decair com a meia vida do pai. Estes cálculos foram efetuados e estão incorporados à planilha, onde a atividade média ponderada do Rb-88 foi corrigida para o final da operação do reator, utilizando a constante de decaimento do Kr-88, e multiplicados pelo fator:  $(\lambda_2 - \lambda_1) / \lambda_2$ . Observa-se na tabela 5, que o valor médio calculado para o Kr-88 a partir do Rb-88 é de  $2073 \pm 3,3\%$  Bq/L. Comparado-se esse valor com o da medida direta corrigida, igual a  $1558 \pm 5,4\%$  Bq/L, para o raio gama de 1530 keV, do Kr-88, constata-se uma grande diferença ( $\gg 10\%$ ), para a última medida. Confrontando esses resultados com os da penúltima contagem,

constata-se que essa diferença é ainda maior. Seria possível realizar algumas correções para eliminar a contribuição das interferências, com a desvantagem do somatório das incertezas das medidas e na curva de eficiência. Assim, recomenda-se a sua determinação através do Rb-88, após entrar em equilíbrio.

O nuclídeo Kr-87, também foi encontrado freqüentemente na água do reator. Este nuclídeo emite 33 raios gama, mas somente dois devem ser utilizados, com precaução: o fotopico de 402,6 keV com probabilidade de 49,6% de emissão, e o de 845,4 keV com P.E. de 7,36%. As possíveis interferências são do Xe-138 e Cs-138 (no pico de 402,6 keV) e do Xe-137 (no pico de 845,4 keV). Os valores das atividades obtidos (tabela 5) para esses dois raios gama foram discordantes entre si. Sendo assim, conforme mencionado na seção 3.4, é aconselhável que se determine esse nuclídeo em contagem longa, de preferência utilizando o fotopico de 402 keV. O descendente, Rb-87, é um emissor beta puro, portanto não pode ser analisado por espectrometria gama.

O Kr-85m, presente praticamente em todas as análises, emite seis raios gama, sendo o de 151,2 keV, com 75% de probabilidade de emissão, o mais apropriado para a sua determinação. É aconselhável esperar o decaimento do Xe-138 antes de realizar a medição do Kr-85m, em vista das interferências espectrais. No entanto, os resultados experimentais (tabela 5) evidenciam que é possível uma determinação em qualquer momento, desde que seja feita uma análise cuidadosa (figura 9).

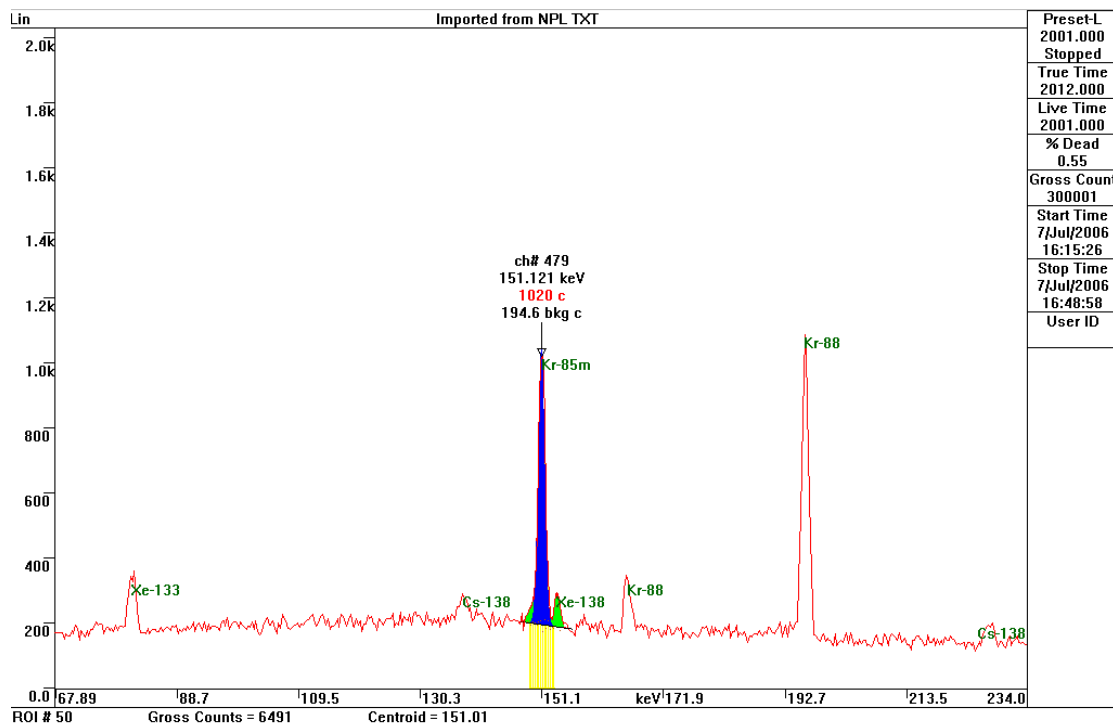


Figura 9. Espectro gama expandido mostrando interferências espectrais.

Não é possível medir o Kr-85, filho do Kr-85m. Isso se deve à emissão de um raio gama de 514 keV (próximo do pico de aniquilação), à baixa probabilidade de emissão (0,437%) e também a sua meia vida longa (10,7 anos).

O Xe-138 (meia vida de 14 min.) deve ser determinado na primeira contagem da amostra. De acordo com menção anterior, esperava-se que esse nuclídeo estivesse sempre presente na água do reator, o que não ocorreu. Tanto ele como seu filho, o Cs-138, emitem muitos raios gama (97 e 86 respectivamente). Os fótons recomendados para as determinações são: 258,4 keV e 434,6 keV para o Xe-138 e 1009,8 keV e 1435 keV para o Cs-138. Todos os raios gama mencionados, com exceção do 434,6 keV, estão livres de interferências. O Kr-89 poderia interferir no fotopico 434,6 keV, pois emite fótons de 428 keV, 436 keV e 438 keV. Na determinação do Xe-138, observou-se uma discrepância entre os valores das atividades obtidos experimentalmente. Quando se comparam os resultados relativos aos dois raios gama recomendados verifica-se uma intensa interferência que não poderia ser apenas do Kr-89. Uma vez que a energia do interferente é de 433 keV, o nuclídeo interferente poderia ser o I-134, já detectado nas análises.

Na figura 10, há dois espectros obtidos após um intervalo de decaimento de aproximadamente 3 horas. Constata-se ainda a presença dos raios gama do Cs-138. Como este nuclídeo emite 86 raios gama é necessário um intervalo de tempo maior antes de efetuar as outras medições.

O Xe-133m, quando detectado, apresentou uma atividade muito baixa. Sua meia vida é relativamente longa (2,2 d.) e decai para o Xe-133 (meia vida de 5,2 d.). As determinações desses nuclídeos devem ser realizadas através das energias dos raios gama de 233,2 keV (10,3% de emissão) e 81 keV (38% de emissão) respectivamente. O Kr-90, Cs-138 e supostamente o I-134 interferem nas medidas do Xe-133m.

O Xe-133 é um dos nuclídeos que foi detectado em todas as medidas da água do reator. Por apresentar uma razoável atividade, seria possível fazer as determinações logo após o final da operação do reator. Mas isto não é aconselhável, pois um pico pequeno não identificado, próximo do fotopico de 81 keV, costuma aparecer. Evidentemente não se trata do raio-X  $K_{\alpha 1}$  da fluorescência do Pb. Os resultados apresentados na tabela 5, relativos às duas últimas contagens, demonstram uma diminuição da atividade. Esta perda é muito maior do que a esperada resultante do decaimento radioativo. A explicação para esse fato é que assim como os gases nobres saem do elemento combustível, saíram também do frasco plástico. Dado esta constatação, recomenda-se que as medições não sejam muito longas, como as que foram realizadas no passado.

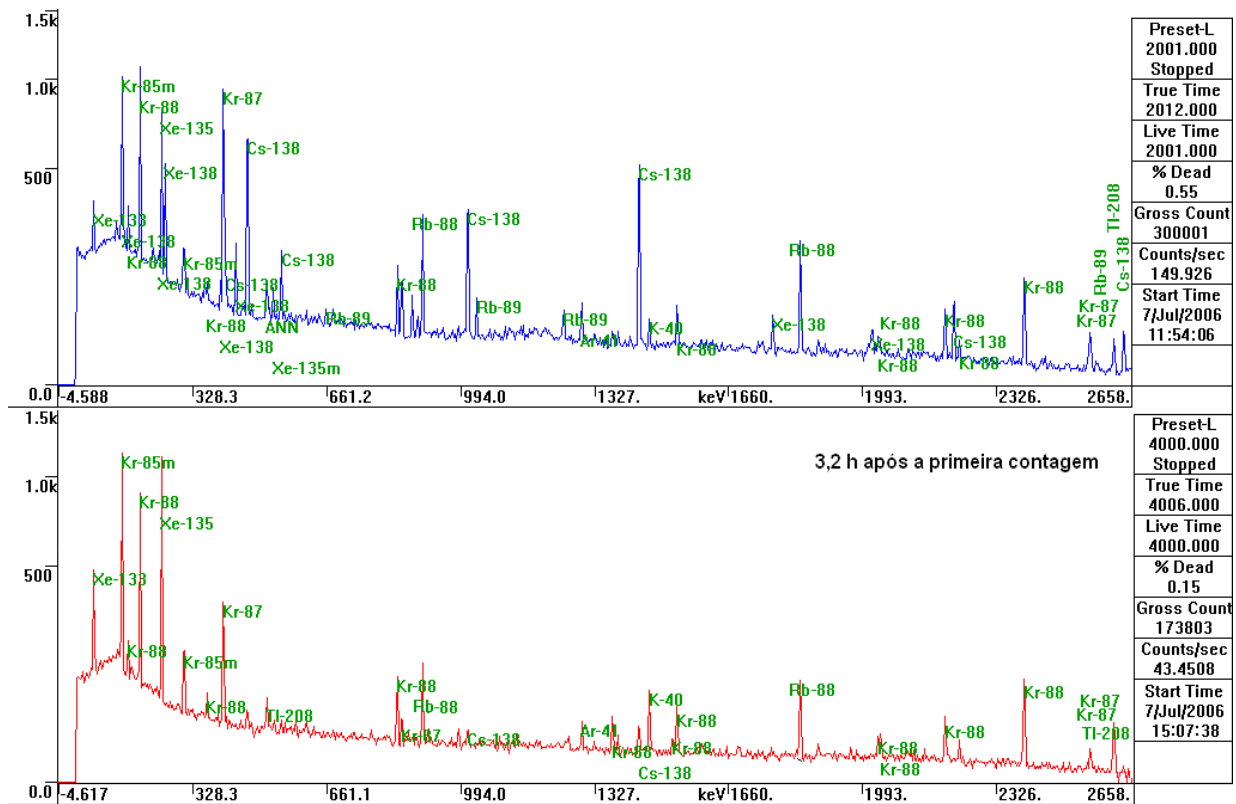


Figura 10. Comparação de espectros da água do reator após decaimento de 3,2 h.

No início deste trabalho, durante as determinações das constantes de decaimento, observou-se que a meia vida para o Xe-133, calculada a partir do coeficiente angular da curva Atividade versus Tempo, apresentava um desvio maior que 10 % em relação ao valor da literatura. Por outro lado, ótimos resultados, coincidentes com os da literatura, foram obtidos para os nuclídeos Kr-88, Cs-138 (inclusive para o raio gama de energia de 463 keV), Kr-87 e Rb-88. Para o Rb-88, os resultados concordantes só foram obtidos com a eliminação das contagens inferiores a 2,5 h, e com medidas efetuadas após um intervalo superior ao esperado, de 65 min. Para o Xe-135, Kr-85m e Kr-88 (energia 166 keV) os desvios foram maiores que 6%, indicando perdas dos nuclídeos ao longo do tempo. Com relação ao fótópico 166 keV há evidência da presença de interferências. Outro resultado com desvio maior que 10% foi obtido para o raio gama de 305 keV do Kr-85m. A título de ilustração apresenta-se o gráfico da curva obtida experimentalmente para o raio gama de 196 keV do Kr-88, ver figura 11.

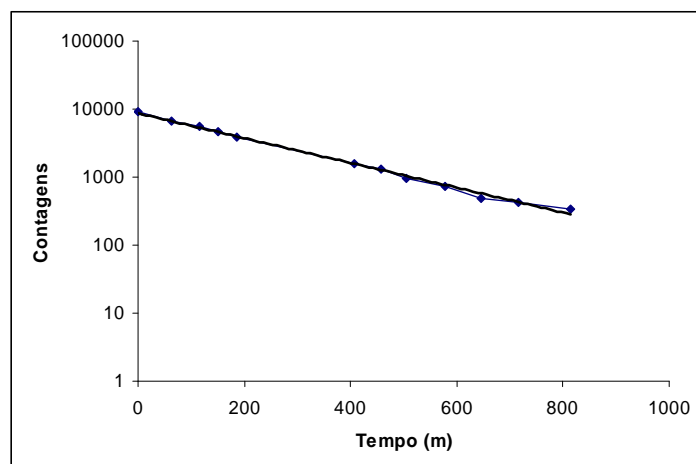


Figura 11. Curva de decaimento do Kr-88.

Em todas as análises realizadas até a presente data, apenas uma única vez, numa segunda feira (operação 5099), detectaram-se os radionuclídeos do iodo, junto com outros produtos de fissão nunca antes detectados: Sr-91 (749,8 keV e 1024,3 keV), Y-91m (555,57 keV), Sr-92 (953,32 keV, 1142,3 keV e 1384,94 keV), Y-92 (934,5 keV), Mo-99/Tc-99m (140,5 keV).

O I-135 tem meia vida de 6,57 h e emite 89 raios gama, dos quais 9 são mais abundantes, a saber (raios gama com suas respectivas probabilidade de emissão): 546,56 keV (7,15%), 836,80 keV (6,69%), 1038,76 (7,9%), 1131,51 keV (22,6%), 1260,41 keV (28,7%), 1457,56 keV (8,7%), 1678,03 (9,6%), 1706,46 keV (4,1%) e 1791,2 keV (7,92%). Numa contagem longa de 60.000 s., essas energias foram detectadas na água do reator.

O I-134 tem meia vida de 52,5 min e emite 88 raios gama destacando-se os de 847 keV e 884 keV, com probabilidades de emissão de 95,4% e 64,9% respectivamente. O Kr-87 emite um raio gama muito próximo de 845 keV com probabilidade de emissão de 7,36%. Outros fótons do I-134 são: 540,8 keV (7,63%), 621,8 keV (10,6%), 1072,5 keV (14,9%) e 1136 keV (9,1%).

O I-133 tem meia vida de 20,8 h e emite 43 fótons, sendo os principais: 529,9 keV (87%), 706,6 keV (1,51%) e 875,3 keV (4,51%).

O I-132m, cuja meia vida é 1,387 h, emite os seguintes raios gama com suas respectivas probabilidades de emissão: 599,8 keV (14%), 667,72 keV (13,9%), 772,6 keV (14%) e 175,0 keV (8,8%).

O I-132, filho do I-132m, tem meia vida de 2,295 h e emite 156 raios gama, sendo os principais: 522,65 keV (16%), 630,19 keV (13,3%), 667,72 keV (98,7%) e 772,6

keV (75,6%). O I-131 (8,021 d), tem como principais raios gama: o 364,5 keV (81,2%), 636,99 keV (7,26%), 80,185 keV (2,607%) e 722,91 keV (1,796%).

Ao se analisar a água do reator, relativa à Operação No. 5099, detectaram-se os radionuclídeos de iodo. Considerando as energias dos raios gama mais abundantes determinaram-se as seguintes atividades, corrigidas para o final da operação do reator, em Bq/L:  $47 \pm 10\%$ ,  $98 \pm 5\%$ ,  $6,4 \pm 5,5\%$  e  $1,3 \pm 20\%$  para o I-135, I-134, I-133 e I-131 respectivamente. Visto que o programa não registrou o fotopico correspondente ao raio gama do I-132, marcou-se manualmente a região, obtendo-se uma atividade de 4 Bq/L (próxima do limite de detecção), que corrigida para o horário do final da operação do reator correspondeu a  $16 \pm 38\%$  Bq/L. Para o nuclídeo Sr-91 a atividade corrigida foi de  $9 \pm 24\%$  Bq/L, calculada pela média ponderada dos resultados obtidos através dos raios gama de 749 keV e 1024 keV. Foi detectado ainda, um outro raio gama de 1368,5 keV, que não poderia ser do Kr-88, pois a atividade é 30 vezes maior do que a esperada para este nuclídeo. Provavelmente trata-se de um raio gama do Na-24, que é um produto de ativação. O resultado completo da análise dessa amostra encontra-se no apêndice B.

Na seção 2 sobre o histórico das análises realizadas, registrou-se a freqüência do aparecimento dos isótopos do iodo, que ocorreu em apenas dois períodos - janeiro de 1985 e 1987; e o aparecimento, em 1991 e 2006, desses radioisótopos aliados a outros produtos de fissão - um caso atípico. Aparentemente a origem não é o elemento combustível, pois a análise subsequente da água do reator não detectou esses radionuclídeos. A explicação para este fato é que por ocasião da operação No. 5099, realizada numa segunda-feira, haveria traços de urânio na água do reator. O urânio poderia ter saído dos filtros do sistema de tratamento da água, composto por carvão ativado e resinas trocadoras de íons, cuja água continuamente circula ao longo do sistema. Com o retorno da água para filtragem, os traços de U-235 ficariam novamente retidos nos filtros, e na análise, os radioiodos e os outros PF não seriam mais detectados. Segundo os operadores do reator as resinas não são trocadas, são regeneradas uma vez ao ano.

O resultado da análise de esfregaço do elemento combustível central realizada em 19 de maio de 1988 comprovou a presença de Cs-137 com 2600 Bq/m<sup>2</sup>. Nessa época inspeções realizadas no reator constataram a inchação de alguns elementos combustíveis. Esta teria sido a origem dos traços de urânio. Visto que as inspeções foram determinantes na constatação da existência de vazamento, ressalta-se a importância de verificações periódicas dos elementos combustíveis.

A presença de impurezas de urânio no material constituinte do elemento combustível foi descartada porque a produção dos radioisótopos do iodo é muito baixa para o fluxo máximo de nêutrons térmicos ( $10^9 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ), e além do mais seria constante.



No passado as análises da água do reator foram realizadas com o detector de NaI(Tl) do Laboratório de Radiometria do SEPRA. Na figura 12, apresenta-se o espectro obtido nesse sistema com uma fonte de Na-22 que emite apenas dois raios gama (511 keV e 1274,54 keV). Observa-se que o pico soma e os *comptons* interferem dificultando as análises dos fotonicos, inviabilizando a adequada análise da água do reator. A fim de não comprometer os resultados obtidos recomenda-se que seja suspensa sua utilização.

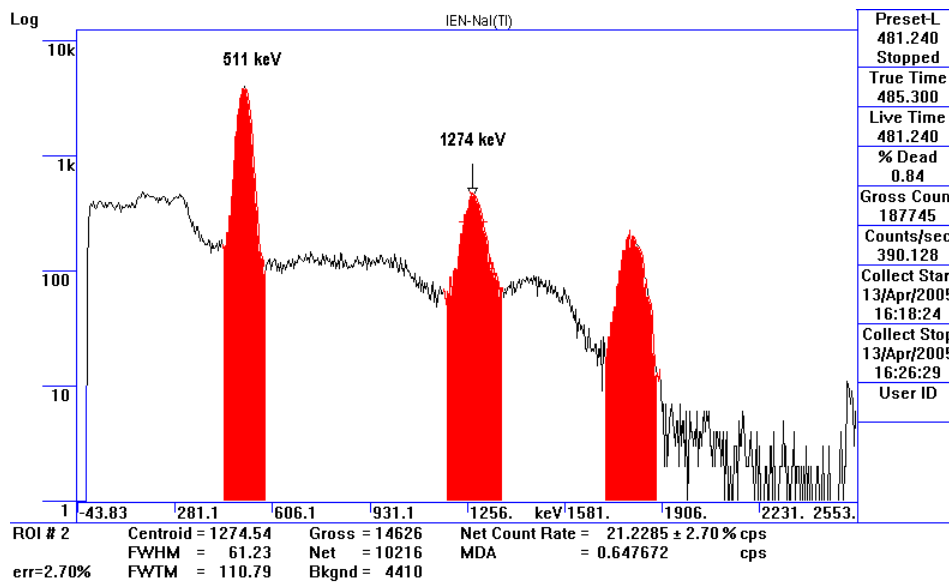


Figura 12. Espectro gama do Na-22 com detector de NaI(Tl) do IEN

Para finalizar, sugerimos que a CSPR realize um levantamento radiométrico, utilizando um monitor de radiação, medindo a atividade ou dose do tanque de dreno antes e depois de cada operação do reator, visando a obtenção de perfis. Tal levantamento possibilitará o estabelecimento de um dado limite que se ultrapassado determinará uma investigação a ser feita coletando-se uma amostra da água do reator e medindo-a num sistema de espectrometria gama de alta resolução com detector de germânio (GeHP).

### Agradecimentos

A equipe que opera o reator Argonauta, ao pessoal do SEPRA, pela preparação e coleta da água do reator, e ao LNMRI-IRD pelos padrões fornecidos.

**Referências**

1. SEELMANN-EGGEBERT, W., et, al., Chart of the Nuclides, KFK, November, 1981.
2. CHOPPIN, G.L., RYDBERG, J., Nuclear Chemistry. Theory and Applications. Pergamon Press, Oxford, 1985.
3. LEDERER, C.M., Table of Isotopes, 7<sup>th</sup> Edition, October 1978, John Wiley & Sons Inc.
4. NUCLÉIDE, Nuclear and Atomic Decay Data, Version 5 - 2003. CD-ROM, BNM-CEA, 23-Mai-2003.
5. TAYLOR, Denis, The Measurement of Radio Isotopes, 2<sup>nd</sup>. Edition, 1957, Butler & Tanner Ltd. London.
6. CURRIE, Lloyd A. Limits for Quantitative Detection and Quantitative Determination, Application to Radiochemistry, Anal. Chem. 40 (1968) 586.
7. BELLIDO, Luis F., Implantação do Sistema de Medidas e Análise por Espectrometria Gama na Divisão de Segurança e Radioproteção. RT-IEN-48-2002, Rio de Janeiro, Outubro, 2002
8. APTEC MCA, Application Multichannel Analyzer, Version 6,31 Release 16. Aptec Instruments Limited, 1999.

## APÊNDICE A

Energia Nuclídeo (keV)	P.Emissão (%)	M. Vida	Energia Nuclídeo (keV)	P.Emissão (%)	M. Vida
81,0 <b>Xe-133</b>	<b>38</b>	5,244 d	369,3 <b>Kr-89</b>	1,39	3,17 m
121,7 <b>Kr-90</b>	<b>38,5</b>	32,32 m	371,4 <b>Xe-138</b>	0,5	14,08 m
122,3 <b>Kr-88</b>	0,197	2,84 h	390,5 <b>Kr-88</b>	0,64	2,84 h
129,8 <b>Kr-85m</b>	0,3	4,48 h	396,5 <b>Xe-138</b>	6,3	14,08 m
135,4 I-134	4,3	52,5 m	401,4 <b>Xe-138</b>	2,17	14,08 m
138,1 <b>Cs-138</b>	1,49	33,41 m	402,6 <b>Kr-87</b>	<b>49,6</b>	1,272 h
140,8 <b>U-235</b>	0,22	7,0E+08 a	405,5 I-134	7,35	52,5 m
143,8 <b>U-235</b>	10,96	7,0E+08 a	409,0 <b>Cs-138</b>	4,66	33,41 m
151,2 <b>Kr-85m</b>	<b>75</b>	4,48 h	411,4 <b>Kr-89</b>	2,57	3,17 m
153,9 <b>Xe-138</b>	5,95	14,08 m	417,6 I-135	<b>3,53</b>	6,57 h
158,2 <b>Xe-135</b>	0,29	9,14 h	421,6 <b>Cs-138</b>	0,427	33,41 m
163,3 <b>U-235</b>	5,08	7,0E+08 a	433,3 I-134	4,14	52,5 m
166,0 <b>Kr-88</b>	3,10	2,84 h	434,6 <b>Xe-138</b>	<b>20,3</b>	14,08 m
175,0 I-132m	1,75	1,387 h	438,1 <b>Kr-89</b>	0,96	3,17 m
185,7 <b>U-235</b>	<b>57,2</b>	7,0E+08 a	455,5 <b>Xe-137</b>	<b>31,2</b>	3,818 m
193,0 <b>Cs-138</b>	0,828	33,41 m	462,8 <b>Cs-138</b>	<b>30,7</b>	33,41 m
196,3 <b>Kr-88</b>	<b>26</b>	2,84 h	471,8 <b>Kr-88</b>	0,727	2,84 h
197,6 <b>Kr-89</b>	2	3,17 m	488,9 I-134	1,45	52,5 m
205,3 <b>U-235</b>	5,01	7,0E+08 a	497,4 <b>Kr-89</b>	<b>6,6</b>	3,17 m
220,5 I-135	1,75	6,57 h	498,6 <b>Kr-89</b>	<b>1,15</b>	3,17 m
221,0 <b>Kr-89</b>	<b>20,1</b>	3,17 m	500,2 <b>Xe-138</b>	0,362	14,08 m
227,8 <b>Kr-90</b>	0,125	32,32 m	505,8 I-132	4,94	2,295 h
227,8 <b>Cs-138</b>	<b>1,51</b>	33,41 m	514,0 <b>Kr-85</b>	<b>0,437</b>	10,71 a
233,2 <b>Xe-133m</b>	10,3	2,188 d	514,4 I-134	2,23	52,5 m
234,4 <b>Kr-90</b>	2,65	32,32 m	516,7 <b>Cs-138</b>	0,43	33,41 m
235,5 I-134	2,13	52,5 m	522,7 I-132	16	2,295 h
240,7 <b>Kr-88</b>	0,253	2,84 h	526,6 <b>Xe-135m</b>	<b>81</b>	15,29 m
242,2 <b>Kr-90</b>	9,9	32,32 m	529,9 I-133	<b>87</b>	<b>20,8</b> h
242,6 <b>Xe-138</b>	3,5	14,08 m	530,1 <b>Xe-138</b>	<b>0,252</b>	14,08 m
249,3 <b>Kr-90</b>	1,37	32,32 m	530,8 I-135	0,032	6,57 h
249,8 <b>Xe-135</b>	<b>90</b>	9,14 h	540,8 I-134	7,63	52,5 m
258,4 <b>Xe-138</b>	<b>31,5</b>	14,08 m	546,6 I-135	7,15	6,57 h
272,4 <b>Rb-89</b>	1,53	15,2 m	547,0 <b>Cs-138</b>	10,76	33,41 m
282,5 <b>Xe-138</b>	0,428	14,08 m	554,4 <b>Kr-90</b>	5,1	32,32 m
284,3 <b>I-131</b>	6,06	8,021 d	555,6 <b>Y-91m</b>	95	49,71 m
288,5 I-135	3,1	6,57 h	558,4 114*-Cd	Gamma	prompt
304,8 <b>Kr-85m?</b>	<b>14</b>	NCRP 58	577,0 <b>Kr-89</b>	<u>5,7</u>	3,17 m
304,7 <b>Kr-89</b>	0,022	3,17 m	583,2 <b>BG</b>		
305,1 <b>Kr-90</b>	0,055	32,32 m	586,0 <b>Kr-89</b>	<b>16,7</b>	3,17 m
309,1 <b>Kr-90</b>	0,137	32,32 m	595,4 I-134	11,1	52,5 m
345,0 <b>Kr-89</b>	1,19	3,17 m	599,8 I-132m	14	1,387 h
356,2 <b>Kr-89</b>	4,2	3,17 m	609,3 <b>BG</b>		
362,2 <b>Kr-88</b>	2,25	2,84 h	608,2 <b>Xe-135</b>	2,9	9,14 h
364,5 <b>I-131</b>	<b>81,2</b>	<b>8.021 d</b>	610,0 I-132m	1,5	1,387 h
364,9 <b>Kr-89</b>	<b>0,9</b>	3,17 m	614,0 I-132m	2,5	1,387 h

## RT-IEN-13/2006

621,8	I-134	10,6	52,5	m	1024,3	<b>Sr-91</b>	33,5	9,52	h
628,0	I-134	2,21	52,5	m	1031,9	<b>Rb-89</b>	<b>63</b>	15,2	m
637,0	<b>I-131</b>	<b>7,26</b>	8.021	d	1038,8	I-135	7,9	6,57	h
650,5	I-132	2,57	2,295	h	1060,7	<b>Rb-90</b>	9,5	2,7	m
657,8	<b>Rb-89</b>	10,8	15,2	m	1072,6	I-134	14,9	52,5	m
661,7	<b>Cs-137</b>	<b>84,99</b>	<b>30,018</b>	<b>a</b>	1107,8	<b>Kr-89</b>	<b>2,9</b>	3,17	m
667,7	I-132m	13,9	1,387	h	1116,6	<b>Kr-89</b>	<b>1,83</b>	3,17	m
667,7	I-132	98,7	2,295	h	1118,7	<b>Kr-90</b>	39	32,32	m
670,5	I-132	8,1	2,295	h	1124,0	I-135	3,62	6,57	h
749,0	Sr-91	<b>23,7</b>	9,52	h	1131,5	I-135	22,6	<b>6,57</b>	<b>h</b>
673,8	<b>Kr-87</b>	1,89	1,272	h	1136,2	I-134	9,1	52,5	m
677,3	I-134	7,9	52,5	m	1136,0	I-132	3,01	2,295	h
696,2	<b>Kr-89</b>	1,79	3,17	m	1143,3	I-132	1,35	2,295	h
706,6	I-133	1,51	20,8	h	1147,8	I-132	0,27	2,295	h
722,9	<b>I-131</b>	1,796	8.021	d	1147,2	<b>Cs-138</b>	1,24	33,41	m
738,4	<b>Kr-89</b>	4,2	3,17	m	1172,9	I-132	1,1	2,295	h
749,8	<b>Sr-91</b>	23,7	9,52	h	1175,4	<b>Kr-87</b>	1,11	1,272	h
766,7	I-134	4,14	52,5	m	1236,4	I-133	1,51	20,8	h
772,6	I-132	75,6	<b>2,295</b>	<b>h</b>	1248,1	<b>Rb-89</b>	<b>46</b>	15,2	m
782,1	<b>Cs-138</b>	0,33	33,41	m	1250,7	<b>Kr-88</b>	1,12	2,84	h
786,9	<b>Xe-135m</b>	<b>0,0044</b>	15,29	m	1260,4	I-135	28,7	<b>6,57</b>	<b>h</b>
789,0	<b>Kr-88</b>	0,655	2,84	h	1290,8	I-132	1,13	2,295	h
814,3	<b>Kr-87</b>	0,154	1,272	h	1293,6	<b>Ar-41</b>	<b>99,1</b>	1,822	h
824,2	<b>Rb-90m</b>	8,7	4,30	m	1295,1	I-132	1,9	2,295	h
826,8	<b>Kr-89</b>	0,76	3,17	m	1298,2	I-133	2,35	20,8	h
831,7	<b>Rb-90m</b>	94	4,30	m	1324,3	<b>Kr-89</b>	3,1	3,17	m
831,7	<b>Rb-90</b>	<b>40</b>	2,7	m	1335,4	<b>Kr-89</b>	0,13	3,17	m
834,8	<b>Kr-88</b>	<b>13</b>	2,84	h	1338,0	<b>Kr-87</b>	0,63	1,272	h
835,5	<b>Kr-89</b>	<b>1,11</b>	3,17	m	1340,6	<b>Kr-89</b>	0,19	3,17	m
836,4	<b>Kr-87</b>	0,77	1,272	h	1343,6	<b>Cs-138</b>	1,14	33,41	m
836,8	I-135	6,69	6,57	h	1367,5	<b>Kr-89</b>	0,149	3,17	m
845,4	<b>Kr-87</b>	<b>7,36</b>	1,272	h	1368,6	Na-24	99,9935	14,9574	h
847,0	I-134	95,4	<b>52,5</b>	<b>m</b>	1369,0	<b>Kr-88</b>	1,48	2,84	h
856,3	I-133	1,24	20,8	h	1372,2	<b>Kr-89</b>	0,127	3,17	m
857,3	I-134	6,68	52,5	m	1375,6	Rb-90m	<b>19</b>	4,30	m
862,3	<b>Kr-88</b>	0,67	2,84	h	1382,5	<b>Rb-88</b>	0,78	17,8	m
865,8	<b>Xe-138</b>	0,296	14,08	m	1382,6	<b>Kr-87</b>	0,288	1,272	h
867,1	<b>Kr-89</b>	<u>5,9</u>	3,17	m	1384,9	<b>Sr-92</b>	90	2,71	h
869,4	<b>Xe-138</b>	0,62	14,08	m	1389,9	<b>Kr-87</b>	0,119	1,272	h
871,8	<b>Cs-138</b>	5,11	33,41	m	1372,1	I-132	2,47	2,295	h
875,3	I-133	4,51	20,8	h	1435,9	<b>Cs-138</b>	<b>76,3</b>	33,41	m
880,8	<b>Cs-138</b>	0,11	33,41	m	1398,6	I-132	7	2,295	h
884,7	I-134	64,9	<b>52,5</b>	<b>m</b>	1442,6	I-132	1,4	2,295	h
898,0	<b>Rb-88</b>	<b>14,7</b>	17,8	m	1455,2	I-134	2,29	52,5	m
925,8	Sr-91	3,85	9,52	h	1457,6	I-135	8,7	6,57	h
946,7	<b>Kr-87</b>	0,129	1,272	h	1472,8	<b>Kr-89</b>	<u>6,9</u>	3,17	m
947,7	<b>Rb-89</b>	10	15,2	m	1518,4	<b>Kr-88</b>	2,15	2,84	h
954,6	I-132	17,6	2,295	h	1529,8	<b>Kr-88</b>	<b>10,9</b>	2,84	h
972,6	I-135	1,21	6,57	h	1531,2	<b>Kr-87</b>	0,36	1,272	h
985,8	<b>Kr-88</b>	1,31	2,84	h	1533,7	<b>Kr-89</b>	5,1	3,17	m
1009,8	<b>Cs-138</b>	29,8	33,41	m	1538,1	<b>Rb-89</b>	2,79	15,2	m
					1566,4	I-135	1,29	6,57	h

## RT-IEN-13/2006

1613,8	I-134	4,29	52,5	m	2015,8	Xe-138	12,3	14,08	m
1678,0	I-135	9,6	6,57	h	2029,8	Kr-88	4,53	2,84	h
1693,7	Kr-89	4,4	3,17	m	2035,4	Kr-88	3,74	2,84	h
1706,5	I-135	4,1	6,57	h	2079,2	Xe-138	1,44	14,08	m
1740,5	Kr-87	2,04	1,272	h	2195,8	Kr-88	13,2	2,84	h
1741,5	I-134	2,56	52,5	m	2195,9	Rb-89	14,5	15,2	m
1764,5	Kr-89	0,47	3,17	m	2218,0	Cs-138	15,2	33,41	m
1764,5	BG				2231,8	Kr-88	3,39	2,84	h
1768,3	Xe-138	16,7	14,08	m	2252,3	Xe-138	2,29	14,08	m
1791,2	I-135	7,72	6,57	h	2392,1	Kr-88	34,6	2,84	h
1806,8	I-134	5,53	52,5	m	2554,8	Kr-87	9,2	1,272	h
1836,0	Rb-88	22,4	17,8	m	2558,1	Kr-87	3,9	1,272	h
1839,2	Kr-89	0,47	3,17	m	2639,6	Cs-138	7,63	33,41	m
1850,9	Xe-138	1,42	14,08	m	2677,9	Rb-88	2,05	17,8	m
1880,0	Kr-89	0.159	3,17	m	2754,0	Na-24	99,872	14,9574	h
2004,8	Xe-138	5,36	14,08	m					
2011,9	Kr-87	2,88	1,272	h					

## APÊNDICE B



INSTITUTO DE ENGENHARIA NUCLEAR  
Divisão de Segurança e Radioproteção  
Laboratório de Radiometria

## RESULTADO DE ANÁLISE

**Material:** Água do Reator Argonauta, Operação No. 5099.

**Método de análise:** Espectrometria gama

**Sistema de medida:** HPGe No.1 – Genie2k (Canberra).

**Data de aquisição:** 06/11/2006; 11:24:45 e 16:02:29 (horário de verão).

**Tempo de contagem:** 4.000 s e 60.000 s.

**Espectros:** 1-Água do reator.CNF

Nuclídeo	Atividade [Bq/L]	Incerteza [%]
Xe-138	517	5
Cs-138	900	2
Xe-135	82	3
Xe-135m	55	15
Xe-133	82	9
Rb-89	103	12
Kr-88	688	3
Rb-88	1861	3
Kr-87	628	2
Kr-85m	196	2
Ar-41	83	5
I-135	47	10
I-134	98	5
I-133	6	6
I-132	16	40
I-131	1	20

Incerteza =  $1 \sigma$

Atividades corrigidas para o final da operação do reator, com exceção do Cs-138, Rb-89 e Rb-88.