

CÍNTIA MELAZO DIAS

**EMISSÃO DE ^{14}C PELAS UNIDADES I E II DA CENTRAL NUCLEAR
ALMIRANTE ÁLVARO ALBERTO (CNAAA) E SEU EFEITO LOCAL
NOS NÍVEIS AMBIENTAIS**

**Tese apresentada ao Curso de Pós-Graduação
do Instituto de Geologia, Universidade de
Brasília, como requisito parcial à obtenção do
título de Doutor em Geociências.**

Orientador: Prof. Dr. Roberto Ventura Santos

BRASÍLIA

2006

TERMO DE APROVAÇÃO

CÍNTIA MELAZO DIAS

**EMISSÃO DE ^{14}C PELAS UNIDADES I E II DA CENTRAL NUCLEAR ALMIRANTE ÁLVARO
ALBERTO (CNAAA) E SEU EFEITO LOCAL NOS NÍVEIS AMBIENTAIS**

Tese aprovada como requisito parcial para a obtenção do título de Doutor no Curso de Pós-Graduação do Instituto de Geologia - área de concentração Processamento de dados e análises ambientais - da Universidade de Brasília, pela seguinte banca examinadora:

Orientador: Prof. Dr. Roberto Ventura Santos
Universidade de Brasília - UnB

Prof. Dr. Afonso Brod
Universidade de Brasília – UnB

Prof. Dr. Elton Luiz Dantas
Universidade de Brasília – UnB

Prof^a. Dr^a. Mercedes Bustamante
Universidade de Brasília - UnB

Prof. Dr. José Marcus Godoy
Comissão Nacional de Energia Nuclear - CNEN

A tese também teve como co-orientadora a Dr^a Iêda Gomes Nícoli, da Comissão Nacional de Energia Nuclear - CNEN

Brasília, outubro de 2006

Ao Gabriel e Maria Luiza.
Meus tesouros mais valiosos.

AGRADECIMENTOS

Agradeço ao meu orientador, Roberto Ventura Santos, a orientação, amizade e atenção.

À Ieda, minha co-orientadora e companheira de trabalho que, diante das incontáveis dificuldades que surgiram no decorrer deste nosso estudo, foi incansável na batalha para superá-las.

Ao Dr. José Mauro Esteves dos Santos e Eloísa Dagma Pereira de Andrade que me proporcionaram a chance de realizar este curso e crescer profissionalmente. Obrigada, sem vocês este doutorado não teria acontecido!

Ao Dr. Ayrton José Caubit, que com sua oportuna intervenção, permitiu a aquisição de equipamento importante para realização de parte do trabalho. Agradeço também a confiança e a amizade.

À minha querida amiga Rosângela que sempre acreditou em mim e me apoiou em todos os momentos da minha vida profissional (e pessoal). Rô, sem você este caminho teria sido bem mais difícil.

Agradeço aos meus colegas da Comissão Nacional de Energia Nuclear (em Brasília) o incentivo e a torcida para que o trabalho fosse finalizado com êxito. Em especial, gostaria de agradecer à Bete, minha amiga, os momentos agradáveis e, sobretudo, divertidos que passamos discutindo os resultados e que, muitas vezes, clarearam minhas idéias para que eu pudesse seguir em frente, na redação do texto. Valeu, querida!

À Comissão Nacional de Energia Nuclear e suas diversas unidades:

- Diretoria de Pesquisa e Desenvolvimento (DPD), especialmente ao Centro Regional Ciências Nucleares do Centro Oeste - CRCN-CO (sediado em Abadia de Goiás- GO), agradeço o apoio e o financiamento do projeto;
- Instituto de Radioproteção e Dosimetria - IRD (Rio de Janeiro) - agradeço o apoio científico de colegas do IRD e o apoio logístico da direção do Instituto no período de duração da pesquisa;
- Centro de Desenvolvimento de Tecnologias Nucleares - CDTN - em especial ao colega Walter Brito, que realizou análises de solo;
- Distrito de Angra dos Reis - que sempre nos ofereceu ajuda no que fosse preciso.

Agradeço à Universidade de Brasília, aos (queridos) amigos que fiz na pós-graduação (em especial Poli e Fatinha), aos professores, aos funcionários, à banca

examinadora, ao pessoal da Eletronuclear e a todos que direta ou indiretamente me ajudaram no desenvolvimento deste trabalho. Gostaria de citar especialmente o André (meu cunhado), Rubemar, Ulisses, Ismael, Eudiléia, Laércio e Lúcia Ladeira.

Agradeço à Kristina, minha supervisora de estágio na Suécia, e à todos os amigos (especialmente a Nat, Asa e Vaida) que me acolheram durante o período (frio!) que passei por lá.

Agradeço aos meus sogros, Wanda e Alan, o apoio e atenção.

Agradeço aos meus queridos pais e irmãs a presença e a força, indispensáveis neste caminho tão difícil! Tenho sorte de ter vocês comigo!

E finalmente, agradeço ao André e a meus filhos o amor, a compreensão, a paciência, o incentivo e tudo aquilo indispensável à felicidade, que vocês dedicaram (e dedicam) a mim nesta jornada. Com alegria foi muito mais fácil. Amo vocês demais!

SUMÁRIO

AGRADECIMENTOS	IV
LISTA DE FIGURAS	VIII
LISTA DE TABELAS	X
LISTA DE ABREVIATURAS, SIGLAS E SÍMBOLOS	XI
RESUMO	XII
ABSTRACT	XIV
1 INTRODUÇÃO	1
1.1 OBJETIVOS E JUSTIFICATIVA	4
2 O CARBONO-14: PROPRIEDADES, FONTES E APLICAÇÕES	5
2.1 PRODUÇÃO NATURAL DO ¹⁴ C E SUAS VARIAÇÕES	7
2.2 PRODUÇÃO ANTROPOGÊNICA DO ¹⁴ C E SUAS VARIAÇÕES	9
2.2.1 Efeito Suess	9
2.2.2 Testes atômicos	11
2.2.3 O ciclo do combustível.....	12
3 O CICLO DO CARBONO	13
3.1 O CICLO DO CARBONO E O CARBONO-14	15
4 REATORES NUCLEARES E A FORMAÇÃO DO ¹⁴C	16
5 TEORIA PARA MEDIDA DE ¹⁴C	20
5.1 CINTILAÇÃO EM MEIO LÍQUIDO.....	21
5.1.1 Preparo da amostra	26
5.2 ESPECTROMETRIA DE MASSA COM ACELERADOR (AMS).....	28
5.2.1 Preparo da amostra	33
6 METODOLOGIA	37
6.1 ÁREA DE ESTUDO	37
6.1.1 Localização.....	37
6.1.2 Aspectos Físicos-Ambientais	38
6.1.3 Aspectos Naturais.....	38
6.1.4 Hidrografia	39
6.1.5 Geologia	39
6.2 COLETA DAS AMOSTRAS	40
6.2.1 Efluentes gasosos	40
6.2.2 Ar atmosférico.....	42

6.2.3	Vegetação	44
6.2.4	Solos	44
6.3	PREPARO DAS AMOSTRAS	45
6.3.1	Efluentes gasosos	45
6.3.2	Ar atmosférico	46
6.3.3	Vegetação	47
6.3.4	Solos	47
7	RESUMOS DOS ARTIGOS.....	48
7.1	ARTIGO I - DETERMINATION OF ^{14}C IN GASEOUS EFFLUENTS OF BRAZILIAN NUCLEAR POWER PLANTS	48
7.2	ARTIGO II - $^{14}\text{CO}_2$ ATMOSPHERIC DISPERSION AROUND TWO PWR NUCLEAR POWER PLANTS IN BRAZIL.....	49
7.3	ARTIGO III - ^{14}C CONTENT IN VEGETATION IN THE VICINITIES OF BRAZILIAN NUCLEAR POWER PLANTS	50
7.4	ARTIGO IV - ^{14}C , $\delta^{13}\text{C}$ AND TOTAL CARBON CONTENT IN SOILS AROUND TWO BRAZILIAN PWR NUCLEAR POWER PLANTS AND IN A TESTIMONY AREA, 50 KM FAR FROM REACTORS SITE	50
7.5	CARBON-14 LEVELS IN THE VICINITY OF THE LITHUANIAN NUCLEAR POWER PLANT IGNALINA	51
8	CONCLUSÕES FINAIS E RECOMENDAÇÕES.....	52
9	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	55
	APÊNDICE I - TABELAS.....	65
	APÊNDICE II – FOTOGRAFIAS.....	103

LISTA DE FIGURAS

FIGURA 1	- ESPECTRO DE ENERGIA DO DECAIMENTO DO ^{14}C (RETIRADO DE L'ANNUNZIATTA E KESSLER, 1998).....	7
FIGURA 2	- DESENHO ESQUEMÁTICO DAS REGIÕES DA ATMOSFERA ONDE OCORRE A FORMAÇÃO DO ^{14}C	8
FIGURA 3	- TENDÊNCIA DA CONCENTRAÇÃO DE CO_2 ATMOSFÉRICO EM MAUNA LOA (MODIFICADO DE EKDAHL E KEELING, 1973)	10
FIGURA 4	- NÍVEIS ATMOSFÉRICOS DE ^{14}C (DADO EM $\Delta^{14}\text{C}$) DERIVADOS DE ANÉIS DE ÁRVORE ENTRE OS ANOS DE 1820 E 1954 (RETIRADO DE STUIVER E QUAY, 1981)	10
FIGURA 5	- TENDÊNCIA DA CONCENTRAÇÃO DOS NÍVEIS ATMOSFÉRICOS DO ^{14}C APÓS O ANO DE 1950 (RETIRADO DE ISOGAI <i>ET AL.</i> , 2002).....	12
FIGURA 6	- DESENHO ESQUEMÁTICO DO CICLO GLOBAL DO CARBONO. OS RETÂNGULOS REPRESENTAM OS RESERVATÓRIOS E AS LINHAS OS FLUXOS: 10^{15}G (RETIRADO DE VARELLA, 2002)	14
FIGURA 7	- DESENHO ESQUEMÁTICO DO CICLO GLOBAL DO CARBONO E ^{14}C (RETIRADO DE SCOTT <i>ET AL.</i> , 1993)	15
FIGURA 8	- DESENHO ESQUEMÁTICO DE UM REATOR NUCLEAR DO TIPO <i>PWR</i> (RETIRADO DE WWW.ELETRONUCLEAR.GOV.BR, 2003).....	18
FIGURA 9	- DESENHO ESQUEMÁTICO DE UM EQUIPAMENTO DE CINTILAÇÃO EM MEIO LÍQUIDO (RETIRADO DE L'ANNUNZIATA E KESSLER, 1998)	23
FIGURA 10	- COMPARAÇÃO ENTRE OS SISTEMAS DE ESPECTROMETRIA DE MASSA TRADICIONAL E COM ACELERADOR (AMS DA UNIVERSIDADE DE LUND, SUÉCIA) (RETIRADO DE STENSTRÖM, 1995A)	29
FIGURA 11	- DESENHO ESQUEMÁTICO DO SISTEMA AMS DO DEPARTAMENTO DE FÍSICA NUCLEAR DA UNIVERSIDADE DE LUND- SUÉCIA (RETIRADO DE STENSTRÖM, 1995A).....	30
FIGURA 12	- DESENHO ESQUEMÁTICO DO FUNCIONAMENTO DO SISTEMA AMS TRADICIONAL E DO AMS COM UM ÚNICO ESTÁGIO DE ACELERAÇÃO (SSAMS).....	31
FIGURA 13	- DESENHO ESQUEMÁTICO DO ESPECTRÔMETRO DE MASSA COM UM ÚNICO ESTÁGIO DE ACELERAÇÃO (SSAMS) INSTALADO NO DEPARTAMENTO DE GEOCIÊNCIAS DA UNIVERSIDADE DE LUND- SUÉCIA (RETIRADO DE WWW.PELLETRON.COM).	31
FIGURA 14	- PROCEDIMENTOS PARA LIBERAÇÃO DO CO_2 DA AMOSTRA.	34
FIGURA 15	- DESENHO ESQUEMÁTICO DO SISTEMA DE PREPARO DA AMOSTRA COM OS SUBSISTEMAS (1) E (2) DE COMBUSTÃO E GRAFITIZAÇÃO, RESPECTIVAMENTE (MODIFICADO DE OLARIU <i>ET AL.</i> , 2000).	34

FIGURA 16 - PARTE DO SISTEMA DE PREPARO DA AMOSTRA ONDE É LIBERADO O CO ₂ (SUBSISTEMA (1)).	35
FIGURA 17 - DESENHO ESQUEMÁTICO DO SISTEMA DE PREPARO DA AMOSTRA MOSTRANDO A ARMADILHA 3, ONDE O CO ₂ É CONGELADO (ENTRE V6 E V7), DEPOIS DE LIBERADO PELO SUBSISTEMA (1).....	35
FIGURA 18 - PARTE DO SISTEMA DE PREPARO DA AMOSTRA ONDE O CO ₂ É REDUZIDO A GRAFITE (SUBSISTEMA (2) DE GRAFITIZAÇÃO).	36
FIGURA 19 - MAPA DA REGIÃO DE ANGRA DOS REIS, ONDE FOI REALIZADO O ESTUDO SOBRE ¹⁴ C, COM A LOCALIZAÇÃO DA CENTRAL NUCLEAR ALMIRANTE ÁLVARO ALBERTO (CNAAA) (APONTADA PELA SETA VERMELHA) (WWW.GOVERNO.RJ.GOV.BR)	37
FIGURA 20 - MÉDIA PLUVIOMÉTRICA MENSAL RELATIVA AOS ANOS DE 1980-2004-FONTE ELETRONUCLEAR (RETIRADO DE SOARES, 2006)	38
FIGURA 21 - DESENHO ESQUEMÁTICO DO TUBO DE ENSAIO CONTENDO AMOSTRA UTILIZADO NO PROCESSO DE COMBUSTÃO DAS GRAMÍNEAS.....	47

LISTA DE TABELAS

TABELA 1 - RADIONUCLÍDEOS LIBERADOS DURANTE OPERAÇÃO DE PLANTAS NUCLEARES NO MUNDO (MODIFICADO DE UNSCEAR, 2000).....	6
TABELA 2 - RELAÇÃO DOS PAÍSES ONDE FORAM REALIZADOS TESTES NUCLEARES NO PERÍODO DE 1945-1980 (MODIFICADO DE UNSCEAR, 2000)	11
TABELA 3 - TIPOS DE REATORES EM OPERAÇÃO NO MUNDO (MODIFICADO DE IAEA, 2003).....	17
TABELA 4 - PRODUÇÃO TOTAL (COMBUSTÍVEL, MATERIAL ESTRUTURAL, MODERADOR E REFRIGERANTE) DE ^{14}C EM VÁRIOS TIPOS DE REATORES ($\text{TBQ}/\text{GW}_{(E)}\text{ANO}^{-1}$) (MODIFICADO DE IAEA Nº 421, 2004).19	
TABELA 5 - EMISSÕES DE ^{14}C MEDIDAS NOS EFLUENTES GASOSOS DE USINAS <i>LWR</i> NO MUNDO.....	20
TABELA 6 - CONTRIBUIÇÃO DAS FONTES DE <i>BACKGROUND</i> (UNQUENCH) (PASSO E COOK, 1994).....	24
TABELA 7 - CONTRIBUIÇÃO DAS FONTES DE <i>BACKGROUND</i> (QUENCH) (PASSO E COOK, 1994)	24
TABELA 8 - DIFERENÇAS DE PARÂMETROS ENTRE OS SISTEMAS AMS DOS DEPARTAMENTOS DE FÍSICA NUCLEAR (TRADICIONAL) E GEOCIÊNCIAS DA UNIVERSIDADE DE LUND-SUÉCIA (SSAMS).	32
TABELA 9 - FÓRMULA QUÍMICA DOS ZEÓLITOS	41

LISTA DE ABREVIATURAS, SIGLAS E SÍMBOLOS

CNAAA	Central Nuclear Almirante Álvaro Alberto
IAEA	Agência Internacional de Energia Atômica
CNEN	Comissão Nacional de Energia Nuclear
PWR	Pressurized Water Reactor
BWR	Boiling Water Reactor
GCR	Gas Cooled Reactor
HWR	Heavy Water Reactor
LWGR	Light Water Graphite Reactor
FBR	Fast Breeder Reactor
CANDU	Canadien Deuterium Uranium Reactors
Bq	Bequerel
GW	Gigawatts
keV	Kiloeletrovolt
Ci	Curie
MOS	Matéria orgânica dos solos
PMT	Tubo fotomultiplicador
PHA	Análise da altura do pulso
MCA	Análise multicanal
CPM	Contagem por minuto
DPM	Desintegração por minuto
LLD	Limite mínimo de detecção
AMS	Espectrômetro de massa com aceleração
SSAMS	Espectrômetro de massa com um estágio de aceleração
MV	Megavolt
kV	Kilovolt
pMC	Porcentagem do carbono moderno

RESUMO

O ^{14}C é o único isótopo radioativo do carbono. Possui meia-vida de 5730 anos e é formado na estratosfera inferior (75 %) e na troposfera superior (25 %) *via* absorção de nêutrons, originários da radiação cósmica, por átomos de nitrogênio ($^{14}_7\text{N} + {}^1_0\text{n} \rightarrow {}^{14}_6\text{C} + {}^1_1\text{H}$). Usinas nucleares também produzem ^{14}C , em menor quantidade relativa à produção natural, mediante reação dos nêutrons da fissão e átomos de oxigênio e nitrogênio, principalmente. Esses elementos estão presentes no combustível e moderador e/ou refrigerante (nitrogênio ocorre como impureza). O ^{14}C liberado se transforma em $^{14}\text{CO}_2$ e incorpora-se à cadeia alimentar pelo processo da fotossíntese. Devido à sua longa meia-vida e importância biológica, quantificar as emissões tornou-se obrigatório em vários países no mundo.

No Brasil, a Central Nuclear Almirante Álvaro Alberto (CNAEA) possui três plantas do tipo PWR, duas em operação, Angra I (657 MWe) e Angra II (1350 MWe), e a terceira, Angra III (1309 MWe), ainda em fase de construção. Angra I é um reator de fabricação americana (Westinghouse) e Angra II e III, alemã (Siemens). O objetivo desta pesquisa foi medir as concentrações de ^{14}C nos efluentes gasosos (termo fonte) liberados pelas usinas de Angra I e II, bem como em amostras ambientais - ar atmosférico, plantas e solos - coletadas na área de influência da CNAEA (até cinco km de distância dos reatores). A tese está dividida em duas partes. A primeira consiste de extensa revisão sobre o assunto e a segunda é composta por quatro artigos.

O artigo (1) trata da investigação das concentrações de ^{14}C liberadas nos efluentes gasosos de Angra I e Angra II. Para amostragem em Angra I, um painel foi desenvolvido e implementado em junho de 2005. O ^{14}C pode ser emitido em diferentes formas químicas: CO_2 e hidrocarbonetos, principalmente. Em PWRs, os hidrocarbonetos são liberados preferencialmente (80 %). No sistema de Angra I, tanto os hidrocarbonetos como o CO_2 foram amostradas. Em Angra II, o painel de amostragem funciona desde o início da operação da usina (2001), mas não discrimina as diferentes frações químicas. Os hidrocarbonetos são transformados em CO_2 com o uso de um catalisador. O método da cintilação em meio líquido foi utilizado para as medidas das amostras.

No artigo (2) discute-se a dispersão atmosférica do ^{14}C com base nos resultados das análises de ar atmosférico coletado até três km de distância da CNAEA e em diferentes setores do vento. Na amostragem, empregou-se uma bomba de ar acoplada a um vidro borbulhador contendo solução de NaOH. À solução borbulhada, adicionou-se BaCl_2 para

precipitação do BaCO₃. Para as medidas das amostras de BaCO₃ foi utilizado o sistema de espectrometria de massa com único estágio de aceleração (SSAMS), localizado do Laboratório de Datação Radiocarbônica do Departamento de Geologia da Universidade de Lund, em Lund, na Suécia.

O artigo (3) traz os resultados dos níveis de ¹⁴C medidos em gramíneas coletadas até uma distância de cinco km dos reatores, em diferentes direções do vento. As amostras foram medidas com uso do SSAMS.

O quarto e último artigo envolve a análise dos solos para investigação de acúmulo de ¹⁴C devido ao funcionamento das usinas. Os solos foram coletados numa distância de, aproximadamente, um km dos reatores, na direção preferencial dos ventos, e a 50 km dos mesmos, numa área de preservação (referência), fora da influência das usinas. As medidas foram feitas com o uso do SSAMS. Medidas de carbono total, δ¹³C e ¹³⁷Cs também foram realizadas.

ABSTRACT

^{14}C is a long-lived beta-emitting nuclide ($T_{1/2} = 5730$ years) produced naturally in the upper atmosphere as a result of reactions between neutrons and stable ^{14}N ($^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$). Although in a lesser extent, nuclear power plants produce ^{14}C as well during their routine operation. Since it is converted in $^{14}\text{CO}_2$ and mixed throughout the atmosphere, it is incorporated into plant tissues, via photosynthesis process, and hence in food chain. Because of the biological importance of ^{14}C and long half-life, it is of interest to quantify the amounts released by nuclear industry.

The Brazilian nuclear central named Nuclear Central Admiral Álvaro Alberto (CNAAA) has two nuclear reactors of PWR type in operation, Angra I (657 MWe) and Angra II (1350 MWe), and one under construction, Angra III (1309 MWe PWR). The aim of this study was to determine the strength of the sources and the ^{14}C content in the environment through analyses of air, vegetation and soils taken within 5 km (the influenced area) of CNAAA. The thesis consists of an extensive review about the subject (part one) and of four papers (part two).

The first paper is about the determination of ^{14}C concentrations released by reactors (source strength). For Angra I, a device was developed in order to sample the gaseous effluents and for Angra II, a commercial monitoring system had already been implemented since its initial operation (2001). The ^{14}C can be emitted as hydrocarbons, CO or CO_2 , depending on the type of reactor. For PWRs, the main chemical form released is hydrocarbons (80 %). The monitoring system of Angra I was planned to determine both CO_2 and hydrocarbon fractions but in Angra II, all hydrocarbons are converted to CO_2 by using a Pd/ Al_2O_3 catalyst at 450 °C. The liquid scintillation was the method employed to measure the samples.

The second one concerns the atmospheric dispersion of the released radiocarbon through measurements of air samples taken with 3 km from power plants, in five different wind directions. The sampling system consisted of a pump connected to a trapping column filled with 3 M NaOH solution. The trapped CO_2 was, then, precipitated as BaCO_3 using a BaCl_2 solution. For the measurements, the single stage accelerator mass spectrometry system (SSAMS) was used. This system belongs to the Radiocarbon Laboratory located in Geology Department of Lund University, in Sweden.

The third paper is the investigation of ^{14}C content in vegetation samples. Since food chain starts with plants, these measurements are useful to estimate radiation exposure to local population. Grass samples were taken up to five km from power plants, in seven different wind directions. The SSAMS was employed for the analyses.

The last paper involves the study of soils taken just close to power plants (within 1 km) and at 50 km far from them, in a reference area. Not only ^{14}C content was determined but analyzes of $\delta^{13}\text{C}$, total C and ^{137}Cs were also made. SSAMS was used for the ^{14}C measurements.

1 INTRODUÇÃO

A produção e liberação do ^{14}C pela indústria nuclear é um fenômeno conhecido e bem documentado (Schwibach *et al.*, 1978; Winkelmann e Vogl, 1984, Kunz, 1985; Obelic *et al.*, 1986; Joshi *et al.*, 1987, Levin *et al.*, 1988; Loosli e Oeschger, 1989; Uchrin *et al.*, 1992; Erlandson *et al.*, 1992; Veres *et al.*, 1995; Stenström *et al.*, 1995 a, b; Milton *et al.*, 1995; Meijer *et al.*, 1995; Eisma *et al.*, 1995; Stenström *et al.*, 1996 a,b; Vokal e Kobal, 1997; Dubourg, 1998, Holtorp, 1998; Kuts e Litvinsky, 1998; Uchrin *et al.*, 1998; Buzinny *et al.*, 1998; Stenström *et al.*, 1998; Mook e Van Der Plitch, 1999; Tenu e Davidescu, 2001; Isogai *et al.*, 2002; Wallberg e Moberg, 2002). A longa meia-vida do ^{14}C (5730 anos), a alta mobilidade no meio ambiente e a incorporação à cadeia alimentar tornam o isótopo importante sob o ponto de vista do impacto radiológico que pode provocar.

Os trabalhos de Magno e Martin (1974) foram uns dos primeiros a discutir a relevância deste impacto. A época considerou-se o ^{14}C como o principal causador da dose efetiva comprometida da população mundial, pois sua entrada no ciclo do carbono resulta numa dispersão global e provoca uma irradiação homogênea e de longo prazo.

Numa retrospectiva, em 1975, boletim da Euratom (Kelly *et al.*) reportou estudo sobre a exposição regional e global da Comunidade Européia à radiação causada pela emissão do ^{14}C na geração de energia nucleoe elétrica.

Em 1976, a Organização Mundial de Saúde (Pochin) apresentou investigação que apontou significativa contribuição do radioisótopo na dose efetiva comprometida da população mundial. Ainda em 1976, Schwibach e Jacobi compararam doses provocadas por ^{14}C e outros radionuclídeos de meia-vida longa.

Nos Estados Unidos, a Agência de Proteção Ambiental (Fowler *et al.*, 1976) publicou trabalho sobre o número de possíveis doenças que poderiam ser causadas por radionuclídeos de meia-vida longa e considerou o ^{14}C como o mais prejudicial dentre eles. Conforme relatório da United Nation Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (Unsear, 2000) num contexto global, dentre os radionuclídeos liberados durante a operação de plantas nucleares, ^{14}C será responsável, em 10.000 anos, por 80 % da dose comprometida da população.

Vários países monitoram a emissão do ^{14}C . Essa prática é, aliás, recomendada pela Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA), organismo das Nações Unidas responsável pela promoção do uso pacífico e seguro das tecnologias nucleares no mundo.

A IAEA, desde 1970, possui programas de controle das liberações de radionuclídeos baseados nas recomendações da Comissão de Proteção Radiológica (ICRP). Esses programas constam nos Guias e Relatórios de Segurança da IAEA.

As publicações mais recentes são “Controle Regulatório de Emissões Radioativas para o Meio Ambiente” (2000), que atualiza as diretrizes do “Safety Series N° 77” (1986), e o Relatório de Segurança N° 19 (2001) “Modelos Genéricos para Previsão de Impacto Ambiental Provocado por Liberação de Substâncias Radioativas”.

Em 1984, a Coordenação de Projetos de Pesquisa da IAEA (CRP) organizou uma seqüência de quatro reuniões - na Áustria, na Alemanha, na Índia e na Argentina - para discutir a liberação de ^{14}C por plantas nucleares no mundo (Winkelman *et al.*, 1984).

A Alemanha, Canadá, Estados Unidos, Suécia e República da Coreia possuem normas próprias que tornam obrigatória a implementação de programas para monitoração deste radioisótopo. Alguns destes países até já estabeleceram limites para liberação do radioisótopo (Van Der Stricht e Janssesns, 2001 e IAEA n° 421, 2004).

Na Alemanha, por exemplo, em 1974, o então Ministério Federal do Interior nomeia como responsável pelos estudos sobre o ^{14}C o Departamento Federal de Saúde. Atualmente, é o Ministério do Meio Ambiente, por meio do “Federal Office of Radioprotection (FORP)” que promove a vigilância dos níveis liberados pelas usinas.

No Canadá, em 1995, o comitê consultor de proteção radiológica (ACRP) - ligado ao órgão de controle nuclear canadense - publicou boletim (ACRP-14 intitulado “O gerenciamento do ^{14}C nas usinas nucleares canadenses”) que recomenda a monitoração do isótopo radioativo do carbono liberado pelas usinas nucleares. A partir dessa publicação, a direção de um dos complexos nucleares chamado de Ontário Hydro Nuclear se comprometeu instalar os sistemas de monitoração para ^{14}C nas chaminés de todas as suas plantas nucleares até o final de 1999.

Na Suécia, a Autoridade de Proteção Radiológica (SSI), em cooperação com a Agência de Proteção Ambiental, formulou programa de monitoração ambiental nas vizinhanças das usinas nucleares (Wallberg e Moberg, 2002) e é responsável por sua coordenação desde 1992.

Os operadores das usinas executam o programa e devem reportar, periodicamente, os resultados ao SSI. Os dados dos operadores são checados pelo SSI por meio de (1) inspeções locais e (2) medidas realizadas em duplicata pelos laboratórios do SSI, além de (3) programas de intercomparação entre os laboratórios.

No Brasil, a Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN) é o órgão responsável pela fiscalização das usinas, operadas pela Eletrobrás Termonuclear S.A. (Eletronuclear) (Souza, 2001), empresa de energia elétrica do sistema Eletrobrás. A unidade II da Central Nuclear Almirante Álvaro Alberto (CNAAA), construída com tecnologia alemã, já trouxe em seu projeto o sistema para monitoração do ^{14}C . Entretanto, a unidade I, mais antiga, não possui tal sistema.

Os programas de monitoração incluem, geralmente, a determinação das concentrações do ^{14}C presente nos efluentes gasosos liberados pela chaminé das plantas. Existem, porém, estudos mais complexos nos quais várias matrizes (ar atmosférico, água, solo e plantas) são investigadas na tentativa de se prever a dispersão do radiocarbono no ambiente.

Sob o ponto de vista da exposição à radiação, vários modelos (Killough, 1980; Till and Meyer, 1983, McCartney e Baxter, 1988, Amiro, 1995, Aquilonius e Hallberg, 2005) já foram propostos com o objetivo de se estimar a dose global em gerações futuras. Esses modelos são baseados em cenários, pois muitos dos seus “inputs” - como adição de CO_2 à atmosfera (livre de ^{14}C) pela queima de combustível fóssil, crescimento da população e desenvolvimento da indústria nuclear no mundo - dependem da evolução tecnológica.

Na indústria nuclear, o estudo do ^{14}C é geralmente motivado pelo impacto radiológico que provoca. Mas esse radionuclídeo tem aplicação histórica na datação de amostras arqueológicas e geológicas e, com o avanço dos métodos de medida, vem sendo utilizado em diferentes áreas científicas. Na área de meio ambiente, por exemplo, os isótopos do carbono no solo permitem análise de paleoclimas e paleovegetação, (Pessenda *et al*, 1996). O ^{14}C pode ser um indicador de áreas com grande concentração de CO_2 , originado da queima do combustível fóssil (Muraki *et al.*, 2001) ou, ainda, traçador da dieta de animais mamíferos (Athfield e Sparks, 2001) etc.

Portanto, o estudo das emissões antropogênicas de ^{14}C abre possibilidades para se entender, localmente, fenômenos/processos naturais como:

- a) transferência de ^{14}C da biota para o solo;
- b) taxa de acúmulo de C no solo e na água do mar (carbonatos marinhos);
- c) interação atmosfera/vegetação ou atmosfera/solo;
- d) tempo de residência do carbono (*turnover*) nos solos etc.

Em usinas nucleares o ^{14}C pode também ser indicador das condições de operação.

É possível detectar falhas em determinados processos de funcionamento de uma instalação nucleoeletrica pela análise dos níveis de ^{14}C liberados. Sendo assim, o

monitoramento de suas concentrações torna-se útil no controle de algumas práticas efetuadas pelos operadores.

Além disso, é imprescindível conhecer as quantidades emitidas em condições normais de operação da usina e as concentrações atmosféricas para reconhecer situações de anormalidade e/ou acidente (Kovaliukh e Skirpkin, 1998, Buzziny *et al.*, 1998). Isso possibilita o planejamento de ações mitigadoras.

1.1 OBJETIVOS E JUSTIFICATIVA

O objetivo geral desta pesquisa é investigar os efeitos da emissão antropogênica do ^{14}C nos arredores da CNAAA nos reservatórios atmosfera, biosfera e solos, assim como a extensão da dispersão do radionuclídeo.

Os objetivos específicos consistem em:

- a) determinar o termo fonte, ou seja, monitorar o ^{14}C nos efluentes gasosos emitidos pelas plantas nucleares;
- b) determinar as concentrações em diferentes distâncias das usinas nas matrizes:
 - ar atmosférico;
 - vegetação;
 - solo
- c) delinear a dispersão da pluma.

Este trabalho justifica-se pela ausência de estudos específicos sobre liberação e incorporação do ^{14}C antropogênico pela biota e solos na região vizinha à Central. Vários países possuem dados históricos sobre emissões de ^{14}C nos arredores de centrais nucleares com enfoque na monitoração do impacto radiológico. No entanto, no Brasil, ainda não há nenhum estudo sobre o tema.

Sob o ponto de vista ambiental, além da quantificação do impacto, o estudo do ^{14}C amplia campo de investigação nas áreas de geociências, ecologia, climatologia, hidrogeologia e, num tema específico, que deve ser destacado pela importância, a dinâmica do ciclo do carbono nos solos. É necessário, por exemplo, conhecer o inventário e as taxas de *turnover* do carbono no solo para medir o grau de resposta a perturbações provocadas pelo uso extensivo da terra e/ou mudanças climáticas.

Sob o ponto de vista regulatório, as informações levantadas auxiliarão na monitoração das práticas efetuadas na usina visando manter os níveis de liberação dentro dos

limites aceitáveis protegendo, assim, a população local e o meio ambiente dos efeitos maléficos causados pelo ^{14}C .

No futuro, o potencial de emissão do ^{14}C dependerá de fatores que são difíceis de se prever. Entre eles, o crescimento da indústria nuclear no mundo, os tipos de reatores que serão empregados e a operação daqueles que já estão em funcionamento.

Segundo a Agência Internacional de Energia (Boletim da IAEA, 2002), os combustíveis fósseis ainda serão a fonte dominante de energia no mundo até 2030. O gás natural terá crescimento mais importante que o óleo e o carvão, por ser menos poluente. A indústria nuclear sofrerá uma redução até 2030, caindo de 16 % para 9 % sua representação no total de energia elétrica gerada no mundo. Os maiores declínios acontecerão na Europa e na América do Norte (Salameh, 2003, Wolfe, 2002, Cohen, 2001, Rodhes e Beller, 2000, Teixeira, 2001).

Para a área nuclear, mesmo com um cenário negativo para os próximos 30 anos, é relevante controlar as emissões do ^{14}C . Isso se justifica pelo número de usinas que existem hoje, a possibilidade do aumento do tempo de vida útil daquelas mais antigas (pode-se citar como exemplo o que está ocorrendo nos Estados Unidos e Espanha) e a longa meia-vida do radionuclídeo. Esses fatores contribuem para a exposição do público muitos anos após extinção da indústria nuclear.

Conforme Unsear (2000), as tendências são de queda para as emissões atmosféricas de ^{14}C devido ao uso de filtros, como por exemplos resinas, que promovem a retenção do radionuclídeo. Esses filtros, no entanto, tornam-se rejeitos radioativos no estado sólido. Portanto, apesar da redução das emissões atmosféricas, é importante enfatizar que o inventário de ^{14}C continua a crescer, ano a ano, devido à produção de energia.

Estudos envolvendo estratégias para o gerenciamento dos rejeitos (desenvolvimento de tecnologias para imobilização do ^{14}C) bem como aspectos ambientais, para melhor compreender a interação do ^{14}C com as diversas matrizes- solos, água e vegetação- são fundamentais para que este radionuclídeo não se torne uma ameaça à saúde pública e ao meio ambiente. Excelente revisão sobre os aspectos técnicos em gerenciamento de rejeitos contendo ^{14}C pode ser vista em Yim e Caron (2005).

2 O CARBONO-14: PROPRIEDADES, FONTES E APLICAÇÕES

Usinas nucleares liberam ao meio ambiente alguns radionuclídeos durante sua operação rotineira. Essas liberações são classificadas como leves e permanecem dentro dos

limites autorizados, mas alguns radioisótopos podem causar impacto local e global à população e ao meio ambiente.

As liberações dependem do tipo de usina e do processamento específico dos rejeitos radioativos gerados. Essencialmente, os radionuclídeos liberados na atmosfera são: gases nobres (Xenônio-133 e Criptônio-85), gases ativados (Argônio-41, Carbono-14, Nitrogênio-16 e Enxofre-35), Trício (vapor e gás), halogênios e particulados. Alguns exemplos podem ser observados na Tabela 1. Aqueles liberados nos efluentes líquidos são Trício, Césio-137, Césio-134, Iodo 131, Iodo-133, Cobalto-58, Cobalto-60 e alguns produtos corrosivos como Cromo-51 e Manganês-54 (Unscear, 2000).

Tabela 1 - Radionuclídeos liberados durante operação de plantas nucleares no mundo (modificado de Unscear, 2000)

ELEMENTO	ANO	VALOR NORMALIZADO (TBq*(GW A) ⁻¹)						TOTAL
		**PWR	**BWR	**GCR	**HWR	**LWGR	**FBR	
Gases Nobres	1970 - 1974	530	44000	580	4800	5000	150	13000
	1975 - 1979	430	8800	3200	460	5000	150	3300
	1980 - 1984	220	2200	2300	210	5500	150	1200
	1985 - 1989	51	290	2100	170	2000	820	330
	1990 - 1994	27	350	1600	2100	1700	380	330
	1995 - 1997	13	180	1200	250	460	210	130
Tritium	1970 - 1974	5,4	1,8	9,9	680	26	96	48
	1975 - 1979	7,8	3,4	7,6	840	26	96	38
	1980 - 1984	5,9	3,4	5,4	670	26	96	44
	1985 - 1989	2,7	2,1	8,1	690	26	44	40
	1990 - 1994	2,3	0,94	4,7	650	26	49	36
	1995 - 1997	2,4	0,86	3,9	330	26	49	16
Carbono 14	1970 - 1974	0,22	0,52	0,22	6,3	1,3	0,12	0,71
	1975 - 1979	0,22	0,52	0,22	6,3	1,3	0,12	0,70
	1980 - 1984	0,35	0,33	0,35	6,3	1,3	0,12	0,74
	1985 - 1989	0,12	0,45	0,54	4,8	1,3	0,12	0,53
	1990 - 1994	0,22	0,51	1,4	1,6	1,3	0,12	0,44
Iodo 131	1970 - 1974	0,0033	0,15	0,0014	0,0014	0,08	0,0033	0,047
	1975 - 1979	0,005	0,41	0,0014	0,0031	0,08	0,005	0,12
	1980 - 1984	0,0018	0,093	0,0014	0,0002	0,08	0,0018	0,03
	1985 - 1989	0,0009	0,0018	0,0014	0,0002	0,014	0,0009	0,002
	1990 - 1994	0,0003	0,0008	0,0014	0,0004	0,007	0,0003	0,0007
	1995 - 1997	0,0002	0,0003	0,0014	0,0001	0,007	0,0002	0,0004

* Becquerel (Bq) é a unidade de medida de atividade (transformações por segundo - 1/s) do Sistema Internacional de Medidas.

** As siglas representam o tipo de usina existentes e serão explicadas, posteriormente, na parte sobre reatores nucleares.

Entre os radionuclídeos liberados, o ¹⁴C requer atenção especial devido à alta mobilidade e à distribuição pelos reservatórios do ciclo global de carbono: atmosfera, biosfera terrestre, hidrosfera e litosfera.

O ^{14}C é o único radioativo entre os isótopos do carbono e possui meia-vida de 5730 anos. Sua abundância na natureza é de $1,0 \times 10^{-10} \%$ enquanto a do ^{12}C é de 98,9 % e a do ^{13}C , 1 % (Bollenbacher *et al.*, 2002, Yim e Caron, 2005).

Esse radioisótopo é produzido naturalmente nas camadas superiores da atmosfera, pela ação dos raios cósmicos, dada pela reação $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$. Átomos de ^{14}C também foram adicionados à atmosfera por testes e explosões de bombas nucleares (1945-1960) e, ainda, pelo ciclo do combustível nuclear (ação antrópica).

O ^{14}C formado (tanto natural quanto antropogênico) sofre oxidação, é transformado em $^{14}\text{CO}_2$, depois mistura-se rapidamente na atmosfera e é, então, incorporado ao ciclo do carbono e cadeia alimentar (fotossíntese pelas plantas e incorporado como alimento na vida animal).

O decaimento do ^{14}C ocorre com a emissão de uma partícula β de seu núcleo formando um átomo de nitrogênio estável e um antineutrino, conforme a reação:



A energia máxima do decaimento é de 156 keV. A maioria das partículas beta emitidas, contudo, apresentam energia aproximadamente igual a $1/3 E_{\text{max}}$. Pode-se observar pela Figura 1 que apenas uma pequena porção é emitida com a energia máxima.

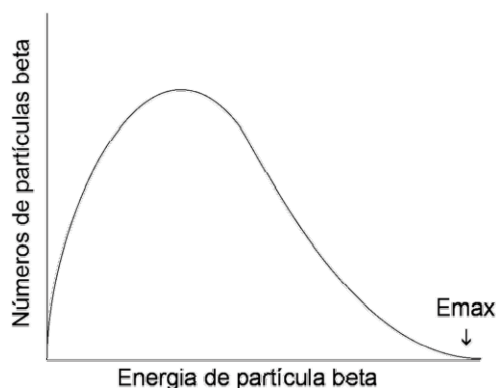


Figura 1 - Espectro de energia do decaimento do ^{14}C (retirado de L'Annunziata e Kessler, 1998)

A contínua produção de ^{14}C e seu decaimento resultam num equilíbrio dinâmico que mantém constante sua concentração na atmosfera terrestre e, conseqüentemente, em todos os organismos vivos.

2.1 PRODUÇÃO NATURAL DO ^{14}C E SUAS VARIAÇÕES

A formação de ^{14}C se dá, principalmente, na estratosfera inferior (75 %) e na troposfera superior (25 %) (Figura 2) mediante absorção de nêutrons, provenientes da

radiação cósmica, por átomos de nitrogênio conforme representado na seguinte equação:

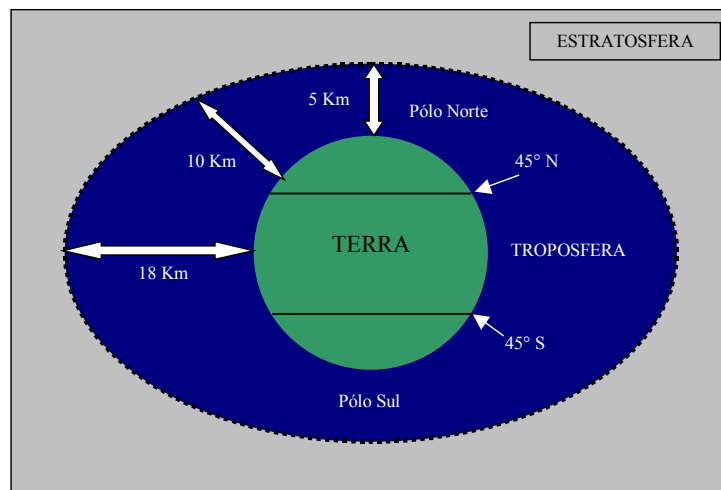


Figura 2 - Desenho esquemático das regiões da atmosfera onde ocorre a formação do ^{14}C

O ^{14}C sofre oxidação e forma o dióxido de carbono que se difunde em direção às camadas mais baixas.

O nitrogênio, além de possuir a maior seção de choque ($\sigma=1.8\text{b}$), é o elemento atmosférico mais abundante e, por isso, constitui-se na maior fonte para produção de ^{14}C . Existem outras reações que também produzem o ^{14}C : ($^{16}\text{O} (n,T)^{14}\text{C}$, $^{17}\text{O} (n,\alpha)^{14}\text{C}$, $^{13}\text{C}(n,\gamma)^{14}\text{C}$ e $^{15}\text{N} (n, \alpha)^{14}\text{C}$), porém em menor escala (Stuiver e Quay, 1981).

Com o mecanismo turbulento verificado nas camadas mais baixas, todo o radiocarbono formado mistura-se na atmosfera sob a forma de $^{14}\text{CO}_2$, que é distribuído pelos reservatórios do ciclo do carbono.

As primeiras medidas de ^{14}C na natureza foram realizadas no final dos anos 40 pelo pesquisador W.F.Libby (e colaboradores), americano ganhador do prêmio Nobel de Química em 1960 pelo desenvolvimento do método de datação radiocarbônica.

Existem registros da atividade do ^{14}C desde 1700 até hoje (análise de anéis de árvores). E, logo após as primeiras explosões nucleares, o Laboratório de ^{14}C da Universidade de Heidelberg, na Alemanha, foi uma das primeiras instituições a monitorar permanentemente a concentração do radioisótopo na atmosfera (Levin *et al.*, 1985).

Estima-se que a produção natural de radiocarbono seja de 1500 TBq por ano (Unsear, 2000). A proporção entre as quantidades de ^{12}C e ^{14}C é de um átomo de ${}^6\text{C}^{14}$ (carbono radioativo) para cada 10^{12} átomos de ${}^6\text{C}^{12}$ (carbono estável) (Killough, 1980).

Se a produção natural fosse a única fonte constante de ^{14}C para atmosfera e a concentração de CO_2 igual a do período pré-industrial ($280 \mu\text{L/L}$), teria-se um inventário permanente de $8.000.000 \text{ TBq}$ ($2 \times 10^8 \text{ Ci}$). Esse valor, com a constante de decaimento do isótopo de $1,21 \times 10^{-4} / \text{ano}$, sustenta uma atividade específica de 226 Bq/kgC ($6 \times 10^{-12} \text{ Ci}$) (Killough, 1980).

Entretanto, a concentração de ^{14}C atmosférico pode ser modulada e controlada por fontes naturais. Os raios cósmicos induzem à formação do ^{14}C e são influenciados pelas flutuações da intensidade do campo magnético (momento geomagnético) da Terra. Quanto maior o *momentum*, maior a deflexão dos raios cósmicos em relação ao Planeta e menor a formação do radioisótopo.

A atividade solar também afeta o fluxo dos raios cósmicos que se chocam com a atmosfera (Stuiver e Quay, 1980). Quanto mais elevada a atividade solar, maior o fluxo de partículas solares a aumentar a deflexão dos raios cósmicos e, conseqüentemente, diminuir a formação do ^{14}C .

As variações provocadas pela mudança da intensidade do campo magnético da Terra são de maior amplitude (10 %) e ocorrem numa escala de tempo maior (10.000 anos) do que às causadas pela atividade solar (2-3 % e ciclos de 11 anos).

2.2 PRODUÇÃO ANTROPOGÊNICA DO ^{14}C E SUAS VARIAÇÕES

Não apenas as variações naturais influenciam as concentrações de ^{14}C atmosférico, mas também a ação do homem. Três principais processos podem ser listados:

- a) Efeito Suess
- b) Testes de armas nucleares
- c) Ciclo do combustível nuclear

2.2.1 Efeito Suess

No período anterior à Revolução Industrial a concentração estimada de carbono presente como CO_2 atmosférico era de $280 \mu\text{L/L}$ (Siengenthaler *et al.*, 1988). Durante a era industrial, a taxa de liberação de CO_2 decorrente da queima de combustível fóssil cresceu quase que exponencialmente a 4 % ao ano (Ekdahl e Keeling, 1973) (Figura 3). Em 1980, este valor estava em $338 \mu\text{L/L}$ e, recentemente, calcula-se uma concentração média de $375 \mu\text{L/L}$ (Keeling e Whorf, 2004).

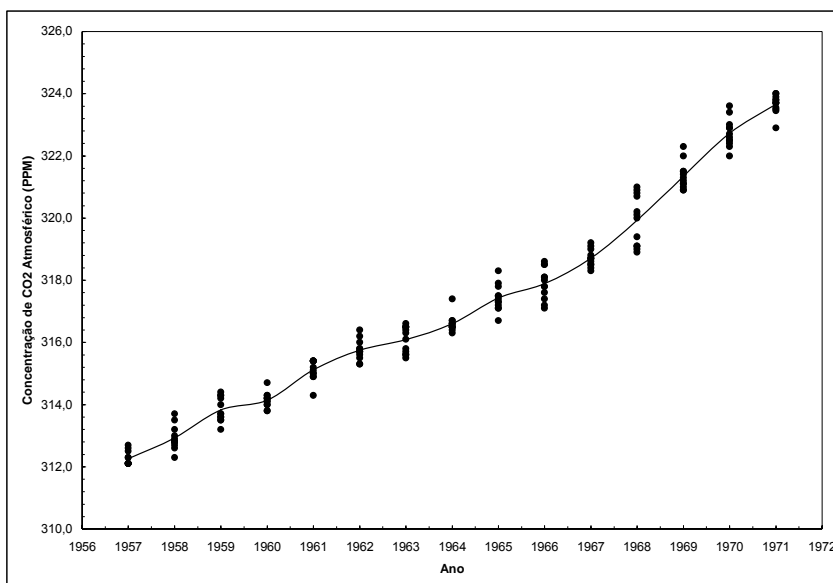


Figura 3 - Tendência da concentração de CO₂ atmosférico em Mauna Loa (modificado de Ekdahl e Keeling, 1973)

A adição de CO₂ não radioativo à atmosfera provocou a redução da atividade específica do ¹⁴C no ambiente, fenômeno conhecido como “Efeito Suess” (Suess, 1955, Tans *et al.*, 1979).

Análises de anéis de árvores (determinadas pela razão radiocarbono/carbono inativo) apontam decréscimo gradual dos níveis de ¹⁴C desde o século passado (aproximadamente a partir do ano de 1850) até o ano de 1950 (Figura 4) (Stuiver e Quay, 1981). A partir 1950, quando tiveram início os testes nucleares, se observou acréscimo artificial de ¹⁴C na atmosfera.

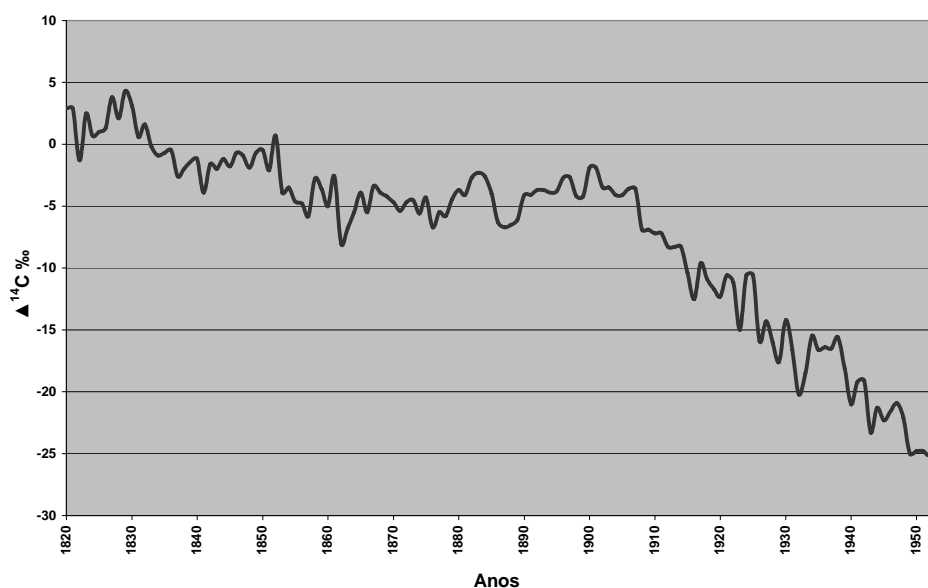


Figura 4 - Níveis atmosféricos de ¹⁴C (dados em $\Delta^{14}\text{C}$ ‰) derivados de anéis de árvore entre os anos de 1820 e 1954 (retirado de Stuiver e Quay, 1981)

Suess constatou que um aumento de, no mínimo, 10 % nas concentrações de CO₂ atmosférico provocava diluição do ¹⁴C formado naturalmente de até 3 % (2,6 % ±0,4). De fato, Stuiver e Quay (1981) estimaram que o Efeito Suess foi o principal responsável (85 %) pela redução na concentração de ¹⁴C atmosférico até 1950. Os 15 % restantes resultaram da flutuação da intensidade do campo magnético.

2.2.2 Testes atômicos

Os testes de bombas nucleares (Tabela 2) tiveram início em 1945 na cidade de Novo México. Os períodos mais significativos foram de 1954-1958 e 1961-1962.

Tabela 2 - Relação dos países onde foram realizados testes nucleares no período de 1945-1980 (modificado de Unscear, 2000)

PAÍS	PERÍODO	NÚMERO DE TESTES
Estados Unidos	1945-1962	219
União Soviética	1949-1962	219
Inglaterra	1952-1962	33
França	1960-1974	50
China	1964-1980	22
Total	1945-1980	543

O ¹⁴C é formado pela captura de nêutrons por átomos de nitrogênio presentes na atmosfera da mesma maneira que ocorre na produção natural. No final de 1980, concluiu-se que as explosões nucleares produziram 210.000 TBq (aproximadamente 10⁷Ci) (Unscear, 2000) correspondendo a, aproximadamente, 140 anos da produção natural. Resultados de uma pesquisa na região de Ottawa mostram que, em 1964, folhas de ácer apresentaram atividade de ¹⁴C 90 % acima dos valores normalmente encontrados. Scott *et al.* (1993) também atestam que os valores máximos de atividade na atmosfera (o dobro da atividade inicial) foram obtidos nos anos de 1963-1964 no hemisfério norte.

Desde o registro desse pico de atividade, os níveis de ¹⁴C têm caído gradualmente (Figura 5) devido a três fatores principais:

- a) trocas com o oceano (deposição nas profundezas e em sedimentos);
- b) trocas com a biosfera e
- c) Efeito Suess.

Para 2003/2004, a concentração do ¹⁴C atmosférico varia em torno de 241 Bq/kgC (Magnunson *et al.*, 2004 e Levin e Kromer, 2004), ainda um pouco acima do valor considerado como marco “zero” de 226 Bq/kgC. Desde 1962, quando cessaram os testes nucleares, não há emissão importante de ¹⁴C oriunda dessa fonte.

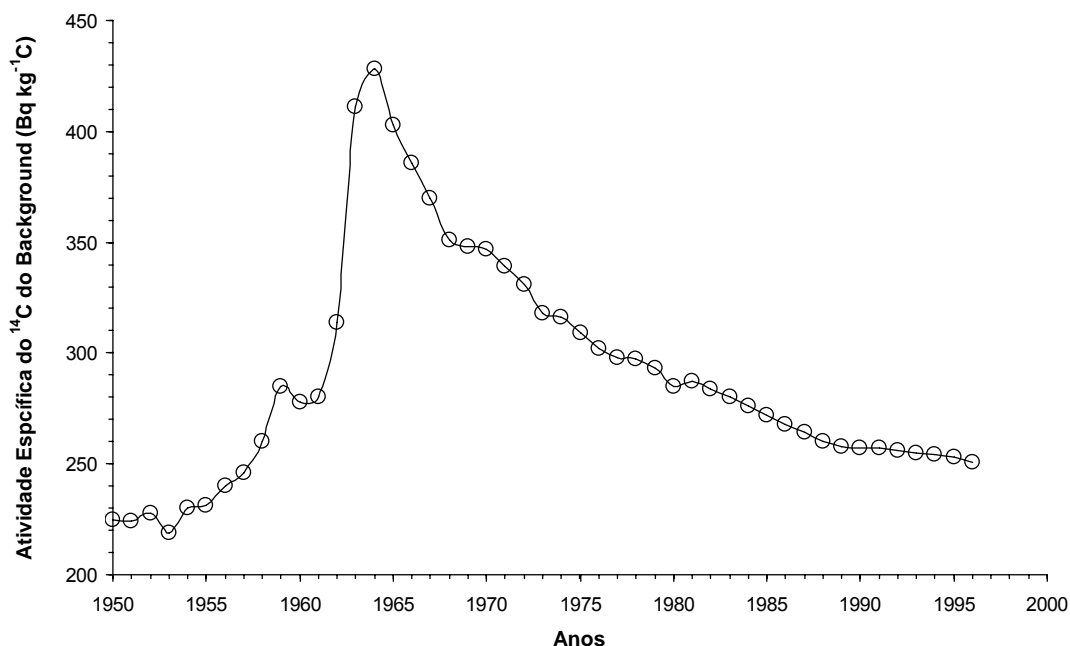


Figura 5 - Tendência da concentração dos níveis atmosféricos do ^{14}C após o ano de 1950 (retirado de Isogai *et al.*, 2002)

O ^{14}C formado pelos testes nucleares tornou-se valiosa ferramenta para estudos de trocas do carbono entre a atmosfera, a biosfera e a hidrosfera. O radionuclídeo permite, em função de sua taxa de decaimento, a análise do tempo de resposta desses reservatórios.

Embora menos expressiva do que os testes nucleares e a produção natural, a indústria nuclear constitui-se numa fonte artificial de ^{14}C e contrabalança, ligeiramente, o declínio de ^{14}C observado a partir de 1963 (de acordo com Levin e Kromer (1997) menos do que 1,5‰ por ano). No ciclo do combustível, a emissão ocorre nas usinas de reprocessamento (principalmente) e nos reatores nucleares.

Enquanto durar, a geração de energia nucleoeletrica produzirá permanentemente átomos de ^{14}C . Essa fonte pode ser detectada ainda que os dois efeitos opostos - combustível fóssil/testes nucleares - tenham exercido principal influência na modulação das concentrações de ^{14}C atmosférico.

2.2.3 O ciclo do combustível

“O ciclo do combustível inclui todas as atividades envolvidas na obtenção e na irradiação do combustível em reatores nucleares, bem como a estocagem definitiva ou o reprocessamento do combustível gasto, com ou sem o reaproveitamento dos materiais físeis ainda presentes, e a deposição final dos rejeitos constituídos de produtos de fissão gerados durante a irradiação” (www.ipen.br).

Dividido em etapas, o ciclo do combustível se apresenta como:

- a) exploração e avaliação de reservas;
- b) mineração ou perfuração para acesso às reservas;
- c) processamento e refino dos materiais brutos;
- d) fabricação dos elementos combustíveis;
- e) utilização do combustível nos reatores;
- f) estocagem do combustível queimado e
- g) reprocessamento e disposição dos resíduos.

As emissões mais importantes de ^{14}C ocorrem na etapa de reprocessamento do ciclo do combustível (Bush *et al.*, 1983, Baxter *et al.*, 1984, McCartney *et al.*, 1986, McCartney e Baxter, 1988, Otlet *et al.*, 1990, Buzinny *et al.*, 1995, McNamara e McCartney, 1998 e Fukumatsu *et al.*, 1999). Com relação aos reatores, aqueles que utilizam o sistema à água pesada são os maiores emissores (Unsear, 2000).

3 O CICLO DO CARBONO

O movimento do carbono no meio ambiente pode ser descrito esquematicamente num ciclo global representado por quatro reservatórios principais: atmosfera, biosfera, hidrosfera e litosfera. Esses reservatórios trocam CO_2 (e conseqüentemente $^{14}\text{CO}_2$) entre si, mantendo em estado constante os teores de carbono (Figura 6).

Estima-se em, aproximadamente, 10^{16} t a quantidade total de carbono existente na superfície da Terra. As maiores concentrações estão no fundo dos oceanos (na forma de carbonatos e nos sedimentos), nas rochas ígneas e nos combustíveis fósseis. Mas o carbono que participa ativamente nos fluxos está, principalmente, na biosfera, que pode ser dividida em organismos vivos (biota) e matéria orgânica dos solos (MOS).

A matéria orgânica dos solos constitui-se num reservatório de carbono aproximadamente três vezes maior do que a biota (www.ieav.cta.br) e tem um importante papel no ciclo do carbono, influenciando a concentração de CO_2 na atmosfera. Portanto, ações antrópicas como desmatamento e/ou uso inadequado do solo podem provocar aumentos importantes de CO_2 atmosférico.

De fato, pouco se sabe sobre a dinâmica do carbono nos solos. A compreensão do tempo e da intensidade de resposta a perturbações depende de informações tais como inventários, *turnover* e acúmulo do carbono no solo. Os isótopos ^{12}C , ^{13}C e ^{14}C têm sido

muito empregados nestes tipos de pesquisa (Trumbore, 1993; Gomes, 1995; Trumbore *et al.*, 1995; Gouveia, 1996; Pessenda *et al.*, 1996 e Pessenda *et al.*, 1998).

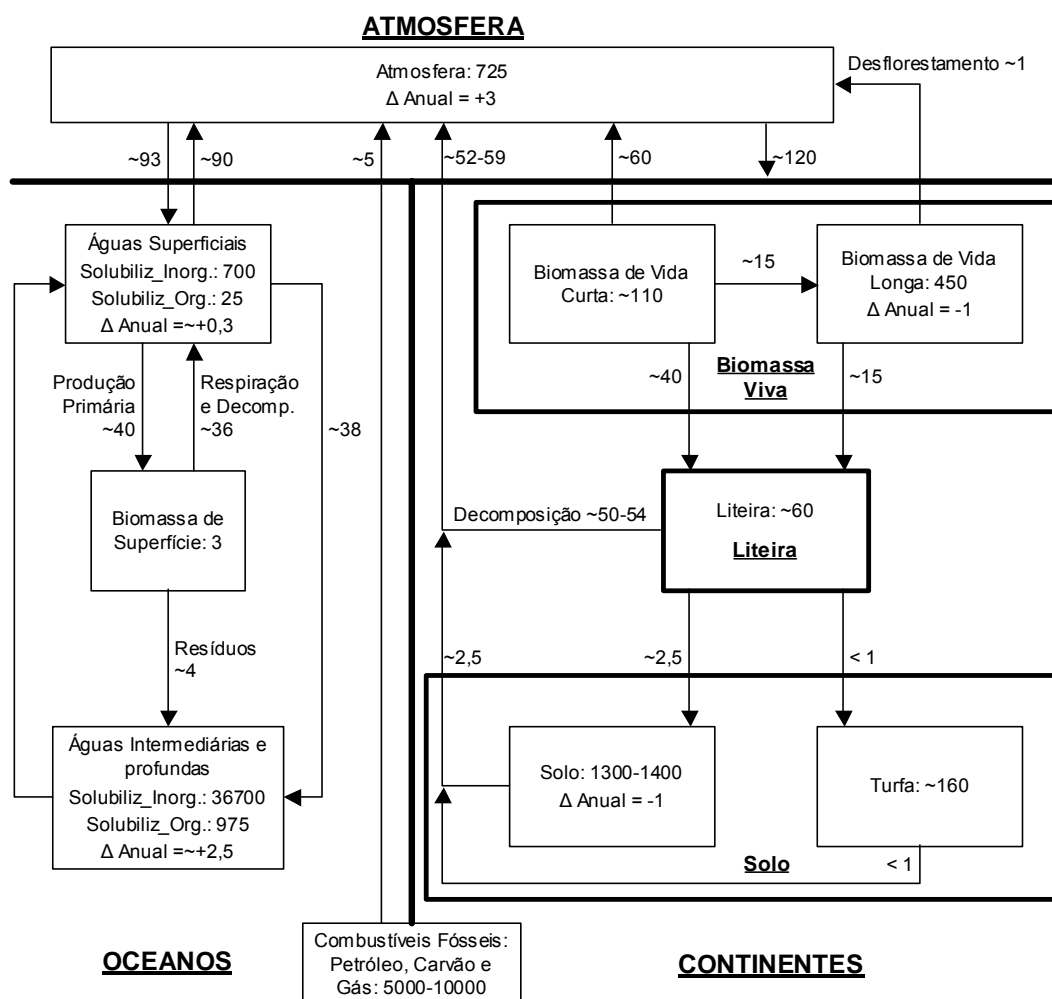


Figura 6 - Desenho esquemático do ciclo global do carbono. Os retângulos representam os reservatórios e as linhas os fluxos: 10^{15} g (Retirado de Varela, 2002)

Diversos modelos propostos para o fluxo carbono na MOS fundamentam-se nos diferentes tempos de residência dos componentes da MOS: (1) material orgânico que rapidamente se decompõe, como folhas e serrapilheira, com tempo de residência do carbono muito curto, de 1 a 2 anos (representa aproximadamente 20 % do total de carbono presente nos solos (Figura 6)), (2) material com tempo de residência menor que 100 anos e, por fim, (3) o material dito passivo, com tempo de residência entre 100 e 1000 anos (Scott *et al.*, 1993).

Na biota, o fluxo de CO_2 para a atmosfera é menor do que na direção contrária por causa do seqüestro de carbono pela vegetação para formação da matéria orgânica. Devido à grande quantidade de material presente, torna-se difícil prever o tempo de residência do carbono nesse reservatório (Scott *et al.*, 1993).

Nos oceanos, dos 93 Gt de carbono que são absorvidas pela água, 90 Gt voltam para a atmosfera por processos, por exemplo, de evaporação (www.ieav.cta.br). Estima-se para as águas superficiais um tempo de residência do carbono de 5 - 8 anos, e para águas profundas, de 500-1000 anos (Scott *et al.*, 1993).

Na litosfera as trocas são tão lentas que não se considera os fluxos desse reservatório no ciclo do carbono de curta duração.

3.1 O CICLO DO CARBONO E O CARBONO-14

O $^{14}\text{CO}_2$ também é incorporado nos reservatórios pelos mesmos mecanismos de troca do CO_2 . Todavia, devido aos processos de fracionamento e decaimento radioativo, há diferenças nas atividades específicas do ^{14}C em cada reservatório (Figura 7).

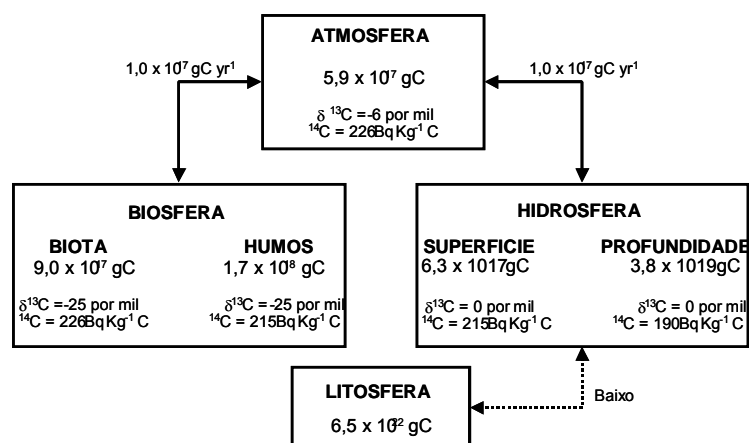


Figura 7 - Desenho esquemático do ciclo global do carbono e ^{14}C (retirado de Scott *et al.*, 1993)

Com relação ao fracionamento, as plantas tendem a incorporar o isótopo mais leve devido a pequenas diferenças nas propriedades termodinâmicas e, portanto, possuem teores de ^{14}C menores do que a atmosfera, assim como os animais. Esse efeito pode influenciar significativamente nas concentrações do ^{14}C dependendo das espécies consideradas e das diferentes partes da biosfera.

A quantificação do efeito do fracionamento é realizada comparando-se a razão $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ das amostras com a mesma razão do padrão de referência PDB (Belemnitella Americana da Formação PEE DEE) (Scott *et al.*, 1993). Essa razão denomina-se razão isotópica e é expressa como $\delta^{13}\text{C}$, cuja equação é:

$$\delta^{13}\text{C} = \left(\frac{R}{R_0} - 1 \right) 1000\% \quad (3)$$

onde:

R- razão $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ da amostra

R_0 - razão $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ do padrão PDB

Com relação ao decaimento, quanto maior o tempo de residência do ^{14}C no reservatório, maior o decaimento radioativo e, conseqüentemente, menor sua atividade específica.

A biota, devido às rápidas trocas existentes, está em equilíbrio com a atmosfera. Já no compartimento húmus, o longo tempo de residência do ^{14}C resulta numa atividade específica menor do que encontrada na biota (215 Bq/kgC). Nos oceanos profundos, a atividade específica é de 190 Bq/kgC. Nas águas superficiais o valor é o mesmo do húmus e, na litosfera, como o tempo de residência é muito longo, assume-se que esse reservatório não contém ^{14}C (Scott *et al.*, 1993). Importante ressaltar que os valores apresentados na Figura 7 correspondem ao período anterior às grandes contribuições antropogênicas, conforme descrito anteriormente, quando a maior atividade específica do ^{14}C (“marco zero”) foi registrada em 226 Bq/kgC.

4 REATORES NUCLEARES E A FORMAÇÃO DO ^{14}C

As usinas nucleares funcionam como as térmicas: produzem calor para aquecer uma massa de água que se transforma em vapor e aciona uma turbina acoplada a um gerador de energia elétrica. A diferença entre elas é que numa usina térmica a fonte de calor é o carvão enquanto na nuclear é o urânio enriquecido.

Existem vários tipos de usinas nucleares em operação no mundo hoje (Tabela 3). Os sistemas podem ser divididos em reatores de fissão e de fusão. Os de fusão ainda não são uma realidade. Os de fissão estão divididos em três classes: térmicos, rápidos e os subcríticos.

Os reatores térmicos são os mais empregados e são classificados como:

- a) Reatores refrigerados e moderados à água leve (*Light Water Reactor-LWR*):
 - Pressurized Water Reactor (PWR)
 - Boiling Water Reactors (BWR)
- b) Reatores moderados a grafite:
 - Magnox: reator refrigerado a gás
 - AGR: reator refrigerado a gás, evolução da linha Magnox
 - RBMK: reator refrigerado à água.

- PBMR: reatores que utilizam hélio, nitrogênio e gás carbônico como refrigerantes
- c) Reatores moderados à água pesada:
 - Heavy Water Reactors (HWR): as usinas canadenses The Canadian deuterium uranium reactors (CANDU) podem ser citadas como exemplo.

Tabela 3 - Tipos de reatores em operação no mundo (modificado de IAEA, 2003)

SISTEMA	NOME	SIGLA	UNIDADES	
			EM OPERAÇÃO	EM CONSTRUÇÃO
<i>Light Water Reactors</i>	<i>Advanced Boiling Water Reactor</i>	<i>ABWR</i>	2	4
	<i>Boiling Water Reactor</i>	<i>BWR</i>	90	1
	<i>Pressurized Water Reactor</i>	<i>PWR</i>	213	8
	<i>Water-cooled Water-moderator Energy Reactor</i>	<i>WWER</i>	50	10
		<i>HWLWR</i>	1	
<i>Graphite-Moderated</i>	<i>Advanced Gas Reactor</i>	<i>AGR</i>	14	
	<i>Gas Cooled Reactor</i>	<i>GCR</i>	16	
	<i>Light Water Graphite Reactor</i>	<i>LWGR</i>	17	1
<i>Heavy Water Moderated</i>	<i>Pressurized Heavy Water Reactor</i>	<i>PHWR</i>	35	8
<i>Fast Reactors</i>	<i>Fast Breeders Reactors</i>	<i>FBR</i>	3	
		TOTAL	441	32

Aproximadamente 80 % dos reatores utilizados mundialmente são do tipo *LWR*, sendo 50 % do subtipo *PWR*. Historicamente, as *PWRs* evoluíram do programa de propulsão naval americano e se alastraram por serem universalmente consideradas como as mais seguras. A rigor, até hoje nunca ocorreu um acidente fatal com usinas do tipo *PWR*.

O sistema *PWR*, utilizado nas usinas brasileiras, é constituído por três circuitos: primário, secundário e de água de refrigeração (Figura 8). A água do circuito primário é aquecida pelo calor decorrente da fissão do urânio no reator, chegando a uma temperatura de cerca de 320°C. Em seguida, a água passa por tubulações até o gerador de vapor e causa a vaporização da água que se encontra no circuito secundário. Uma, no entanto, não entra em contato com a outra. O vapor resultante aciona a turbina que movimenta o gerador para produzir eletricidade.

Para que a água do circuito primário não entre em ebulição ao ultrapassar 100°C, a pressão é mantida elevada - 157 atmosferas - daí o sistema denominar-se "água leve pressurizada".

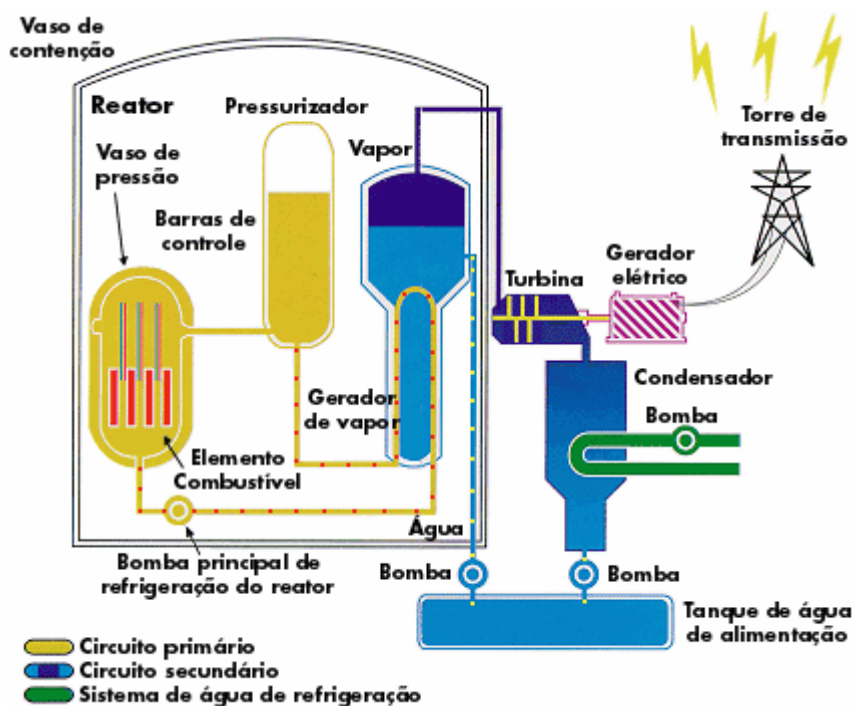


Figura 8 - Desenho esquemático de um reator nuclear do tipo *PWR* (retirado de www.eletronuclear.gov.br, 2003)

O elemento combustível típico consiste de pastilhas de urânio enriquecido (UO_2), em média a 3 % (varia de 2 a 4 %), montadas em tubos de liga metálica especial - o zircaloy - formando um conjunto de varetas. A estrutura é mantida rígida por reticulados chamados de grades espaçadoras.

A produção de ^{14}C nos reatores é provocada pela absorção de nêutrons de fissão por átomos de oxigênio, nitrogênio e carbono, conforme as reações (Davis, 1979):

- 1) $^{16}\text{O} (n, 2\text{He}) ^{14}\text{C}$
- 2) $^{17}\text{O} (n, \alpha) ^{14}\text{C}$
- 3) $^{14}\text{N} (n, p) ^{14}\text{C}$
- 4) $^{15}\text{N} (n, d) ^{14}\text{C}$
- 5) $^{13}\text{C} (n, \gamma) ^{14}\text{C}$

onde n refere-se ao nêutron, d a um átomo de deutério, ^2_1H , α a partícula alfa e p a próton.

Destas cinco reações, as de nº 2, 3 e 5 são as que mais contribuem para formação do ^{14}C . A reação com nitrogênio é, sem dúvida, a mais importante. Esse elemento aparece como impureza no combustível e no moderador, além de também estar presente no material estrutural das plantas nucleares (Davis, 1979 e Torstenfelt, 1996).

As reações com oxigênio ocorrem em todos os reatores que utilizam combustível com oxigênio (UO_2) e água como refrigerante e/ou moderador.

A Tabela 4 apresenta a produção total de ^{14}C para cada tipo de reator. Importante enfatizar que os cálculos são aproximados uma vez que as quantidades formadas dependem do tipo de reator, do enriquecimento do combustível, da composição química, e massa, do moderador e/ou refrigerante, da concentração de nitrogênio como impureza e do total de energia gerada (IAEA nº 421, 2004). Numa escala de taxa de produção os reatores estariam na seguinte ordem: CANDU>RBMK>BWR>PWR (Unscar, 2000).

Tabela 4 - Produção total (combustível, material estrutural, moderador e refrigerante) de ^{14}C em vários tipos de reatores ($\text{TBq/GW}_{(e)}\text{ano}^{-1}$) (modificado de IAEA nº 421, 2004).

TIPOS DE REATORES	PRODUÇÃO
LWR-PWR	1,5
LWR-BWR	1,3
CANDU (600MW and CO_2 annulus gas)	28,0
GCR-MGR	17,0
CGR-AGR	5,6
CGR-HTGR	3,4

Em reatores do tipo *LWR*, o ^{14}C se forma no combustível, no material estrutural e no moderador. Entretanto, apenas o ^{14}C produzido no moderador é liberado para a atmosfera. Teoricamente, ^{14}C formado no combustível e material estrutural fica imobilizado sendo liberado apenas na etapa do reprocessamento.

Conforme dados do relatório técnico da IAEA (nº 421, 2004), a produção de ^{14}C no moderador em usinas do tipo *BWRs* está entre 0,19 a 0,42 $\text{TBq/GW}_{(e)}\text{ano}^{-1}$ e para *PWRs*, **0,11 a 0,23 $\text{TBq/GW}_{(e)}\text{ano}^{-1}$** (considerando um teor de 25 ppm de nitrogênio presente na água). Esses cálculos porém, podem apresentar resultados diferentes uma vez que são fortemente dependentes do teor de nitrogênio (que é muito variável) e dos níveis de ^{17}O presentes no moderador. Assume-se que, praticamente, todo o ^{14}C produzido no moderador seja liberado no meio ambiente.

A Tabela 5 apresenta compilação de dados sobre medidas das concentrações de ^{14}C liberado em vários reatores tipo *PWR* e *BWR* no mundo. Observa-se que algumas medidas são significativamente maiores do que o esperado. As principais liberações de ^{14}C se dão nos efluentes gasosos e uma pequena parte, menos de 5 % (Kunz, 1985), nos efluentes líquidos e rejeitos sólidos.

Tabela 5 - Emissões de ^{14}C medidas nos efluentes gasosos de usinas *LWR* no mundo

USINA	TIPO	LIBERAÇÃO TBQ/GW _(el) ANO ⁻¹	REFERÊNCIA
USA			
Oyster Creek	<i>BWR</i>	0,67	Bush, 1983
Nine Mile Point	<i>BWR</i>	0,59	Bush, 1983
Six USA Reactors	<i>BWR</i>	0,46	Bush, 1983
J. A. FitzPatrick	<i>BWR</i>	0,46	Bush, 1983
Haddam Neck	<i>PWR</i>	0,037 - 0,19	Bush, 1983
Yankee Rowe	<i>PWR</i>	0,19	Bush, 1983
Six USA Reactors	<i>PWR</i>	0,36	Bush, 1983
Indian Point Unit 3	<i>PWR</i>	0,36	Kunz, 1985
R. E. Ginna	<i>PWR</i>	0,43	Wikelmann and Fields, 1985
ALEMANHA			
Würgassen	<i>BWR</i>	0,56	Wikelmann <i>et al.</i> , 1984
Brünshüttel	<i>BWR</i>	0,48	Wikelmann <i>et al.</i> , 1984
Isar	<i>BWR</i>	0,36	Wikelmann <i>et al.</i> , 1984
Biblis A	<i>PWR</i>	0,07	Wikelmann <i>et al.</i> , 1984
Biblis B	<i>PWR</i>	0,41	Schwibach <i>et al.</i> , 1977
Obrigheim	<i>PWR</i>	0,12	Schwibach <i>et al.</i> , 1977
Stade	<i>PWR</i>	0,15	Schwibach <i>et al.</i> , 1977
Neckarwestheim	<i>PWR</i>	0,07	Schwibach <i>et al.</i> , 1977
Unterwesser	<i>PWR</i>	0,26	Wikelmann <i>et al.</i> , 1984
FINLÂNDIA			
TVO I	<i>BWR</i>	0,48	Salonen e Snellman, 1986
Loviisa I	<i>PWR</i>	0,39	Salonen e Snellman, 1986
SUÉCIA			
Ringhals 1	<i>BWR</i>	0,48	Stenström, 1995a
Ringhals 4	<i>PWR</i>	0,27	Stenström, 1995a
Forsmark	<i>BWR</i>	0,48	Stenström, 1995a
ESLOVÁQUIA			
Bohunice V230	<i>PWR</i>	0,5	Uchrin <i>et al.</i> , 1998
Bohunice V213	<i>PWR</i>	0,82	Uchrin <i>et al.</i> , 1998
ESLOVÊNIA			
Krsko	<i>PWR</i>	0,22	Vokal and Kobal, 1997
HUNGRIA			
Paks (4 usinas)	<i>PWR</i>	0,89	Uchrin <i>et al.</i> , 1998
Paks (4 usinas)	<i>PWR</i>	0,8	Veres <i>et al.</i> , 1995

5 TEORIA PARA MEDIDA DE ^{14}C

O ^{14}C é um emissor β de baixa energia ($E_{\text{max}}=156$ keV) e medidas de sua atividade baseiam-se na detecção das partículas, resultantes do decaimento, ou na contagem dos átomos de ^{14}C .

Os métodos baseados no decaimento (convencionais), como contadores proporcionais e cintilação em meio líquido, se desenvolveram muito nos últimos anos e transformaram-se em importantes ferramentas para detecção do ^{14}C (Passo e Cook, 1994). Entretanto, mostram-se limitados em algumas situações.

Para o ar atmosférico, por exemplo, onde a concentração de ^{14}C é muito baixa, podendo estar apenas discretamente acima dos níveis da radiação natural, seria necessário grandes quantidades de amostra para obtenção de medidas com boa estatística de contagem. Além disso, deve-se levar em consideração o tempo de contagem que seria de 24 horas para cada amostra.

Outro fator limitante é o procedimento de preparo da amostra. No caso dos contadores proporcionais, os gases CO_2 ou C_2H_2 devem ser produzidos sem impurezas e a completa síntese de benzeno deve ser empregada para cintilação em meio líquido.

A técnica da espectrometria de massa com acelerador baseia-se na contagem dos átomos de ^{14}C com relação aos isótopos estáveis. Foi introduzida nos anos 70 e, devido a diversas vantagens tais como, (1) quantidade de amostra reduzida (pelo menos 1000 vezes menos com relação aos métodos tradicionais), (2) tempo de medida bastante reduzido (menos de 1 hora); (3) grande capacidade para análise - várias amostras podem ser lidas numa única etapa; (4) simplicidade na preparação da amostra e (5) não interferência de outros radionuclídeos - como pode ocorrer em técnicas radiométricas - sua utilização tem se expandido para várias áreas científicas. As limitações estão nos elevados valores do equipamento e manutenção, que encarecem o custo das pesquisas, e complexidade do equipamento.

A cintilação em meio líquido foi o método utilizado neste trabalho para a determinação das concentrações de ^{14}C nos efluentes gasosos pois, esse tipo de amostra não cai nas limitações, já descritas, do método e os resultados obtidos, conforme literatura, têm sido bastante precisos e confiáveis.

Entretanto, devido às baixas concentrações de ^{14}C nas amostras ambientais, a técnica do AMS está mais indicada para as análises. O sistema utilizado foi o do Departamento de Geologia da Universidade de Lund, na Suécia.

5.1 CINTILAÇÃO EM MEIO LÍQUIDO

O método da cintilação em meio líquido vem sendo utilizado desde os anos 50 para medidas de radionuclídeos presentes no ambiente natural.

O princípio básico consiste na detecção de luz fluorescente ou fótons produzidos pelos compostos orgânicos do coquetel cintilador quando bombardeado por radiação nuclear da amostra (Raben e Bloembeugen, 1951).

O coquetel cintilador utilizado para a mistura com a amostra constitui-se de solventes orgânicos e compostos chamados de cintiladores. Quando há emissão da partícula da amostra, essa interage com o solvente orgânico, presente em alta concentração no coquetel, que absorve a energia liberada no processo de decaimento nuclear.

Forma-se, então, uma molécula orgânica ativada que transfere a energia para as moléculas do cintilador, que se tornam excitadas. Para voltarem ao estado original, essas moléculas perdem energia por meio da emissão de fótons de luz que são captados por um tubo multiplicador de fótons e depois medidos como pulso elétrico. A intensidade de luz produzida é dependente da energia inicial da partícula (Kallman e Accardo, 1950).

O processo se dá da seguinte maneira (Figura 9):

- a) a amostra é misturada a um coquetel cintilador dentro de um frasco que pode ser de plástico ou de vidro;
- b) este frasco é colocado dentro do equipamento num compartimento chamado de câmara de contagem, que funciona conforme um elevador e carrega a amostra para baixo no momento da leitura;
- c) a luz emitida pela amostra é convertida pelo tubo fotomultiplicador (PMT) em elétrons quando há a colisão do fóton com o foto-catodo, localizado na face interna do tubo;
- d) por meio de dinodos carregados positivamente, esses elétrons são ampliados e, com o incremento da voltagem, acelerados resultando numa avalanche de elétrons e conseqüente ampliação do pulso, coletado no anodo. A ampliação do pulso (cerca de 10 milhões de vezes) é necessária, pois a luz emitida geralmente é muito fraca;
- e) os pulsos são convertidos de analógico para digital e, esses últimos, classificados com base na altura por meio da análise da altura do pulso (PHA) ou análise de multicanal (MCA);
- f) ao final do processo, os resultados, que se apresentam como contagem por minuto (CPM), serão convertidos em desintegrações por minuto (DPM).

A utilização de dois PMTs tem como objetivo a coincidência na detecção da luz e na composição do pulso uma vez que, o decaimento nuclear produz luz em todas as direções. Os processos de decaimento e cintilação são muito rápidos, de 2-10 ns. Todos os eventos, captados pelos dois PMTs, que ocorrerem em 18ns serão considerados verdadeiros.

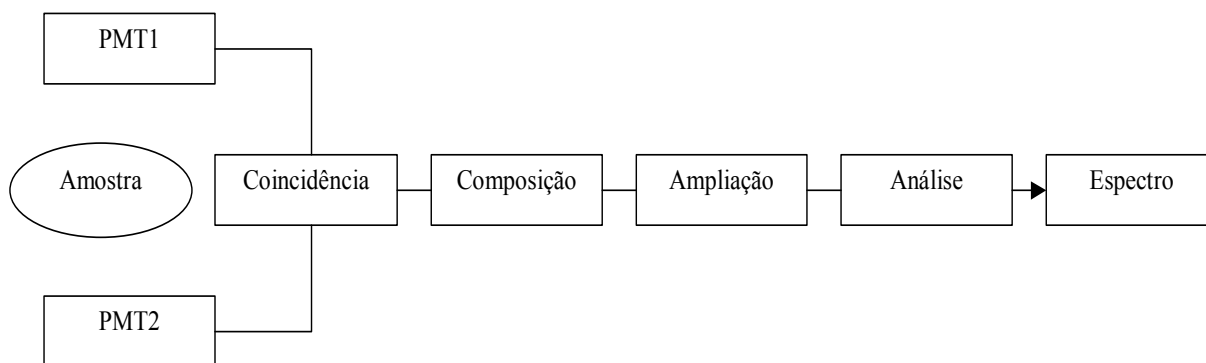


Figura 9 - Desenho esquemático de um equipamento de cintilação em meio líquido (retirado de L'annunziata e Kessler, 1998)

No método da cintilação em meio líquido, fatores intrínsecos, como a própria solução da amostra e do coquetel cintilador, e externos, como o *background*, podem interferir na leitura e provocar atenuação ou valores superestimados.

O *quench* é o fenômeno da atenuação da contagem em meio líquido. Ocorre quando a solução da amostra absorve a energia da partícula ou os fótons de luz, provenientes do decaimento beta produzidos no coquetel cintilador (Kessler, 1989).

A atenuação pode ser produto de duas causas:

- a) presença de compostos químicos no coquetel cintilador utilizado (atenuação química)
- b) presença de substâncias coloridas na amostra (atenuação de cor)

A atenuação química ocorre em quase todas as amostras de cintilação em meio líquido. O processo se dá pela absorção da energia liberada, em decorrência do decaimento, pelos componentes do cintilador antes mesmo da produção de luz. Como consequência, há redução da intensidade e da transferência de energia para o solvente do cintilador

A atenuação de cor ocorre quando a amostra apresenta cor no visível e, por esse motivo, há a absorção dos fótons de luz antes de detectados e quantificados nos PMTs.

Esses dois processos reduzem o número de CPM da amostra, pois afetam a intensidade e eficiência de detecção de radionuclídeo no coquetel cintilador.

Para compensar a atenuação (*quench*) e determinar a desintegração por minuto é necessário saber a eficiência da contagem, dada por:

$$E(\%) = (\text{CPM}/\text{DPM})100 \quad (4)$$

onde:

E = eficiência da contagem

CPM = contagem por minuto

DPM = desintegração por minuto

As contribuições de *background* podem ser de várias fontes. Quando essa fonte é externa e interage com as paredes do frasco ou com o PMT, denomina-se o efeito de *unquenchable background* (Tabela 6). Quando, porém, a fonte externa reage com o coquetel cintilante, denomina-se *quenchable background* (Tabela 7). Aproximadamente 32 % do total de *background* que afeta as medidas devem-se a eventos *quenchable* e 68 % a *unquenchable* (Horrocks, 1985).

Tabela 6 - Contribuição das fontes de *background* (*unquench*) (Passo e Cook, 1994)

FONTES	CONTRIBUIÇÃO
Frasco (20ml)	Raios cósmicos interagindo com o vidro e produzindo radiação Cerenkov, elétrons secundários e raios gama. Radioatividade natural nas paredes do frasco (20ml). Efeito de parede. Carga estática no frasco (20ml).
Tubo fotomultiplicador e materiais constituintes	Raios cósmicos interagindo com o tubo e produzindo radiação Cerenkov, elétrons secundários e raios gama. Radiação natural do material do tubo. Cruzamento de descargas elétricas ou eventos de Cerenkov. Produção de pequenos pulsos (“afterpulsing”), após o pulso principal, no tubo devido à liberação de gases.

Tabela 7 - Contribuição das fontes de *background* (*quench*) (Passo e Cook, 1994)

FONTES	CONTRIBUIÇÃO
Coquetel cintilante	Radiação cósmica e contaminação radioativa do solvente e dos compostos cintilantes. Quimioluminescência e/ou bioluminescência produzidos por alguns solventes na amostra.
Amostra	Contaminação dos radionuclídeos. Quimioluminescência produzida por impurezas na amostra ou adição de bases orgânicas e inorgânicas.

A taxa de contagem do *background* pode ser subtraída automaticamente pelo equipamento de acordo com a seguinte equação:

$$\text{CPM}_{\text{Liq}} = \text{CPM}_{\text{Am}} - \text{CPM}_{\text{BG}} \quad (5)$$

É a CPM_{Liq} que será utilizada para determinação da desintegração por minuto (DPM).

A obtenção de boas medidas depende da redução e correção da atenuação (*quench*), além da redução das influências do *background*.

A redução do *quench* dependerá de fatores como a escolha do tipo de coquetel cintilador, as quantidades utilizadas de coquetel cintilador/amostra, o preparo das amostras etc. (Passo e Cook, 1994).

É possível diminuir a influência das fontes de *background* e, assim, melhorar *performance* da análise. Para tanto, é preciso utilizar modernos equipamentos de cintilação em meio líquido que possuem recursos como proteção passiva e ativa, discriminação eletrônica do pulso e a resolução do tempo de contagem. Além disso, são necessárias boas práticas nos procedimentos de laboratório.

Considera-se como boas práticas de laboratório as escolhas: (1) da melhor região de contagem, (2) do frasco e da sua proteção, (3) das melhores condições ambientais para garantir a estabilidade do equipamento, etc.

O estabelecimento da melhor região de contagem consiste em definir o nível inferior e o superior discriminando a altura do pulso, que é determinada pelo maior valor obtido na figura de mérito (FOM) ou fator de mérito (FM). O objetivo é obter a melhor eficiência de contagem e o menor *background*.

A figura de mérito é dada pela fórmula:

$$\text{FOM} = E^2 / \text{CPM}_{\text{BG}} \quad (6)$$

onde:

E = eficiência de contagem na forma de percentagem

CPM_{BG} = contagem por minuto do background

O fator de mérito (FM) é:

$$\text{FM} = 0,95 \text{CPM}_{\text{Liq}} / \sqrt{\text{CPM}_{\text{BG}}} \text{ ou } 0,7459 \text{CPM}_{\text{Liq}} / \sqrt{\text{CPM}_{\text{BG}}} \quad (7)$$

onde:

0,95 = fator utilizado quando o padrão é o ácido oxálico NBS I ou um padrão de referência calibrado em relação a este (Qureshi *et al.*, 1989);

0,7459 = fator utilizado quando o padrão é o ácido oxálico NBS II ou um padrão de referência calibrado em relação a este (Nair *et al.*, 1995)

CPM_{Liq} = diferença entre o CPM do padrão e o CPM do *background*

CPM_{BG} = é o CPM do *background*

O limite mínimo de detecção (LLD) do processo, também chamado de menor atividade detectável (MDA), é calculado automaticamente pelo aparelho e expresso pela fórmula:

$$LD = 4,66 (\text{CPM}_{\text{BG}})^{1/2} / 60 E T M \quad (8)$$

onde:

CPM_{BG} = contagem por minuto do background

E = eficiência de contagem na forma de percentagem

T = tempo em minutos

M = massa em gramas

5.1.1 Preparo da amostra

Para utilização do método de cintilação em meio líquido, podem ser empregadas as seguintes técnicas no preparo da amostra:

- a) absorção de CO_2
- b) síntese benzênica

Ambas consistem na transformação do CO_2 liberado pela amostra numa forma mensurável. A liberação do gás se dá por meio de combustão ou ataque ácido, conforme o tipo de amostra.

Na absorção, o gás liberado reage com um composto específico (¹carbosorb, por exemplo) que então é misturado a um coquetel cintilador para as medidas no equipamento. Na síntese benzênica, o gás é transformado em benzeno, com emprego de catalisadores e altas temperaturas, e misturado ao coquetel cintilador.

A absorção tem sido utilizada como uma alternativa à síntese benzênica em datações até 30.000 anos. Isso deve-se à simplicidade, economia e rapidez no preparo da amostra além de precisão e reprodutibilidade dos resultados.

Para consulta com detalhes das técnicas, há vasta bibliografia existente (Qureshi *et al.*, 1989; Pessenda e Camargo, 1991; Nair *et al.*, 1995; Stork *et al.*, 1997; Woo *et al.*, 1999a e Guerra, 2002).

¹ O carbosorb [3-metoxipropilamina - $\text{CH}_3\text{-O}(\text{CH}_2)_3\text{-NH}_2$] é um composto específico para absorção de CO_2 , comercialmente disponível, que vem sendo muito utilizado nos últimos anos para cintilação em meio líquido. A reação do CO_2 com o carbosorb forma o carbamato que será misturado ao coquetel cintilador.

Essas técnicas, no entanto, são utilizadas com objetivo de atingir altas eficiências de contagem e baixos limites de detecção (0,04 a 4 mBq/gC) (Snellman, 1988), quando as concentrações dos radionuclídeos são baixas na amostra. Na síntese benzênica, por exemplo, a eficiência de contagem chega a 80 %, possibilitando sua aplicação em datações radiocarbônicas de até 40.000 anos.

No caso dos efluentes gasosos, que normalmente têm elevadas concentrações de ^{14}C , o uso do método de cintilação com eficiências de contagem mais baixas é perfeitamente aceitável. Para as medidas, não há necessidade da liberação do CO_2 . O precipitado de BaCO_3 , forma química final das amostras dos efluentes, pode ser diretamente misturado ao coquetel cintilador, formando uma solução cintiladora.

Os coquetéis normalmente utilizados são Luma-gel e Instagel. A quantidade de precipitado a ser misturada tem relação oposta com a eficiência de contagem. Quanto maior a massa da amostra (BaCO_3), menor a eficiência de contagem. Isso por que a solução torna-se opaca à luz emitida pelo coquetel cintilador.

O tamanho das partículas do precipitado também influencia os resultados. Quanto maiores as partículas, maior a absorção de luz pela própria solução e menor a eficiência de contagem. Portanto, recomenda-se a pulverização do precipitado antes da mistura com o coquetel cintilador.

Os resultados, em DPM, são transformados para Bq/m^3 e normalizados para o total de energia gerada pelo reator, em MW, por ano ($\text{Bq/MW}_{(el)}$), conforme os cálculos a seguir:

$$[\text{Bq/m}^3] = A (\text{DPM}) \times M (\text{g}) / V (\text{m}^3) \times 60 (\text{s}) \times 1 \text{ g} \quad (9)$$

Onde:

A = atividade da amostra em DPM

M = massa recuperada de BaCO_3 em gramas

V = volume amostrado em m^3

DPM / 60 segundos = 1 Bq

Um grama corresponde à alíquota da amostra misturada ao coquetel cintilador.

Para a normalização:

$$T (\text{Bq/s}) = A (\text{Bq/m}^3) \times Vz (\text{m}^3/\text{s}) \quad (10)$$

onde:

T = taxa de liberação (Bq/s)

A = atividade da amostra em Bq/m³

V_z = vazão da chaminé em m³/s

Definida a taxa de liberação para cada mês, deve-se calcular a taxa média para todos os meses amostrados e então para o ano, conforme as equações a seguir:

$$T \text{ média} = \sum T (\text{meses amostrados}) / n \text{ meses} \quad (11)$$

$$T \text{ média, ano (Bq/ano)} = T \text{ média} \times 365 (\text{dias}) \times 24 (\text{h}) \times 60 (\text{min}) \times 60 (\text{s}) \quad (12)$$

Definida a T média (Bq/ano), divide-se então esse valor pela média da energia gerada ($MW_{(el)}$) em um ano:

$$\text{Bq}/MW_{(el)} \text{ ano} = T \text{ média, ano (Bq/ano)} / \text{média de energia gerada elétrica (} MW_{(el)} \text{) em um ano} \quad (13)$$

5.2 ESPECTROMETRIA DE MASSA COM ACELERADOR (AMS)

O sistema de espectrometria de massa com aceleração foi introduzido em 1977 (Bennet *et al.*, 1977; Muller, 1977, Nelson *et al.*, 1977) por um grupo de cientistas canadenses e americanos. Constitui-se num método muito sensível para contagem de átomos e tem sido usado para detectar baixas concentrações de radionuclídeos ou isótopos estáveis presentes em pequenas quantidades de amostras.

Atualmente, existem 32 laboratórios no mundo com o sistema AMS instalado (Radiocarbon updates, 2005) e operando. Destes, cinco dedicam-se exclusivamente à datação radiocarbônica, produzindo mais de 10.000 resultados por ano (Tuniz *et al.*, 1998). O desenvolvimento da técnica ao longo dos anos, no entanto, revelou inúmeras possibilidades do sistema, estendendo sua aplicação para áreas como oceanografia, meio ambiente físico, biomedicina, climatologia etc (Stenström, 1995a, Fifield, 1999).

O espectrômetro de massa com acelerador é uma extensão de um espectrômetro de massa tradicional (Figura 10).

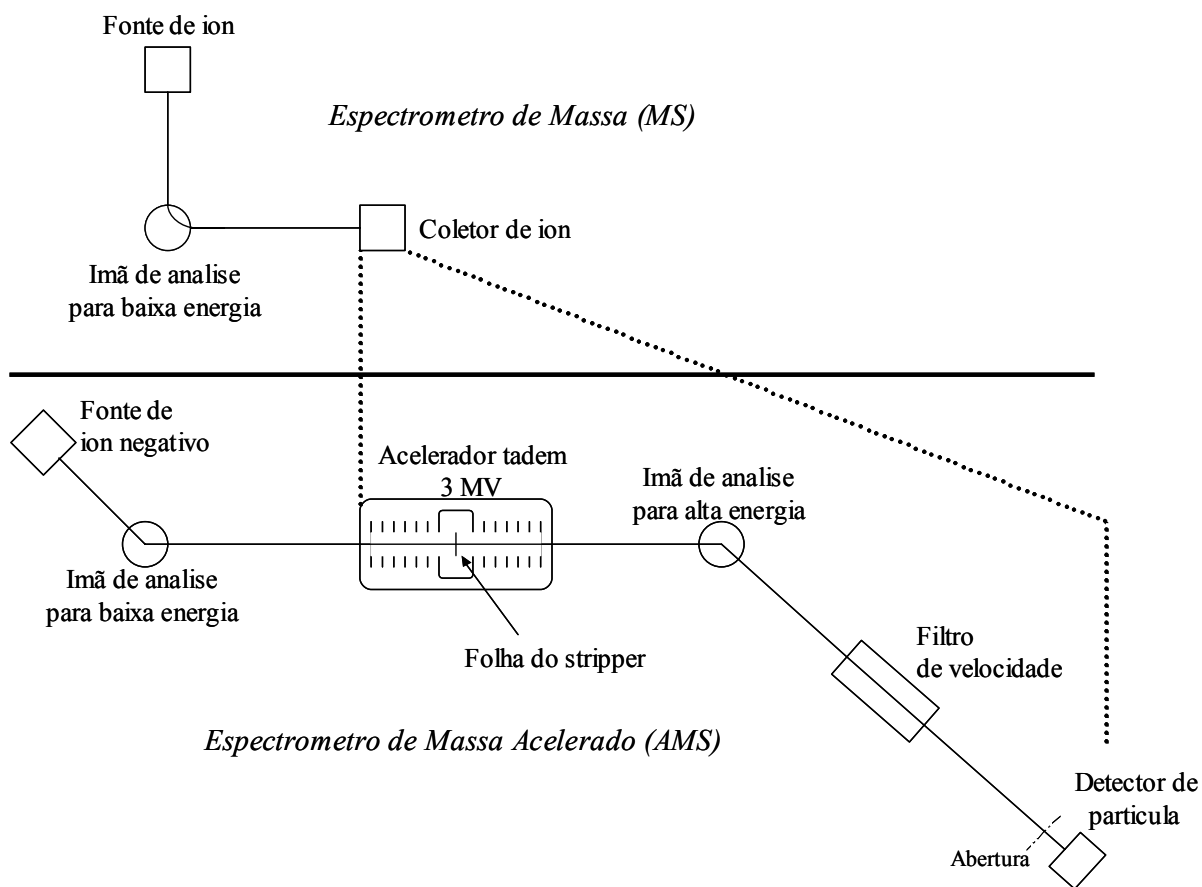


Figura 10- Comparação entre os sistemas de espectrometria de massa tradicional e com acelerador (AMS da Universidade de Lund, Suécia) (retirado de Stenström, 1995a)

O princípio da análise consiste em bombardear a amostra com fonte de íons gerando corrente negativa de íons da amostra. Os íons são então acelerados com energias em MV e um campo magnético é usado para separação da massa antes da detecção da partícula. A produção da corrente negativa de íons e o processo de aceleração eliminam as interferências dos isóbaros atômicos e moleculares como, por exemplo, o ^{14}N e ^{13}CH (Stenström, 1995a).

Para espectrômetro tradicional, concentrações isotópicas menores do que 10^{-7} relativas ao isótopo mais abundante não podem ser medidas devido a estas inseparáveis interferências de isóbaros. Para AMS entretanto, é possível medir razões isotópicas inferiores a 10^{-15} .

A Universidade de Lund possui dois sistemas AMS. O primeiro, mais antigo, pertence ao Departamento de Física Nuclear. Foi posto em operação na década de 70 e no ano

de 2005 foi desativado. O segundo, instalado em 2004, funciona no Laboratório de Datação Radiocarbônica do Departamento de Geociências da Universidade.

Ambos os sistemas são equipados com uma fonte de íons céσιο que requer um alvo (amostra) sólido, compacto. Portanto, o carbono das amostras deve ser extraído e convertido em carbono elementar (grafite) antes das análises.

Após conversão, as amostras são bombardeadas pela fonte de íons (césio) gerando uma corrente negativa de íons C, com energia inicial de 40 keV.

No equipamento mais antigo, esses íons passam por campo magnético (injetor) que funciona como filtro, já que seleciona a massa que será injetada no acelerador, removendo isótopos e o isóbaro atômico ^{14}N por não formar íons estáveis. Entretanto, esse primeiro filtro não impede a entrada dos isóbaros moleculares do ^{14}C ($^{12}\text{CH}_2^-$ e $^{13}\text{CH}^-$).

No acelerador, os íons são acelerados no terminal *stripper* (localizado no centro do acelerador) e passam por chapas finas que retiram elétrons pelo caminho produzindo íons de carga positiva. Nesse estágio, os isóbaros moleculares são removidos. A voltagem terminal usada no acelerador é de 2,4 MV (Erlandson *et al.*, 1992).

Os íons são então novamente acelerados para um campo magnético que defletirá $^{12}\text{C}^{+4}$ mais do que $^{13}\text{C}^{+4}$ e este mais do que $^{14}\text{C}^{+4}$. Um coletor de íons *Faraday* é utilizado para medir a corrente de ^{13}C . Atrás desse coletor está um detector utilizado para contagem do ^{14}C , conectado ao sistema de analisador multicanal. A maioria dos sistemas AMS em operação no mundo funciona desta maneira (Figura 11).

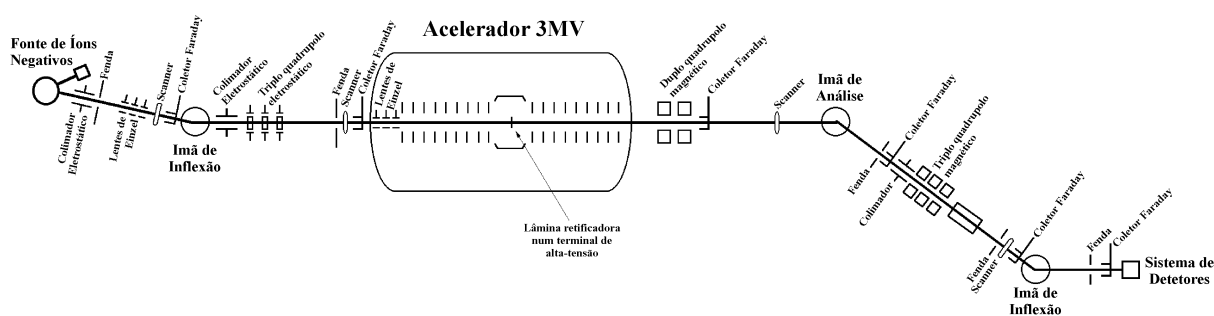


Figura 11- Desenho esquemático do sistema AMS do Departamento de Física Nuclear da Universidade de Lund- Suécia (retirado de Stenström, 1995a).

O equipamento do Departamento de Geociências, no entanto, difere do anterior por possuir um único estágio de aceleração com baixas tensões. Neste sistema, idealizado por um grupo de pesquisadores na Suíça (Synal *et al.*, 2000), é possível “quebrar” moléculas com energias mais baixas num único estágio da aceleração (250 kV), produzindo partículas com

As diferenças básicas, portanto, podem ser observadas na Tabela 8:

Tabela 8 - Diferenças de parâmetros entre os sistemas AMS dos Departamentos de Física Nuclear (tradicional) e Geociências da Universidade de Lund-Suécia (SSAMS).

PARÂMETROS	SISTEMA AMS (TRADICIONAL)	SISTEMA SSAMS
Voltagem no acelerador (MV)	3,0	0,25
Cargas dos íons de C após aceleração	+3 ou +4	+1
Posições para amostras	20	40
Acelerador “Stripper”	Isolado Lâmina de carbono	Aberto ao ar Gás (N ₂ ou Ar)
Comprimento (m)	30	~12

Essas mudanças tornaram os equipamentos “compactos” e mais baratos com resultados tão ou mais precisos quanto os obtidos nos sistemas convencionais (Schroeder *et al.*, 2004). As amostras ambientais deste trabalho foram analisadas pelo SSAMS do Laboratório de Radiocarbono do Departamento de Geociências da Universidade de Lund.

A atividade da amostra é dada pela equação:

$$A_s = A_{ox} \cdot (N_s - N_b) / (N_{ox} - N_b) \quad (14)$$

onde:

A_s e A_{ox} = atividades da amostra e do padrão de ácido oxálico, respectivamente.

N_s , N_b e N_{ox} = contagens das razões isotópicas $^{14}\text{C}/^{13}\text{C}$ da amostra, da antracita e do padrão do ácido oxálico, respectivamente.

O padrão de ácido oxálico (NIST) é usado como referência para as medidas de ^{14}C no AMS. O uso de padrões é essencial para a monitoração dos erros sistemáticos que podem ocorrer como, por exemplo, contaminação das amostras ou fracionamento das mesmas na etapa de preparação, etc. A atividade absoluta do ácido oxálico em 1950 (medida realizada com o emprego de contadores proporcionais) era de $14,27 \pm 0,07$ desintegrações por minuto por grama de carbono (dpm/gC).

As leituras de amostras de antracita têm como objetivo checar as medidas de *background* do sistema de grafitização e AMS.

O efeito do fracionamento introduzido pelo sistema AMS é mínimo, provocando um erro no cálculo da atividade da amostra menor do que 1 %.

Os sistemas AMS têm produzido excelentes resultados na várias áreas de aplicação, entretanto, a precisão, reprodutibilidade e acurácia nos resultados dependem de fatores, tais

como, qualidade na corrente de íons negativos, boas condições de vácuo, baixos valores de *background* e alta estabilidade do sistema como um todo.

Os resultados podem ser apresentados :

(1) porcentagem do carbono moderno (pMC). Valores acima de 100 % indicam atividade do ^{14}C antropogênico (“efeito bomba” e emissões pela plantas nucleares),

$$(2) \Delta^{14}\text{C} = 1000 \cdot (R_{\text{amostra}} / (0,95 R_{\text{padrão}}) - 1)$$

Onde:

R_{amostra} = razão do $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ da amostra (corrigido para o $\delta^{13}\text{C}$ de -25‰)

$R_{\text{padrão}}$ = razão $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ do padrão

(3) Bq/kgC e

(4) Bq/m³

Ao utilizar estas notações, é possível comparar as concentrações de ^{14}C entre os diferentes tipos de amostras analisadas.

5.2.1 Preparo da amostra

Conforme descrito anteriormente, o AMS requer alvo sólido e puro para produção de íons negativos quando bombardeado pelos íons de cézio. Na maioria dos laboratórios de AMS esse alvo é o grafite (carbono elementar)

Existem vários processos para o preparo do carbono elementar (Bonani, *et al.*, 1984, Beukens e Lee, 1981 e Grootes *et al.*, 1980). O empregado nesta pesquisa consistiu da redução catalítica do CO_2 liberado pela amostra com uso de pó do metal ferro (poucos miligramas) como catalisador, mantido a uma temperatura de 650°C, na presença do gás hidrogênio. Esse método foi inicialmente utilizado por Vogel *et al.* (1984) e, serviu como modelo para a montagem do sistema de preparo das amostras na Universidade de Lund, (1995a).

A liberação do CO_2 pode ser feita por combustão ou ataque ácido, dependendo do tipo de amostra. A Figura 14 resume os métodos utilizados neste trabalho que serão descritos com detalhes na Metodologia.

O sistema de preparação pode ser dividido em dois subsistemas: (1) onde ocorre a liberação do CO_2 da amostra (formação do CO_2) e (2) onde ocorre a redução deste gás a grafite (grafitização) (Figura 15).

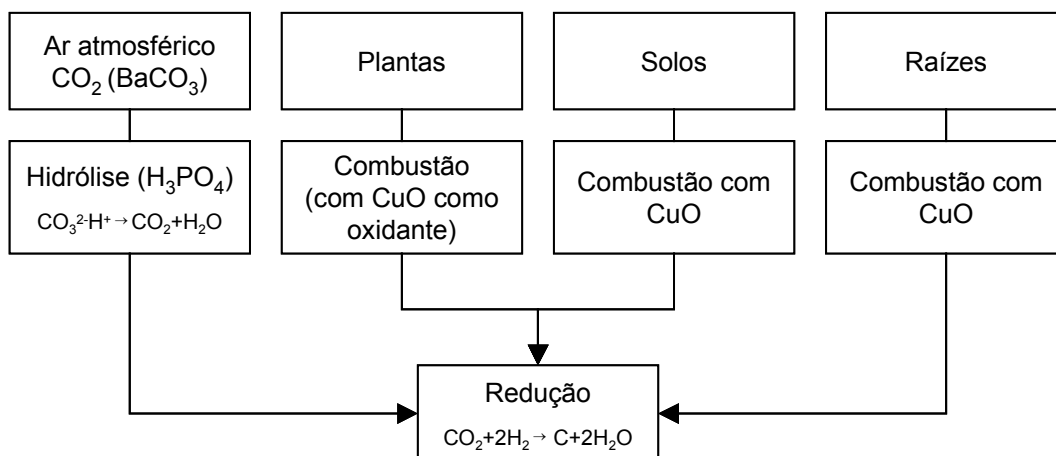


Figura 14- Procedimentos para liberação do CO₂ da amostra.

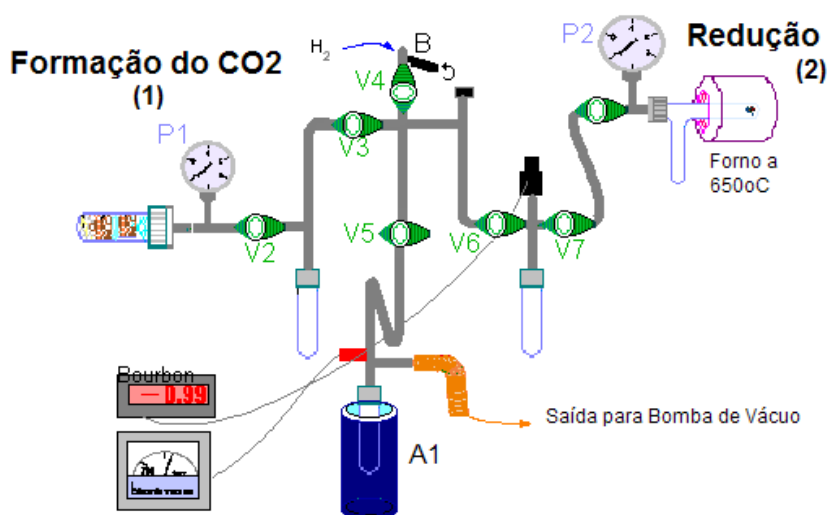


Figura 15- Desenho esquemático do sistema de preparo da amostra com os subsistemas (1) e (2) de combustão e grafitação, respectivamente (modificado de Olariu *et al.*, 2000).

Todo o sistema está conectado a uma bomba de vácuo. A pressão no interior pode atingir valores menores do que 10⁻⁴ mbar. Abaixo da válvula 5, V5, há um tubo de ensaio pyrex (10 cm e “1/2 de diâmetro) mergulhado em nitrogênio líquido, primeira armadilha (A1) do sistema para impedir a entrada de óleo da bomba, o que prejudicaria a redução do CO₂. O sistema é evacuado com a abertura das válvulas 3, V3 e V5. O gás hidrogênio, usado na redução, é liberado pela válvula 4, V4.

No subsistema (1) (Figura 16), à esquerda da válvula 2, V2, as amostras podem ser armazenadas em dois tipos de frascos de vidro: um tubo de ensaio simples de quartzo, no caso da combustão, ou um frasco com três “pernas” para o ataque ácido. Esses frascos são conectados ao sistema por meio de Cajon O rings. A pressão neste subsistema é medida por um pressostato (P1) (-1,0 a 1,5 bar) e há um tubo de ensaio pyrex (10 cm e “1/2 de diâmetro)

mergulhado em etanol (gelado com nitrogênio líquido) para purificação do CO₂ liberado pela amostra (armadilha 2, (A2)).

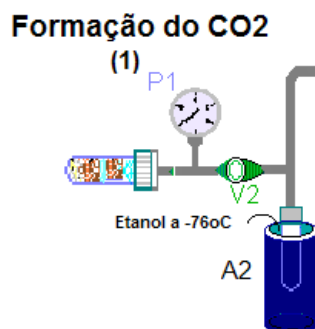


Figura 16- Parte do sistema de preparo da amostra onde é liberado o CO₂ (subsistema (1)).

Entre subsistema (1) e (2), localizado entre as válvulas 6, V6, e 7, V7 (Figura 17), há um tubo de ensaio pyrex (10 cm e “1/2 de diâmetro), imerso em nitrogênio líquido, (armadilha 3, (A3)) e um pressostato do tipo Bourdon (-1,0 a 1,5 bar). O gás é liberado do subsistema (1) e congelado neste tubo. Mede-se o volume de gás liberado pela amostra nesta etapa.

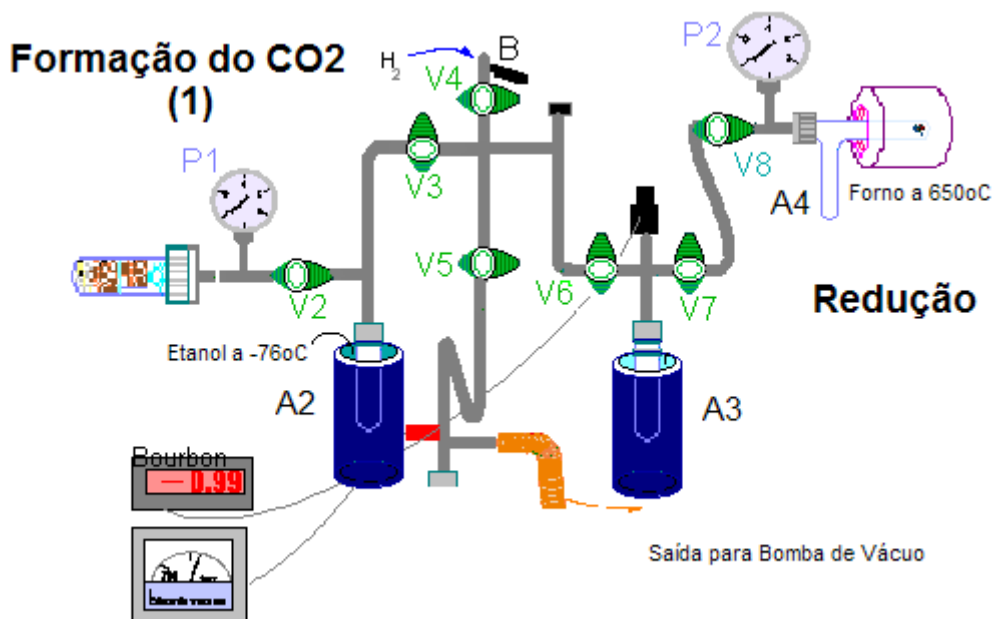


Figura 17- Desenho esquemático do sistema de preparo da amostra mostrando a armadilha 3, onde o CO₂ é congelado (entre v6 e v7), depois de liberado pelo subsistema (1).

No subsistema (2) (Figura 18), à direita da válvula 8, V8, a grafatização ocorre num frasco de vidro de quartzo com duas “pernas”. Uma das “pernas” (vertical) funciona tanto como armadilha (A4) para CO₂ como também para o vapor d’água que vai sendo liberado ao longo do processo de redução.

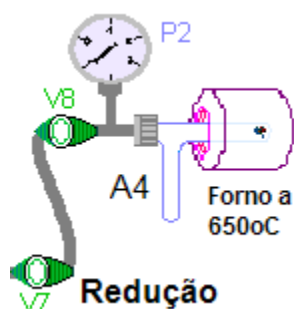
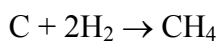
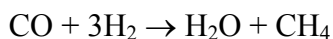
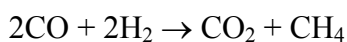
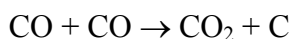
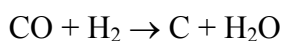
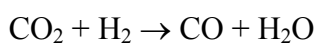


Figura 18- Parte do sistema de preparo da amostra onde o CO₂ é reduzido a grafite (subsistema (2) de grafitação).

Na outra “perna” (horizontal), coloca-se um tubo de quartzo (8 mm) com poucos miligramas do catalisador de ferro, local onde o gás será reduzido. Essa “perna” é conectada ao sistema por meio Cajon O rings e é envolvida por um forno mantido a 650°C. A pressão do gás é marcada pelo pressostato P2. Três frascos podem ser conectados ao subsistema (2) permitindo o preparo de três amostras, simultaneamente. Portanto, são três válvulas V8 que serão chamadas de V8 (a), (b) e (c).

O processo de redução leva de duas a quatro horas para ser completado e ocorre em várias etapas. As reações mais importantes são (Stenstrom, 1995a):



sendo a reação global:



Hidrocarbonetos podem se formar se a temperatura dos fornos estiver abaixo dos 550°C. Como impurezas podem reduzir de forma importante a velocidade das reações ou até mesmo impedir o início das mesmas é necessário que todo o sistema seja evacuado e gás hidrogênio liberado no subsistema de grafitação, antes do início do processo.

6 METODOLOGIA

6.1 ÁREA DE ESTUDO

6.1.1 Localização²

A área estudada é circunvizinha à Central Nuclear Almirante Álvaro Alberto (CNAAA), apontada pela seta vermelha na Figura 19, que localiza-se na praia de Itaorna, região de Angra dos Reis (município do estado do Rio de Janeiro), a aproximadamente 100 km a oeste da cidade do Rio de Janeiro, com as coordenadas geográficas: 23° 01' S e 44° 27' W.



Figura 19- Mapa da região de Angra dos Reis, onde foi realizado o estudo sobre ^{14}C , com a localização da Central Nuclear Almirante Álvaro Alberto (CNAAA) (apontada pela seta vermelha) (www.governo.rj.gov.br)

² Fonte: Secretaria Municipal de Planejamento/Departamento de Planejamento. Legislação de Conservação da Natureza/CESP/SP/1986.

6.1.2 Aspectos Físicos-Ambientais

Com relação à climatologia, a pressão atmosférica é de 1014,8 Mb, temperatura do ar varia de 19,9°C (média das mínimas) a 27°C (média das máximas), sendo a máxima absoluta de 39,3°C, em 11/02/66, e a mínima absoluta de 9,4°C, em 12/08/88.

A umidade relativa do ar é de 82 %, nebulosidade, de 0 a 10, está entre 6 e 8 e o número de dias de chuva por ano é de 158. A médias pluviométricas mensais referentes aos anos de 1980-2004 podem ser observadas na Figura 20.

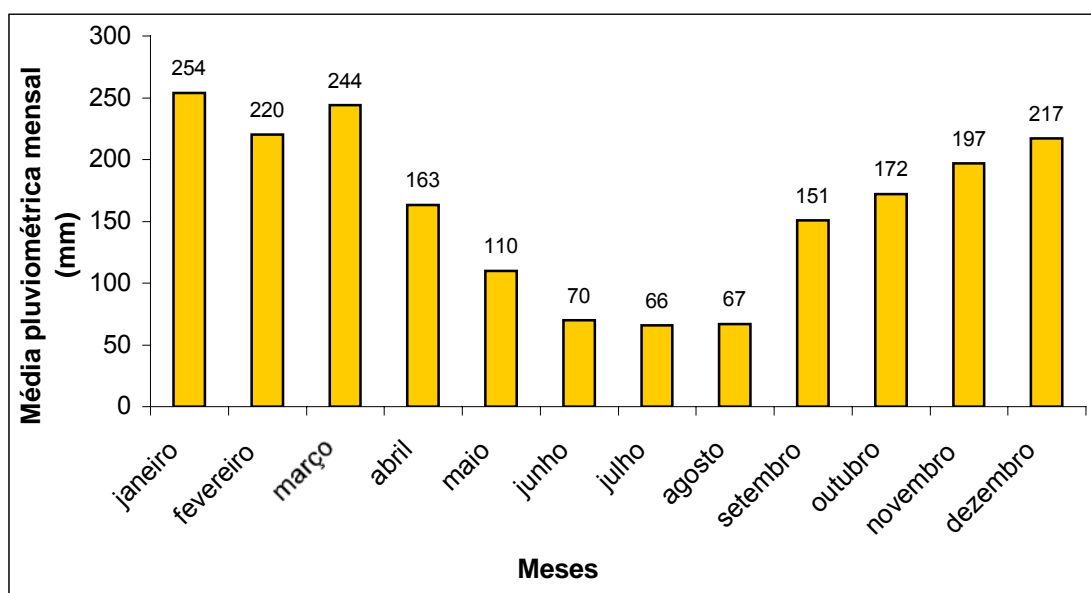


Figura 20- Média pluviométrica mensal relativa aos anos de 1980-2004-fonte Eletronuclear (retirado de Soares, 2006)

6.1.3 Aspectos Naturais³

Topografia

Bastante acidentada, com variações que partem do nível altimétrico 0 a 1.640 metros no Pico do Frade. Essa diferenciação é em função da proximidade dos maciços alcantilados da Serra do Mar com o litoral.

Solos

Os tipos de solos predominantes em Angra dos Reis são:

- a) Argissolo Vermelho Amarelo: provenientes de depósitos coluvionares recentes,

³ Fonte: Levantamento de Solos de Solos da Zona ocupada em Angra dos Reis - Departamento de Solos da UFRRJ.

ocupam as encostas e meias encostas dos contrafortes da Serra do Mar.

- b) Cambissolo: são solos que ocupam as partes mais íngremes das encostas e eventualmente estão associados com argissolos e neossolos.
- c) Neossolo Flúvico: são solos que possuem formação relacionada a depósitos sedimentares aluvionares e encontram-se em áreas de baixadas.
- d) Gleissolo: são solos que possuem elevados teores de matéria orgânica em função da ausência de decomposição de restos vegetais devido ao domínio de condições anaeróbicas. Ocorrem nas áreas planas e sob a influência das marés.
- e) Neossolo Quartzarênico: são solos em que predominam a fração areia e ocorrem, muitas vezes, nas formações costeiras.
- f) Neossolo: são solos que se caracterizam pela pequena profundidade e proximidade do material de origem da superfície. São extremamente suscetíveis.

Clima

Conforme a classificação de Köppen o clima é Af- tropical úmido, sem estação seca definida.

6.1.4 Hidrografia

Os principais coletores da região são os rios Mambucaba e Bracuhy, que têm suas nascentes no alto do Planalto da Serra da Bocaina no Estado de São Paulo. A região é bastante rica em cursos d'água provenientes dos talwegues das encostas da Serra do Mar.

6.1.5 Geologia⁴

Os principais tipos de rochas que ocorrem no local são: gnaisses diversos do pré-Cambriano, granitos de idade similar, diques de basalto do pré-Cambriano ou do Paleozóico, diques de diabásio do Mesozóico e uma zona de diques de lamprófiro, também de idade mesozóica. Os depósitos superficiais são constituídos de uma zona alterada do embasamento

⁴ Fonte: Relatório Final de Análise de Segurança (FSAR) de Angra II, 2ª revisão, 1999 da Comissão Nacional de Energia Nuclear

(saprolito) e de solo residual do Holoceno, sedimentos flúvio-marinhos formados de areias finas, siltes e argilas do Pleistoceno-Holoceno e colúvio de idade holocênica.

O saprolito possui espessura que varia de 5 a 10 m em média, os solos residuais 20 m de espessura em média, os sedimentos flúvio-marinhos atingem mais de 20 m de espessura na porção central de Itaorna e o colúvio 25 m em média.

Os sedimentos flúvio-marinhos, na maior parte, foram cobertos por material de aterro, usado para propósitos de construção.

6.2 COLETA DAS AMOSTRAS

Para determinação do termo fonte, amostras de efluentes gasosos foram coletadas. Para investigação ambiental, amostras de ar atmosférico, vegetação, solos e serrapilheira foram coletadas nas vizinhanças da CNAAA e a 50 km da Central, local livre da influência da operação das usinas, para fins de comparação.

6.2.1 Efluentes gasosos

Medidas diretas das concentrações do radiocarbono nos efluentes gasosos são difíceis de se obter, pois, além do ^{14}C ser um emissor beta puro com baixa energia máxima (156 keV), há a dificuldade de se distinguir sinais de ^{14}C dos outros radionuclídeos liberados. Os gases nobres, por exemplo, possuem atividade usualmente muito maior do que a apresentada pelo ^{14}C (Stenström *et al.*, 1995b).

Por essa razão, métodos radiométricos são adotados para medidas nos efluentes gasosos e os diferentes tipos podem ser classificados em:

- a) Métodos por adsorção,
- b) Membranas permeáveis,
- c) Métodos por congelamento e
- d) Métodos por absorção química em soluções alcalinas, bases orgânicas e hidróxidos alcalinos sólidos.

Revisão completa destes métodos pode ser consultada em Stenström (1995a) ou IAEA nº 421, 2004.

Neste trabalho utilizou-se a adsorção com o emprego de zeólitos sintéticos cristalinos bastante porosos chamados de peneira molecular (*molecular sieve*) (Bol and

Harkness, 1995). Os poros exercem uma força de atração por gases ou líquidos, resultando no processo da adsorção.

Devido à existência de peneiras com tamanhos de poros diferentes, esse material tem sido empregado em processos de tratamento de gases ou líquidos tais como remoção de água, enxofre, gás carbônico, separação de isômeros, etc.

Os tipos de peneiras disponíveis no mercado são chamadas de A e X. Ambas possuem a forma de um octaedro e são constituídas de sílica, alumínio, oxigênio e íons associados. Entretanto, um arranjo diferente na estrutura da peneira X, provocou a formação de poros maiores do que o tipo A. As peneiras A podem apresentar poros de 3Å, 4Å e 5Å, enquanto nas do tipo X (chamadas de 13X), os poros são de 10Å. Moléculas com diâmetros menores do que os poros são adsorvidas pelos diferentes zeólitos e suas fórmulas químicas podem ser vistas na Tabela 9.

Tabela 9 - Fórmula química dos zeólitos

TIPO DE PENEIRA	FÓRMULA QUÍMICA
3 Å	$K_{12} ((AlO_2)_{12} (SiO_2)_{12}) \times H_2O$
4 Å	$Na_{12} ((AlO_2)_{12} (SiO_2)_{12}) \times H_2O$
5 Å	$Ca_{12} ((AlO_2)_{12} (SiO_2)_{12}) \times H_2O$
10 Å	$Na_{86} ((AlO_2)_{86} (SiO_2)_{106}) \times H_2O$

O uso de peneiras para adsorção de CO_2 é muito difundido (Winkelmann *et al.*, 1984, Bol e Harkness, 1995). As do tipo 4Å, 5Å e 13X podem ser utilizadas, sendo a de 5Å a mais comumente empregada.

Neste trabalho, zeólitos do tipo 13X foram usados como armadilha para o CO_2 no painel de amostragem de ^{14}C da unidade I e II da CNAAA. O painel da unidade I foi construído especialmente para esta investigação. Teve como modelo o painel da unidade II da CNAAA e recomendações do Dr. Kurt Vogl, especialista em análises do isótopo ^{14}C e funcionário do *Federal Office of Radioprotection*, órgão do governo alemão responsável pela fiscalização nuclear.

Para Angra I, essas são as primeiras determinações dos níveis de ^{14}C liberados pela planta. Já Angra II possui medidas desde o início de sua operação (2001), pois a monitoração do ^{14}C foi inclusa como uma das atividades rotineiras da usina.

Os painéis têm basicamente o mesmo princípio de funcionamento. Em resumo, os gases da chaminé são puxados por uma bomba para o interior do painel. Antes da entrada no mesmo, o fluxo passa por um filtro de particulado. No interior do painel, após ajustes na vazão, que deve ser bem baixa para a maior eficiência do processo de adsorção, há a redução

dos hidrocarbonetos em CO₂ por meio do uso de catalisador de Pt/Al (mantido a 450°C), pois a peneira molecular não funciona como filtro para hidrocarbonetos. Após o processo de redução, o fluxo segue para o cilindro contendo a peneira e retorna à chaminé.

O painel de Angra I diferencia-se do de Angra II por conter um cilindro adicional para medidas exclusivas da forma química ¹⁴CO₂. Leitos de sílica gel são utilizados para retirar a umidade do fluxo uma vez que ambos os compostos, água e gás carbônico, são adsorvidos pelos zeólitos

Para controle da pressão foi utilizado válvula reguladora de pressão, vacuômetro e pressostato (-1 a 0 bar). O tempo foi medido por um totalizador de horas. Todos os componentes descritos estão posicionados dentro de painel de material e dimensões apropriados para tal.

As amostras foram coletadas a cada 15 dias durante nove meses. Ao final de cada quinzena, procedia-se a regeneração da peneira molecular, contida nos dois cilindros, no laboratório de química da unidade II da CNAEA. A amostragem teve início na semana de 16/06/2005.

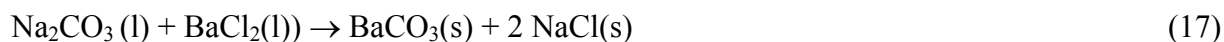
6.2.2 Ar atmosférico

Como o CO₂ está fortemente diluído na atmosfera, deve-se adotar um método para seu enriquecimento na amostragem.

Existem vários procedimentos e esses se diferenciam em reativos e não reativos (Stork *et al.*, 1997). Nesta pesquisa, para as amostras ambientais, utilizou-se o processo reativo duplo alcalino, que consiste em borbulhar o CO₂ atmosférico, inicialmente, numa solução de NaOH segundo a reação:



Depois, precipitou-se o CO₂ adicionando-se Ba(OH)₂ ou BaCl₂, conforme reação:



No processo alcalino direto, o CO₂ é borbulhado diretamente na solução de Ba(OH)₂ formando BaCO₃ conforme a reação:



Como a formação de precipitado pode provocar o entupimento do sistema de vidraria (fritas) necessário à coleta do CO_2 , optou-se pelo processo alcalino duplo que elimina esse problema.

O sucesso dos métodos reativos está em promover reações completas do CO_2 com solução alcalina mantendo uma baixa vazão no sistema de amostragem. Aumentos de vazão de 0,5 l/min a 2,75 l/min reduzem a eficiência de amostragem de 90 % para 50 % quando se utiliza uma solução 5 N de NaOH, por exemplo (Stork *et al.*, 1997).

A desvantagem consiste no preparo da amostra que é complicado e demanda tempo. Isso por que é necessário precipitar o carbonato na solução, centrifugá-lo, secá-lo e levá-lo a peso constante.

A escolha das soluções alcalinas foi baseada na facilidade para aquisição das mesmas (baixo custo) e no uso difundido deste procedimento em muitos países que, frequentemente, realizam a monitoração do radioisótopo (Levin *et al.*, 1980, Rozanski *et al.*, 1995, e Woo *et al.*, 1999b).

As amostragens foram semanais e ocorreram nos meses de abril e novembro de 2002, setembro, outubro e novembro de 2004 e maio e junho de 2005. Cinco pontos, a diferentes distâncias da usina, foram escolhidos por situarem-se próximo à CNAAA e na direção preferencial dos ventos. Esses pontos são os mesmos utilizados pelos operadores em seus programas de monitoração ambiental por serem estratégicos para avaliação do impacto devido à operação da usina.

O sistema é composto por uma bomba do tipo American Universal (catálogo nº. 224-44XR) da SKC Inc. acoplada a um vidro borbulhador de 700ml. O ar é bombeado para o vidro borbulhador, que contém 400 ml de solução saturada de NaOH (3M), numa vazão média de 1,0 l/min.

As soluções de NaOH borbulhadas com ar atmosférico foram armazenadas em frascos de polietileno e posteriormente, ao final da semana, levadas ao laboratório do Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD), pertencente à Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN), localizado no Rio de Janeiro.

Aos frascos contendo Na_2CO_3 adicionou-se solução de BaCl_2 (20 %) para precipitação do composto BaCO_3 , segundo a reação (18).

Esse precipitado foi centrifugado e lavado por três vezes, para retirar o sal formado na reação, as impurezas ou o trício presente, e levado a peso constante a 60°C.

6.2.3 Vegetação

Gramíneas do gênero *Panicum* foram coletadas a diferentes distâncias da Central. Essas plantas foram escolhidas por encontrarem-se largamente distribuídas na região, sendo representativas do local estudado. Delimitou-se uma área de aproximadamente 60 cm², em cada ponto de amostragem, onde todos os indivíduos, no seu estágio adulto, foram coletados. Apenas as lâminas foliares foram utilizadas para as determinações das atividades específicas do ¹⁴C (as raízes foram desprezadas). As amostras foram lavadas com água destilada e secas em estufa a 60°C por três dias. Com uso de tesouras, foram cortadas em pedaços bem pequenos para combustão no sistema de preparo das amostras (grafitização).

6.2.4 Solos

A região estudada apresenta paisagem com relevo bastante acidentado e a CNAAA encontra-se ao nível do mar circundada ao norte por montanhas e ao sul pelo Oceano Atlântico. Os pontos escolhidos para amostragem dos solos foram em toposequências representativas da paisagem local.

Duas toposequências foram escolhidas sendo uma a, aproximadamente, 400 m e a outra a 50 km de distância da central nuclear (área de reserva indígena usada como testemunha, localizada na região de Parati-Mirim). Ambas com altura de 80 m, em relação ao nível do mar, a partir do ponto mais alto de coleta.

Amostras foram coletadas ao longo da toposequência: platô, meio e base da montanha pois, teoricamente, há diferença entre os solos do platô e os das porções mais baixas, apontada pela mudança de vegetação.

Em cada ponto foram abertas três minitrincheiras de 20 x 20 x 20 cm, com distância de 5 m entre si.

Aproximadamente 500 g de solo foram amostradas nos seguintes intervalos de profundidade: 0-5, 5-10 e 10-20 cm. As escalas de profundidade baseiam-se em resultados de outros trabalhos que indicam que o ¹⁴C de *fallout*, em solos pouco perturbados, concentra-se nos primeiros 10 cm de profundidade, e, dificilmente, alcança camadas além dos 60 cm (Guo *et al.*, 2003, Milton *et al.*, 2001).

A serrapilheira também foi amostrada. Uma área de aproximadamente 60 cm² foi delimitada, em cada nível de cada toposequência, onde todas as folhas secas, livres de resíduo de solo, foram coletadas.

Para avaliação da perturbação de solos, utilizou-se medidas de ^{137}Cs . Foram coletados 300 gramas de solo nos mesmos pontos de amostragem acima relacionados. Os solos (300g) foram encerrados num recipiente de plástico com diâmetro de 13 cm. A geometria de contagem foi mantida para todas as amostras.

6.3 PREPARO DAS AMOSTRAS

6.3.1 Efluentes gasosos

O sistema de regeneração da peneira molecular para liberação do CO_2 é composto por:

- a) cilindro de nitrogênio;
- b) redutor de pressão;
- c) fluxômetro;
- d) recipiente com peneira molecular;
- e) forno de regeneração;
- f) condensador;
- g) frasco de Friedrichs com solução saturada de $\text{Ba}(\text{OH})_2$.

Inicialmente, o sistema foi purgado com nitrogênio, durante 30 minutos, para evitar contaminação com o CO_2 atmosférico e permitir uma leitura no fluxômetro de 100 ml/min, antes de ligar o forno de regeneração e o condensador.

O tubo de Friedrichs foi preenchido com 300 ml de água desmineralizada, pesado e, depois, encaixado ao sistema. O refrigerador, então, foi ligado.

Quando a temperatura do banho condensador atingiu $0,5^\circ\text{C}$, a água do frasco de Friedrichs foi substituída por 300 ml da solução de $\text{Ba}(\text{OH})_2$, filtrada, e o frasco foi tampado. A solução de $\text{Ba}(\text{OH})_2$ foi preparada com antecedência de pelo menos um dia e guardada em geladeira (solução saturada contendo 16 g de hidróxido de bário misturado a 400 ml de água desmineralizada, para eliminação do CO_2 dissolvido).

O forno de regeneração foi ligado e a temperatura ajustada para 380°C . Aproximadamente quatro horas são necessárias para que haja a reação total do gás carbônico com hidróxido de bário para formação do carbonato de bário. Ao final deste tempo, o cilindro de nitrogênio e as outras torneiras remanescentes foram fechadas.

A solução contendo carbonato de bário foi transferida para um becher de 1000 ml e foi filtrada (filtro de 150 mm).

O precipitado obtido foi seco em estufa por 24 horas à 50°C e pesado depois de frio.

6.3.2 Ar atmosférico

São necessárias 5 mg de carbono elementar para as leituras no sistema AMS. Portanto, a partir da massa atômica do BaCO₃ (197,33) calculou-se a quantidade de massa da amostra necessária ao ataque ácido no sistema de preparo.

Para iniciar, preparou-se os frascos de quartzo com duas “pernas” colocando-se um tubo de quartzo 8 mm contendo catalisador - poucos miligramas de pó do metal ferro (99,9 %) 325 mesh - em um tubo de quartzo (8 mm) no interior das “pernas” horizontais e encaixando-as ao subsistema (2). Em seguida, estas “pernas” foram envoltas pelos fornos, mantidos a 650°C, e o subsistema foi evacuado com a abertura das válvulas V5, V6, V7 e V8 (a, b, c). Após cinco minutos, fechou-se a V5 e abriu-se a V4, liberando-se gás hidrogênio para limpeza do subsistema (2). Repetiu-se este processo por duas vezes e fechou-se a V8 (a, b, c).

Com as V2 e V3 fechadas, encaixou-se o frasco com três “pernas” ao subsistema (1) com aproximadamente 80 gramas de BaCO₃ numa das “pernas” e, na outra, o ácido fosfórico (aproximadamente 10 ml de H₃PO₄, 90 %). Abriu-se a V3 e V2 para evacuação, agora, do subsistema (1). Após cinco minutos, as válvulas V2, V3, V5 e V7 foram fechadas e as armadilhas A2 (etanol) e A3 (nitrogênio líquido) colocadas. Em seguida, verteu-se lentamente o ácido sobre as amostras. O CO₂ foi liberado conforme a reação:



Após a formação do CO₂ (e pressão marcada no P1), a V2 foi aberta e o gás transferido para a armadilha A2. Em seguida, abriu-se a V3 e o gás foi transferido para a armadilha A3, onde foi congelado. Após alguns minutos, removeu-se o nitrogênio líquido e, após a evaporação do gás, a pressão foi marcada (pressostato tipo Bourdon, -1,0 a 1,5 bar).

Marcada a pressão, o CO₂ foi liberado com a abertura das V7 e V8 (a) e congelado na armadilha A4. Com o gás congelado e a V5 fechada, liberou-se o hidrogênio com abertura da V4. Para o sucesso da reação é necessário ter três vezes mais hidrogênio do que CO₂ na “perna” horizontal, que contém o catalisador de Fe. Fechou-se, em seguida, as V8 (a) e V4, o nitrogênio líquido foi removido e a pressão foi marcada por pressostato 2 (P2).

Para a segunda e terceira amostras, como o subsistema (2) já estava com os frascos preparados e encaixados, trocou-se apenas o frasco de três “pernas” do subsistema (1) por outro contendo nova amostra, evacuou-se sistema, mantendo fechadas as V8 (a, b e c), por 10 minutos e repetiu-se o procedimento descrito anteriormente.

Para as amostras de vegetação, solos e serrapilheira, o processo foi o mesmo. A diferença consistiu na liberação do CO_2 , que foi feita por combustão na presença de um agente oxidante, e nas quantidades de amostra, conforme descrito a seguir.

6.3.3 Vegetação

Colocou-se dentro de um tubo de ensaio de quartzo 20 mg de gramíneas (apenas a lâmina foliar) e 200 mg CuO (oxidante), seguido por uma pequena quantidade de lã de quartzo (Figura 20). Para atingir 100 % no processo de combustão, as gramíneas foram bem misturadas ao agente oxidante.



Figura 21- Desenho esquemático do tubo de ensaio contendo amostra utilizado no processo de combustão das gramíneas.

Com o subsistema (2) preparado, encaixou-se o tubo ao subsistema (1) e evacuou-se o sistema. Após fechamento das válvulas V2, V3, V5 e V7 e iniciou-se o aquecimento do tubo contendo amostra com uso de chama. O aquecimento (aproximadamente 3 minutos) se deu do meio para o final do tubo para evitar a rápida formação de grandes quantidades de CO_2 , podendo provocar entrada do material no interior do sistema. As impurezas podem reduzir a velocidade da reação no processo de redução ou até mesmo impedir o sucesso da grafitização.

6.3.4 Solos

No laboratório, os solos foram secos ao ar por aproximadamente 24 horas.

Depois de secos, foram destorreados, peneirados abaixo de 2 mm e quarteados várias vezes. Procedeu-se então a retirada de raízes, pelo método da catação, nas subamostras finais, com aproximadamente 15 g, para, finalmente, serem moídas em gral de porcelana. Após moagem, foram secas a 60°C por 24 horas.

As quantidades de solo utilizadas na grafitação foram calculadas com base no teor de carbono contido em cada camada amostrada. Estima-se que no total os solos contenham entre 5 até 0,5 % de carbono. O teor mais elevado pode ser encontrado nas amostras coletadas entre 0-5 cm de profundidade nos solos mais argilosos e o teor mais baixo entre 10-20 cm nos solos com menos argila.

Portanto, utilizou-se 200 mg para os solos da superfície, 250 mg para os solos coletados entre 10-20 cm e 300 mg para os solos mais profundos. A quantidade de CuO foi aproximadamente o dobro do que foi usado para as plantas (400 mg). O tempo de combustão variou entre 15 e 20 minutos por amostra.

Medidas de ^{137}Cs

Após desagregar torrões e retirar restos de raízes e de vegetação, os solos coletados foram transferidos para os recipientes plásticos. O equipamento utilizado foi um detector gama de germânio (Camberra, modelo GX2518). Cada amostra foi medida por aproximadamente 15 horas.

7 RESUMOS DOS ARTIGOS

7.1 ARTIGO I - DETERMINATION OF ^{14}C IN GASEOUS EFFLUENTS OF BRAZILIAN NUCLEAR POWER PLANTS

^{14}C é liberado por usinas nucleares durante seu funcionamento. A produção ocorre pela reação, principalmente, de ^{17}O e ^{14}N com nêutrons originários da fissão. Em PWRs os átomos de ^{17}O e ^{14}N (este último como impureza) estão presentes no combustível e refrigerante contido, apenas o ^{14}C formado no refrigerante é emitido pelas usinas. As principais emissões são atmosféricas, *via* efluentes gasosos. As formas químicas podem ser hidrocarbonetos, CO e CO₂, sendo os hidrocarbonetos a maior fração liberada em PWRs. A Central Nuclear Almirante Álvaro Alberto (CNAAA) possui duas usinas em operação e uma ainda em construção. Todas as plantas, Angra I (637 MW), Angra II (1350 MW) e Angra III (1350 MW), são do tipo PWR. Para a monitoração dos efluentes gasosos em Angra I, um sistema de amostragem foi especialmente desenvolvido onde tanto a fração hidrocarboneto como a de $^{14}\text{CO}_2$ foram monitoradas. Em Angra II, o sistema de amostragem funciona desde o início de sua operação (2001), fazendo parte dos procedimentos de rotina da planta. O sistema de Angra II, entretanto, não discrimina as frações liberadas. As medidas representam o ^{14}C

total emitido. O método da cintilação em meio líquido foi utilizado para as medidas das amostras

Devido a problemas de procedimento não foi possível determinar o ^{14}C total em Angra I. Com relação ao $^{14}\text{CO}_2$, o resultado encontrado (14 Bq/m^3) foi semelhante ao já reportado para uma usina tipo PWR na Alemanha (12 Bq/m^3), de fabricação Westinghouse. Para Angra II, os valores normalizados foram de 0,01, 0,11, 0,16 e 0,29 TBq/GW ano^{-1} , em 2001, 2002, 2003 e 2004, respectivamente. Apenas em 2004, o valor foi similar à média da concentração medida em 1999, para usinas alemãs (também do tipo PWR) que foi de 0,28 TBq/GW ano^{-1} . Se a média de 0,14 TBq/GW ano^{-1} for considerada, a concentração liberada em Angra é duas vezes menor do que a média alemã, mas está dentro dos valores esperados para usinas do tipo PWR que é de 0,11-0,22 TBq/GW ano^{-1} .

7.2 ARTIGO II - $^{14}\text{CO}_2$ ATMOSPHERIC DISPERSION AROUND TWO PWR NUCLEAR POWER PLANTS IN BRAZIL

Amostras de ar atmosférico foram coletadas nas vizinhanças da Central Nuclear Almirante Álvaro Alberto (CNAAA), durante os anos de 2002, 2004 e 2005, para investigação dos níveis ambientais de ^{14}C antropogênico na região. Cinco pontos, em diferentes direções do vento e distâncias (até 3 km dos reatores), foram selecionados para o estudo. Na amostragem, utilizou-se uma bomba de ar acoplada a um vidro borbulhador contendo uma solução de NaOH. Posteriormente, à solução borbulhada com CO_2 atmosférico adicionou-se BaCl_2 para precipitação do BaCO_3 . As medidas de atividade das amostras de BaCO_3 foram realizadas pelo sistema de espectrometria de massa com aceleração, localizado no Laboratório de Datação Radiocarbônica do Departamento de Geologia da Universidade de Lund, na Suécia. Em todos os pontos foram encontrados importantes excessos. O máximo valor medido foi de 15 mBq/m^3 e as médias, para os anos de 2002, 2003 e 2004, em cada ponto, foram de 12 (local mais próximo às usinas), 8 mBq/m^3 , 10 mBq/m^3 , 8 mBq/m^3 e 7 mBq/m^3 (este último, local mais distante da Central). Os excessos são maiores do que os já reportados na literatura, considerando emissões de usinas do tipo LWR (médias não ultrapassam 3 mBq/m^3). As liberações de Angra I e Angra II parecem não ser a causa desses valores uma vez que encontram-se dentro dos valores esperados. A topografia, no entanto, poderia explicar as atividades medidas. Os pontos amostrados encontram-se em terrenos elevados, interceptando a pluma antes do transporte e conseqüente diluição no ambiente. Além disso, as montanhas que circundam a Central não favorecem a rápida dispersão do

radionuclídeo provocando um maior acúmulo na região do estudo. Apesar das concentrações medidas estarem acima do que o reportado na literatura, a contribuição para a dose anual efetiva da população representa apenas 0,7 % (0,07 $\mu\text{Sv}/\text{ano}$) da dose total provocada pelo ^{14}C natural (que é de 10 $\mu\text{Sv}/\text{ano}$). A distribuição do ^{14}C não segue um padrão Gaussiano. As concentrações medidas e teóricas (calculadas com emprego de parâmetros Gaussianos) não são similares. Para a vegetação, no entanto, observou-se o modelo Gaussiano de dispersão. O equilíbrio entre as concentrações de ar e vegetação foi observado apenas nas amostras coletadas a NE das usinas.

7.3 ARTIGO III - ^{14}C CONTENT IN VEGETATION IN THE VICINITIES OF BRAZILIAN NUCLEAR POWER PLANTS

Gramíneas do gênero *Panicum* foram coletadas até cinco km de distância da Central Nuclear Almirante Álvaro Alberto (CNAAA) em diferentes direções do vento, nos anos de 2004 e 2005. As medidas foram realizadas com o emprego do sistema de espectrometria de massa com aceleração (SSAMS), localizado no Laboratório de Datação Radiocarbônica do Departamento de Geologia da Universidade de Lund, na Suécia. No total, 20 amostras foram analisadas. Com relação ao background metade das amostras apresentou excessos que variaram de 1 a 18 %. O máximo valor encontrado foi de 299 Bq/kgC e o mínimo de 227 Bq/kgC. Os maiores excessos ocorreram em amostras coletadas próximas à CNAAA e ao longo da direção preferencial dos ventos (NE e NNE), diminuindo, então, com o aumento da distância, seguindo o modelo Gaussiano de dispersão. Duas amostras apresentaram níveis anormalmente altos quando se considera liberações de usinas do tipo PWR (20 % maiores do que o *background*). Esses reatores são os que emitem menos ^{14}C e, predominantemente, como hidrocarbonetos, forma química não prontamente disponível para incorporação nos tecidos vegetais por meio da fotossíntese. As montanhas que circundam a CNAAA favorecem o acúmulo de ^{14}C na região de estudo pois, funcionam como barreiras à rápida dispersão do radionuclídeo, podendo justificar os altos excessos encontrados. Parece, portanto, que a topografia exerce papel importante na dispersão do ^{14}C no local amostrado.

7.4 ARTIGO IV - ^{14}C , $\delta^{13}\text{C}$ AND TOTAL CARBON CONTENT IN SOILS AROUND TWO BRAZILIAN PWR NUCLEAR POWER PLANTS AND IN A REFERENCE AREA, 50 KM FAR FROM REACTORS SITE

Há poucos estudos sobre teor de ^{14}C antropogênico em solos de regiões vizinhas a centrais nucleares. Neste trabalho, amostras de solo foram coletadas numa região próxima à

Central Nuclear Almirante Álvaro Alberto (CNAAA) (aproximadamente um km) com objetivo de se avaliar o acúmulo de ^{14}C liberado pelas usinas nucleares. Solos coletados a 50 km de distância, fora da área de influência dos reatores, foram utilizados como referência.

Análises da composição isotópica dos solos ($\delta^{13}\text{C}$), carbono total e ^{137}Cs também foram feitas. Para medidas de ^{14}C foi utilizado o sistema de espectrometria de massa com aceleração (SSAMS), pertencente ao Laboratório de Datação Radiocarbônica do Departamento de Geologia da Universidade de Lund, em Lund, na Suécia. As análises de carbono total e composição isotópica foram realizadas por um analisador elementar acoplado a um espectrômetro de massa tradicional, no Iso-analytical Laboratory, localizado na cidade de Cheshire, na Inglaterra. As amostras de ^{137}Cs foram contadas por um detetor de germânio, na Comissão Nacional de Energia Nuclear, na unidade de Goiânia, estado de Goiás.

A concentração do carbono total, em todos os solos amostrados, diminuiu com o aumento da profundidade, conforme esperado. Os valores de $\delta^{13}\text{C}$ apresentaram uma tendência para enriquecimento de ^{13}C em profundidade. As concentrações de ^{14}C nas duas áreas amostradas foram similares, não havendo, portanto, acúmulo do radionuclídeo de origem antropogênica apesar das amostras de serrapilheira coletadas próximo à usina terem apresentado teor de ^{14}C acima dos níveis naturais.

7.5 CARBON-14 LEVELS IN THE VICINITY OF THE LITHUANIAN NUCLEAR POWER PLANT IGNALINA

Com objetivo de investigar os níveis de ^{14}C nas vizinhanças da usina nuclear Ignalina, situada na Lituania, aproximadamente 70 amostras, que incluíram gramíneas, folhas, solos, plantas aquáticas e musgos, foram coletadas durante os anos de 2001 e 2004. O reator nuclear é do tipo RBMK (projeto russo) - moderado a grafite - com $1500 \text{ MW}_{\text{el}}$ de potência. As medidas de ^{14}C foram realizadas pelo sistema de espectrometria de massa com aceleração (tanto pelo sistema AMS quanto pelo SSAMS). As maiores atividades específicas foram encontradas nos musgos e solos, indicando a possibilidade de liberação de material particulado.

8 CONCLUSÕES FINAIS E RECOMENDAÇÕES

O painel de amostragem utilizado para determinação do ^{14}C nos efluentes gasosos em Angra I foi construído exclusivamente para a realização deste trabalho. No planejamento das suas funções, fixou-se o período de monitoração em uma semana. Por questões de ordem operacional na usina, este período estendeu-se para duas semanas, o que sobrecarregou os leitos de sílica gel permitindo a entrada de água no sistema. A água, por competir com o CO_2 no processo de adsorção pelos zeólitos, reduz a eficiência da amostragem, resultando em baixos volumes amostrados.

Mas, mesmo com esses baixos volumes, foi possível acessar as concentrações do ^{14}C na forma química $^{14}\text{CO}_2$, durante os nove meses de amostragem. Os resultados obtidos variaram entre 6,65 a 25,08 Bq/m^3 com uma média de 14 Bq/m^3 . Conforme literatura, esses valores estão de acordo com a média esperada para usinas do tipo PWR. Como exemplo, na Alemanha, um valor similar, de 12 Bq/m^3 , já foi registrado em Obrigheim (300 MW), uma usina de fabricação Westinghouse do tipo PWR. Na Suécia, uma média de 24 Bq/m^3 foi medida para uma usina PWR, com 915 MW de potência (essa média não considera as medidas realizadas na época de manutenção, quando espera-se que usinas do tipo PWR emitam o ^{14}C predominantemente na forma de $^{14}\text{CO}_2$). Para o ^{14}C total (hidrocarbonetos + CO_2), no entanto, não foi possível determinar as atividades liberadas.

Após ajustes no procedimento, o painel foi posto em operação durante o período de manutenção da usina (maio/2006), quando, conforme experiência internacional, ocorrem as maiores liberações de ^{14}C . As amostras coletadas ainda estão em fase de análise.

Para Angra II, os valores normalizados (monitorações são realizadas por um período de um ano) foram de 0,01, 0,11, 0,16 e 0,29 TBq/GW ano^{-1} nos anos de 2001, 2002, 2003 e 2004, respectivamente. O valor máximo de 0,29 TBq/GW ano^{-1} , registrado em 2004, é similar à média das usinas PWR alemãs, 0,28 TBq/GW ano^{-1} (para o ano de 1999). Com relação à média em Angra II, de 0,14 TBq/GW ano^{-1} , constata-se que é duas vezes menor do que a média alemã, mas está dentro do intervalo esperado para liberações de usinas do tipo PWR que é de 0,11-0,22 TBq/GW ano^{-1} .

Portanto, com relação aos termos fontes, conclui-se que as concentrações emitidas são comparáveis à de outras usinas do tipo PWR no mundo. A monitoração do ^{14}C em Angra II é permanente, pois faz parte das práticas de rotina da usina. No entanto, em Angra I, a operação do painel ficou condicionada ao período de duração deste estudo. Para efeito de controle das emissões, recomenda-se dar continuidade ao trabalho de medidas até por que

Angra I, sendo uma usina de projeto mais antigo, tende a liberar mais ^{14}C quando comparada a unidades mais modernas.

Os resultados das amostragens de ar atmosférico até 3 km das usinas mostraram um valor para ^{14}C maior do que os reportados na literatura, considerando usinas do tipo PWR. Enquanto as médias normalmente encontradas estão na faixa de 1 a 3 mBq/m^3 , a média máxima medida neste estudo foi de 12 mBq/m^3 . É importante ressaltar que a contribuição deste valor à dose de radiação na população local não é significativa sob o ponto de vista radiológico. Os cálculos indicam uma dose efetiva de 0,07 $\mu\text{Sv/ano}$, o que representa 0,7 % da dose provocada pelo ^{14}C natural, que é de 10 $\mu\text{Sv/ano}$. Além disso, o valor de dose para grupos críticos por instalação nuclear, fixado por norma da Comissão Nacional de Energia Nuclear, é de 0,3 mSv/ano , portanto, 0,6 mSv/ano considerando as duas usinas, ou seja, a dose admitida é mil vezes maior do que aquela provocada pelo adicional de ^{14}C antropogênico medido na região.

Uma vez que as emissões de Angra I e II estão dentro das médias esperadas para plantas nucleares do tipo PWR, as condições de dispersão atmosférica, muito influenciadas pela topografia local, podem justificar os aumentos encontrados. As altas montanhas que circundam a central funcionam como barreiras para o transporte e difusão da pluma favorecendo o acúmulo do ^{14}C na região amostrada. De fato, de acordo com estudos de dispersão atmosférica realizados previamente nas vizinhanças das usinas, os fatores de dispersão mais restritivos encontram-se até 2-3 km de distância da usina, exatamente na área investigada neste estudo. Além disso, a localização estratégica dos pontos de amostragem (terrenos altos, aproximadamente, no mesmo nível dos pontos de emissão) favorece a interceptação da pluma pelos sistemas de amostragem de ar antes que sua concentração seja diluída no caminho para baixo.

O radionuclídeo não apresentou dispersão conforme o modelo Gaussiano, apesar das simulações realizadas por meio de um código de computador, utilizando os dados de vento das semanas amostradas, terem apresentado um padrão Gaussiano de dispersão atmosférica no local. O período estabelecido para amostragem, que foi de uma semana, possivelmente não foi suficiente para observar qualquer tendência. Isso por que, durante a semana, os ventos podem ser muito variáveis aumentando as chances de se detectar o sinal de ^{14}C nos locais amostrados.

Para a vegetação, em geral, os valores encontrados foram similares aos já reportados na literatura. Os aumentos importantes ocorreram apenas em duas amostras (dentre

20 analisadas), coletadas a 500 m das usinas. Ao contrário do que ocorreu com as amostras de ar atmosférico, o padrão de distribuição do ^{14}C nas plantas seguiu o modelo Gaussiano com as maiores atividades específicas medidas próximas à Central, diminuindo conforme o aumento da distância. Talvez, por serem as plantas amostras integradas, isto é, representam as atividades ao longo do tempo, tenha sido possível observar o padrão Gaussiano indicado nas simulações do modelo de computador empregado neste estudo.

As amostras de plantas que apresentaram os maiores aumentos (citadas acima) foram coletadas no mesmo local onde foi medida a maior média da concentração de ^{14}C no ar atmosférico, sendo possível observar o equilíbrio, preconizado na literatura, entre as concentrações do ar atmosférico e das plantas. Este ponto de amostragem situa-se a nordeste da usina que, conforme pesquisa prévia no local, é um dos setores de vento com maior probabilidade de sofrer algum impacto devido à operação das usinas por apresentar os fatores de dispersão menos favoráveis.

Para os solos, apesar da serrapilheira acusar pequeno aumento de ^{14}C , não se observou acúmulo do radionuclídeo nas proximidades da usina. Os valores encontrados foram semelhantes aos valores medidos nos solos testemunhas.

Com os resultados desta pesquisa pode-se concluir que, nas vizinhanças imediatas da Central, existe um pequeno, porém distinto, enriquecimento de ^{14}C antropogênico, especialmente no setor a nordeste das usinas. O sinal mais significativo do radionuclídeo está presente nas amostras de ar atmosférico, torna-se mais fraco na vegetação e imperceptível nos solos. Sob o ponto de vista do impacto radiológico, os aumentos encontrados não contribuem de forma significativa para o crescimento da dose efetiva da população local.

A continuidade das determinações das concentrações de ^{14}C liberadas pelas usinas nucleares é importante não apenas para o controle das emissões, mas também para detectar distorções em algumas práticas efetuadas pelos operadores. Com relação ao meio ambiente, diante dos resultados obtidos, não se justifica manter um programa sistemático de amostragem. No entanto, seria interessante analisar, esporadicamente, amostras em organismos terrestres coletados, principalmente, a nordeste da usina. Recomenda-se também análise dos efluentes líquidos, apesar das liberações de ^{14}C , conforme literatura, não excederem 5 %.

Para o futuro, sugere-se dar início à investigação das resinas trocadoras utilizadas nos sistemas de tratamento de água conectados aos reatores. As resinas são polímeros carregados positiva ou negativamente que funcionam como armadilhas para remoção dos

produtos de ativação e corrosão produzidos pela fissão nuclear. No processo de purificação da água, qualquer espécie iônica contendo ^{14}C (como por exemplo, $\text{H}^{14}\text{CO}_3^-$ ou $^{14}\text{CO}_2^{3-}$) será removida pelas resinas onde se acumulará. Quantificar este acúmulo é essencial para planejar o gerenciamento do rejeito que será gerado, uma vez que a meia-vida do ^{14}C é de 5730 anos.

9 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

ADVISORY COMMITTEE ON RADIOLOGICAL PROTECTION. **The management of carbon-14 in Canadian nuclear facilities**. ACRP-14. Ottawa, 1995. 50p. Relatório Técnico.

AMIRO, B. D. **Some simplified radiological dose estimates using isotopic dilution in the biosphere for the disposal of Canada's nuclear fuel waste**. Atomic Energy of Canada- NT-693, COG, 95-286. Chalk River, Ontario, 1995. Nota Técnica.

AQUILONIUS, K. e HALLBERG, B. Process-oriented dose assessment model for ^{14}C due to releases during normal operation of a nuclear power plant. **Journal of Environmental Radioactivity**, 82, p. 267-283, 2005.

ATHFIELD, B. N. e SPARKS, R. J. Bomb carbon as a tracer of dietary carbon sources in omnivorous mammals. **Radiocarbon**, vol. 43, nr 2B, p. 711-721, 2001.

BAXTER, M. S.; McCARTNEY, M.; McMAY, K. e SCOTT, E. M. Artificial carbon-14 in the terrestrial biosphere. In: SECOND IAEA RESEARCH COORDINATION MEETING ON "CARBON-14 FROM NUCLEAR FACILITIES". Bombay, India, 1984.

BENNET, C. L.; BEUKENS, R. P.; CLOVER, M. R.; GOVE, H. E.; LIEBERT, R. B.; LITHERLAND, A. E.; PURSER, K. H e SONDEIN, W. E. Science, 198, p.508, 1977. In: STENSTRÖM, K. **New applications of ^{14}C measurements at the Lund AMS facility**. Lund, 1995a. 167 f. Tese de Doutorado. Universidade de Lund.

BEUKENS, R. P. e LEE, H. W. Proc. Symp. on AMS. Argone (1981) p.416. In: STENSTRÖM, K. **New applications of ^{14}C measurements at the Lund AMS facility**. Lund, 1995a. 167 f. Tese de Doutorado. Universidade de Lund.

BOL, R. A. e HARKNESS, D. D. The use of zeolite molecular sieves for trapping low concentrations of CO_2 from environmental atmospheres. **Radiocarbon**, vol. 37, n. 2, p. 643-647, 1995.

BOLLENBACHER, A. F.; GUENTHER, P. R.; KEELING, C. D.; STEWART, E. F.; WAHLEN, M. e WHORF, T. P. 2002. Calibration methodology for the Scripps $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ and $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ stable isotope program, 1992-1996, 143 p. In: www.cdiac.ornl.gov/trends/CO2/isosio/calmeth92-1996.pdf. Acessado em agosto/2005.

BONANI, G., BALZER, R., HOFMAN, H.J., MORENZONI, E., NESSI, M., SUTER, M. e WÖLFLI, W. Nuclear Instruments and Methods B5 (1984)284. In: STENSTRÖM, K. **New applications of ^{14}C measurements at the Lund AMS facility**. Lund, 1995a. 167 f. Tese de Doutorado. Universidade de Lund.

BUSH, R. P.; WHITE, I. F. e SMITH, G. H. 1983. Carbon-14 waste management. AERE-R10543. In: BUZINNY, M.; KOVALYUKH, N.; LIKHTARJOV, I.; LOS, I.; NESVETAJLO, V.; PAZDUR, M. F.; SKRIPKIN, V.; SHKVORETS, O. e SOBOTOVICH,

E. Ecological chronology of nuclear fuel cycle sites. **Radiocarbon**, vol.37, n. 2, p. 469-473, 1995.

BUZINNY, M.; KOVALYUKH, N.; LIKHTARJOV, I.; LOS, I.; NESVETAJLO, V.; PAZDUR, M. F.; SKRIPKIN, V.; SHKVORETS, O. e SOBOTOVICH, E. Ecological chronology of nuclear fuel cycle sites. **Radiocarbon**, vol.37, n. 2, p. 469-473, 1995.

BUZINNY, M.; LIKHTAREV I.; LOS, I.; TALERKO, N. e TSIGANKOV, N. ^{14}C analyses of annual tree rings from the vicinity of the Chernobyl npp. **Radiocarbon**, vol. 40, n. 1, p. 373-379, 1998.

COHEN, K. P. Issues affecting nuclear power in the nest century. **Nuclear Energy**, 40, n. 3, p. 159-161, 2001.

DUBOURG, M. The carbon 14 cycle. In: Technologies for Gas Cooled Reactor Decommissioning, Fuel Storage and Waste Disposal. PROCEEDINGS OF A TECHNICAL COMMITTEE MEETING. IAEA-TECDOC-1043, 1998.

EISMA, R.; VERMEULEN, A.T. e VAN DER BORG, K. $^{14}\text{CH}_4$ emissions from nuclear power plants in northwestern Europe. **Radiocarbon**, vol. 37, n. 2, p. 475-483, 1995.

EKDAL, C. A.; KEELING, C. D. Atmospheric carbon dioxide and radiocarbon in the natural carbon cycle I: Quantitative deductions from records at Mauna Loa Observatory and at the South Pole. In: WOODWELL, G.M.e PECAN, E.V. (Eds.). **CO₂ production from fossil fuel combustion and kilning of limestone**. Upton, N.Y. (USA): Brookhaven National Lab. Carbon and the biosphere. Carbon and the biosphere conference. Upton, New York, USA. 16 May 1972. Aug 1973. p. 51-85.

ERLANDSON, B.; HELLBORG, R.; HAKANSSON, K.; SKOG, G. e BJURMAN, B. Measurements of ^{14}C from nuclear power plants with the AMS technique. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B68**, p. 309-312, 1992.

ESTADO DO RIO DE JANEIRO. Disponível em www.governo.rj.gov.br/municipal.asp. Acesso em 10/03/2004.

FIFIELD, L. K. Accelerator mass spectrometry and its applications. **Rep. Prog.Phys**, 62, p. 1223-1274, 1999.

FOWLER, T. W.; CLARK, R. L.; GRUHLKE, J. M. e RUSSEL, J. L. Public health consideration of carbon-14 discharges from the light water cooled nuclear power reactor industry. Washington DC: U.S Environmental Protection Agency, 1976. Technical note In: KUNZ, C. Carbon-14 discharge at three light-water reactors. **Health Physics**, vol. 49, n. 1, p. 25-35, 1985.

FUKUMATSU, T.; MUNAKATA, K.; TANAKA, K.; YAMATSUKI, S. e NISHIKAWA, M. Removal of carbon dioxide in reprocessing spent nuclear fuel off gas by adsorption. **Journal of Chemical Engineering of Japan**, vol. 32, n. 5, p.662-669, 1999.

GOMES, B. M. **Estudo paleoambiental no estado de Rondônia utilizando datação por ^{14}C e razão $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ da matéria orgânica do solo**. Piracicaba, 1995. 106p. Dissertação de Mestrado - Centro de Energia Nuclear na Agricultura (CENA), Universidade de São Paulo.

GOUVEIA, S. E. M. **Estudos das alterações de paleovegetações na Amazônia Central, utilizando a datação radiocarbônica e razão $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ da matéria orgânica do solo**. Piracicaba, 1996. 75p. Dissertação de Mestrado - Centro de Energia Nuclear na Agricultura (CENA), Universidade de São Paulo.

GROOTES, P. M., STUVIR, M., FARWELL, T. P., SCHAAD, T. P. e SCHMIDT, F. H. Radiocarbon 22 (2) (1980) p. 133. In: STENSTRÖM, K. **New applications of ^{14}C measurements at the Lund AMS facility**. Lund, 1995a. 167 f. Tese de Doutorado. Universidade de Lund.

GUERRA, M. L. T. M. **Datação com carbono-14 por cintilação em meio líquido com CO_2 absorvido de material malacológico proveniente de Sambaqui**. Rio de Janeiro, 2002. 143p. Dissertação de Mestrado- Departamento de Química, Pontifícia Universidade Católica.

GUO, J.; HATARASHI-ANDOH, M. e AMANO, H. Variation of ^{14}C , ^{137}Cs and stable carbon composition in forest soil and its implication. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, vol. 255, n. 1, p. 223-229, 2003.

HOLTORP, J. Carbon-14 management: the implementation of stack emissions monitoring at Ontario Hydro Nuclear. In: ANNUAL CONFERENCE OF THE CANADIAN NUCLEAR SOCIETY, 1998, Toronto, p.18-21.

INSTITUTO DE ESTUDOS AVANÇADOS - CENTRO TÉCNICO AEROESPACIAL. **O efeito estufa e outras deteriorações ambientais**. Disponível em www.ieav.cta.br/hpenu/b/yuji/efeito_estufa.html. Acesso em 11/04/2004.

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES. **Centro do Combustível Nuclear**. Disponível em www.ipen.br/ccn. Acesso em 03/03/2004.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY-IAEA. Energy and poverty-the world needs far more electricity to power development, latest global energy study finds. **Bulletim**, 2002.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY-IAEA. **Management of waste containing tritium and carbon-14**. Viena, 2004. 109p. Relatório Técnico nº 421.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY-IAEA. **Nuclear powers reactors in the world**. Viena, 2003. 70 p. Relatório Técnico.

ISOGAI, K.; COOK, G. T. e ANDERSON, R. Reconstructing the history of ^{14}C discharges from Sellafield: Part 1 - atmospheric discharges. **Journal of Environmental Radioactivity** 59, p.207-222, 2002.

JOSHI, M. L.; RAMAMIRTHAN, B. e SOMAN, S. D. Measurement of $^{14}\text{CO}_2$ emission rates from a pressurized heavy water reactor. **Health Physics**, vol. 52, n. 6, p.789-791, 1987.

Jr. DAVIS, W. Carbon-14 productions in nuclear reactors. In: CARTER, M.W., MOGHISSI, A. A. e KAHN, B.(Ed.). **Management of low-level radioactive waste**. vol. 1. Oxford Pergamon Press, 1979. p.151-191.

KALLMAN, H. e ACCARDO, C. A. Coincidence experiments for noise reductions in scintillation counting. Rev.Sci.Inst. 27, 48, 1950. In: KESSLER, M. J. **Liquid scintillation analyses-science and technology**. Packard Instrument Company, 1989.

KEELING, C. D. e WHORF, T. P. Atmospheric CO_2 records from sites in the SIO air sampling network. In Trends: **A Compendium of Data on Global Change**. Carbon Dioxide Information Analysis Center, Oak Ridge National Laboratory, U.S. Department of Energy, Oak Ridge, Tenn., U.S.A., 2004.

KELLY, G. N.; JONES, J. A.; BRYANT, P. M.; HARLEY, P. The predicted radiation exposure of the population of the European Community resulting from discharges of krypton-85, tritium, carbon-14 and iodine-129 from nuclear power industry to the year 2000.

Commission of the European Communities, Luxembourg. DocV/2676/75, 1975. In: SCHWIBACH, J.; RIEDEL, H. e BRETSCHNEIDER, J. **Investigations into the emission of carbon-14 compounds from nuclear facilities.** Luxembourg, 1978, 63 p. Report of Commission of the European Communities.

KESSLER, M. J. **Liquid scintillation analyses-science and technology.** Packard Instrument Company, 1989.

KILLOUGH, G. G. A dynamic model for estimating radiation dose to the world population from releases of ^{14}C to the atmosphere. **Health Physics**, vol. 38, p. 269-300, 1980.

KOVALIUKH, N. e SKRIPKIN, V. V. ^{14}C cycle in the hot zone around Chernobyl. **Radiocarbon**, vol.40, n. 1, p.391-397, 1998.

KUNZ, C. Carbon-14 discharge at three light-water reactors. **Health Physics**, vol. 49, n. 1, p. 25-35, 1985.

KUTS, V. e LITVINSKY, L. Monitoring of radionuclides in nuclear power plant supervised areas and ultra-low background measurements of radioactivity. **IAEA-SM-349/21P**, 1998.

L'ANNUNZIATA, M. F. e KESSLER, M. J. Radiotracer liquid scintillation analyses. L'ANNUNZIATA, M.F. (Ed.). Handbook of radioactivity analyses. San Diego: Academic Press, p.209-329, 1998. In: GUERRA, M. L. T. M. **Datação com carbono-14 por cintilação em meio líquido com CO_2 absorvido de material malacológico proveniente de Sambaqui.** Rio de Janeiro, 2002. Dissertação de Mestrado- Departamento de Química, Pontifícia Universidade Católica.

LEVIN, I. e KROMER, B. The tropospheric $^{14}\text{CO}_2$ levels in mid latitudes of the northern hemisphere (1959-2003). **Radiocarbon**, vol. 46, nr. 3, p. 1261-1272, 2004.

LEVIN, I. e KROMER, B. Twenty years of atmospheric $^{14}\text{CO}_2$ observations at Schauinsland Station, Germany. **Radiocarbon**, vol. 39, n. 2, p. 205-218, 1997.

LEVIN, I., MÜNNICH, K. O. e WEISS, W. The effect of anthropogenic CO_2 and ^{14}C sources on the distribution of ^{14}C in the atmosphere. **Radiocarbon**, vol. 22 (2), p. 379-363, 1980.

LEVIN, I.; KROMER, B.; BARABAS, M. e MÜNNICH, K. O. Environmental distribution and long-term dispersion of reactor $^{14}\text{CO}_2$ around two German nuclear power plants. **Health Physics**, vol. 54, n. 2, p. 149-156, 1988.

LEVIN, I.; KROMER, B.; SCHOCH-FISCHER, H.; BRUNS, M.; MÜNNICH, M.; BERDAU, D.; VOGEL, J. C. e MÜNNICH, K. O. 25 years of tropospheric ^{14}C observations in Central Europe. **Radiocarbon**, vol. 27, n. 1, p. 1-19, 1985.

LOOSLI, E. H. e OESCHGER, H. ^{14}C in the environment of Swiss nuclear installations. **Radiocarbon**, vol. 31, n 3, p. 747-753, 1989.

MAGNO, P.J.; NELSON, O.B. e ELLETT, W.H. A consideration of the significance of carbon-14 discharges from the nuclear power industry. 13th AEC Conference Air Cleaning, 1974, San Francisco. In: SCHWIBACH, J.; RIEDEL, H. e BRETSCHNEIDER, J. **Investigations into the emission of carbon-14 compounds from nuclear facilities.** Luxembourg, 1978. 63 p. Report of Commission of the European Communities.

MAGNUSSON, A.; STENSTRÖM, K.; SKOG, G.; ADLIENE, D., ADLYS, G.; HELLBORG, R.; OLARIU, A.; ZAKARIA, M.; RÄÄF, C. and MATTSSON, S. Levels of ^{14}C in the terrestrial environment in the vicinity of two European nuclear power plants. **Radiocarbon**, vol. 46, n 2, p. 863-868, 2004.

MARTIN, A. e APSIMON, H. Population exposure and the interpretation of its significance. Proceedings of the seminar on radiological safety, evaluation of populations doses and application of radiological safety standards to man and the environment, 1974, IAEA, Portoroz. In: SCHWIBACH, J.; RIEDEL, H. e BRETSCHNEIDER, J. **Investigations into the emission of carbon-14 compounds from nuclear facilities**. Luxembourg, 1978. 63 p. Report of Commission of the European Communities.

McCARTNEY, M. e BAXTER, M. S. Carbon-14 discharges from the nuclear fuel cycle: global effects. **J. Environmental Radioactivity** 8, p.143-155, 1988.

McCARTNEY, M.; BAXTER, M. S. e McKAY, K. Global and local effects of ^{14}C discharges from the nuclear fuel cycle. **Radiocarbon**, vol. 28 (2A), p.634-643, 1986.

McNAMARA, N. e McCARTNEY, M. A new estimate of atmospheric discharges from Sellafield. **Journal Environmental Radioactivity**, vol. 41, n. 1, p. 1-10, 1998.

MEIJER, H. A. J.; VAN DER PLICHT, J.; GISLEFOSS, O. S. e NYDAL, R. Comparing long-term atmospheric ^{14}C and ^3H records near Groningen, the Netherlands with Fruholmen, Norway and Izana, Canary Islands ^{14}C stations. **Radiocarbon**, vol.37, n. 1, p. 39-50, 1995.

MILTON, G. M.; KRAMER, S. J.; BROWN, R. M.; REPTA, C. J. W.; KING, K. J. e RAO, R. R. Radiocarbon dispersion around Canadian nuclear facilities. **Radiocarbon**, vol. 37, n. 2, p. 485-496, 1995.

MILTON, G.M.; KRAMER, S. J.; WATSON, W. L. e KOTZER, T. G. Qualitative estimates of soil disturbance in the vicinity of CANDU stations, utilizing measurements of ^{137}Cs and ^{210}Pb in soils cores. **Journal of Environmental Radioactivity**, 55, p. 195-205, 2001.

MOOK, G. W. e VAN DER PLITCH, J. Reporting ^{14}C activities and concentrations. **Radiocarbon**, vol. 41, n. 3, p. 227-239, 1999.

MULLER, R. A. Science 196, p.489, 1977. In: STENSTRÖM, K. **New applications of ^{14}C measurements at the Lund AMS facility**. Lund, 1995a. 167 f. Tese de Doutorado. Universidade de Lund

MURAKI, Y.; MASUDA, K.; ARSLANOV, K. A.; TOYOIZUMI, H.; KATO, M.; NARUSE, Y.; MURATA, T. e NISHIYAMA, T. Measurements of radiocarbon content in leaves from some Japanese sites. **Radiocarbon**, vol. 43, nr 2B, p. 695-701, 2001.

NAIR A. R.; SINHA, U. K.; JOSEPH, T. B. e RAO, S. M. Radiocarbon dating up to 37000 years using CO_2 absorption technique. **Nuclear Geophysics** 9 (3), p. 263-268, 1995.

NATIONAL ELECTROSTATIC CORPORATION. Disponível em: www.pelletron.com. Acesso em 20/05/2005.

NELSON, D. E.; KORTELING, R. G. e STEPHENSON, E. J. Science 196, p.507, 1977. In: STENSTRÖM, K. **New applications of ^{14}C measurements at the Lund AMS facility**. Lund, 1995a. 167 f. Tese de Doutorado. Universidade de Lund.

OBELIC, B.; KRAJCAR-BRONIC, I.; SRDOC, D. e HORVATINIC, N. Environmental ^{14}C levels around the 632 Mw_e nuclear power plant KRŠKO in Yugoslavia. **Radiocarbon**, vol. 28(2A), p.644-648, 1986.

OLARIU, A., HELLBORG, R., STENSTROM, K., SKOG, G., FAARINEN, M., PERSSON, P., ERLANDSSON, B., POPESCU, I. V. e ALEXANDRESCU, E. **Analysis of a fossil bone from the archaeological settlement of Malu Rosu, Romania, by accelerator mass spectrometry**. LUND FD6(NFFR-3081).Lund, 2000. 30p. Relatório Técnico (08/00).

OTLET, R. L.; FULKER, M. J. e WALKER, A. J. Environmental impact of atmospheric carbon-14 emissions resulting from the nuclear energy cycle. In: TAYLOR, R. E.; LONG, A. e KRA, R. S. (eds). Radiocarbon after four decades: an interdisciplinary perspective. New York, Springer Verlag: 519-534. In: BUZINNY, M.; KOVALYUKH, N.; LIKHTARJOV, I.; LOS, I., NESVETAJLO, V.; PAZDUR, M. F.; SKRIPKIN, V.; SHKVORETS, O. e SOBOTOVICH, E. Ecological chronology of nuclear fuel cycle sites. **Radiocarbon**, vol. 37, n. 2, p. 469-473, 1995.

OTLET, R. L.; WALKER, A. J. e FULKER, M. J. Survey of the dispersion of ^{14}C in the vicinity of the UK reprocessing site at Sellafield. **Radiocarbon**, 32(1), p. 23-30, 1990.

PASSO Jr., C. J. e COOK, G. T. **Handbook of environmental liquid scintillation spectrometry-a compilation of theory and methods**. Packard Instrument Company, 1994.

PESSENDA, L. C. R.; ARAVENA, R.; MELFI, A. J.; TELLES, E. C. C.; BOULET, R.; VALENCIA, E. P. E. e TOMAZELLO, M. The use of carbon isotopes (^{13}C , ^{14}C) in soil to evaluate vegetation changes during the Holocene in Central Brazil. **Radiocarbon**, vol.38, n 2, p.191-201, 1996.

PESSENDA, L. C. R.; GOUVEIA, S. E. M.; GOMES, B.M.; ARAVENA, R.; BOULET, R.; RIBEIRO, A.S. Studies of palaeovegetation changes in the central Amazon by carbon isotopes of soil organic matter. In: SYMPOSIUM ON ISOTOPE TECHNIQUES IN THE STUDY OF PAST AND CURRENT ENVIRONMENTAL CHANGES IN THE HYDROSPHERE THE ATMOSPHERE. Vienna, 1997. Proceedings. Vienna: IAEA, 1998. SM-349/46, p.645-652.

POCHIN, E. E. Estimated population exposure from nuclear power production and other radioactive sources. Nuclear Energy Agency Organization for Economic Co-operation and Development, 1976. In: SCHWIBACH, J.; RIEDEL, H. e BRETSCHNEIDER, J. **Investigations into the emission of carbon-14 compounds from nuclear facilities**. Luxembourg, 1978. 63 p. Report of Commission of the European Communities.

QURESHI, M. R.; ARAVENA, R.; FRITZ, P. e DRIMMIE, R. The CO_2 absorption method as an alternative to benzene synthesis method for ^{14}C dating. **Applied Geochemistry**, vol. 4, p. 625-633, 1989.

RABEN, M. S. e BLOEMBEUGEN, N. Determination of radioactivity by solution in liquid scintillation. **Science**, 114, p. 363, 1951.

RADIOCARBON UPDATES. Radiocarbon laboratories. **Radiocarbon**, vol.46, n 3, p.1307-1334, 2004.

RHODES, R. e BELLER, D. The need for nuclear power. **IAEA Bulletin**, 2000.

ROZANSKI, K., LEVIN, I., STOCK, J., FALCON, R. E. G. e RUBIO, F. Atmospheric $^{14}\text{CO}_2$ variations in the equatorial region. **Radiocarbon**, vol 37, n°2, p. 509-515, 1995.

SALAMEH, M. G. Can renewable and unconventional energy sources bridge the global energy gap in the 21 st century? **Applied Energy** 75, p. 33-42, 2003.

SALONEN, L. e SNELLMAN, M. Carbon-14 releases from Finnish nuclear power plants, Part of the IAEA coordinated program "On carbon-14 from nuclear facilities", Final Report, 1986. In: SNELLMAN, M. **Sampling and monitoring of carbon-14 in gaseous effluents from nuclear facilities - a literature survey**. Estocolmo, 1988. 50 p. Relatório técnico (Projeto SSI P 498.88).

SCHROEDER, J. B.; HAUSER, T. M.; KLODY, G. M. e NORTON, G. A. Initial results with low energy single stage AMS. **Radiocarbon**, vol. 46, n 1, p. 1-4, 2004.

SCHWIBACH, J., BRETSCHNEIDER, J., GADOW, A., HAUBELT, R., RIEDEL, H. e WILKELMANN, I. Methods and results of surveillance of radionuclides released from nuclear power plants. Neuherberg, Germany: Institut für Strahlenhygiene des Bundesgesundheitsamtes, 1985. In: UCHRIN, G.; CSABA, E.; HERTELENDI, E.; ORMAI, P. e BARNABAS, I. ^{14}C release from a soviet-designed pressurized water reactor nuclear power plant. **Health Physics**, vol. 63, n. 6, p. 651-655, 1992.

SCHWIBACH, J. e JACOBI, W. Die umwelt-und siecherheitsproblematik. Symposium über die entsorgung der kernenergie, 1976. In: SCHWIBACH, J.; RIEDEL, H. e BRETSCHNEIDER, J. **Investigations into the emission of carbon-14 compounds from nuclear facilities**. Luxembourg, 1978. 63 p. Report of Commission of the European Communities.

SCHWIBACH, J.; RIEDEL, H. e BRETSCHNEIDER, J. **Investigations into the emission of carbon-14 compounds from nuclear facilities**. Luxembourg, 1978. 63 p. Report of Commission of the European Communities.

SCOTT, E. M.; BEGG, F. H. e McCARTNEY, M. ^{14}C in the environment. In: GARCIA-LÉON, M. e GARCIA-TENORIO, R. (Ed.). Low -level measurements of radioactivity in the environment: techniques and applications. In: PROCEEDINGS OF THE THIRD SUMMER SCHOOL, 1993, Espanha. World Scientific, p. 369-384.

SIEGENTHALER, U.; FRIEDLI, H.; LOETSCHER, H.; MOOR, E.; NEFTEL, A.; OESCHGER, H. e STAUFFER, B. Ann. Glaciol.1988, 10, 102-105. In: STORK, A.; WITTE, R. e FÜR, F. $^{14}\text{CO}_2$ measurements in air: literature review and a new sensitive method. **Environmental Science & Technology**, vol.31, n 4, p.949-955, 1997.

SNELLMAN, M. **Sampling and monitoring of carbon-14 in gaseous effluents from nuclear facilities - a literature survey**. Estocolmo, 1988. 50 p. Relatório técnico (Projeto SSI P 498.88).

SOARES, E. P. **Caracterização da precipitação na região de Angra dos Reis e sua relação com a ocorrência de deslizamentos de encostas**. Rio de Janeiro, 2006. 145p. Dissertação de Mestrado. Coordenação dos Programas de Pós-Graduação de Engenharia-Universidade Federal do Rio de Janeiro (COPPE/UFRJ).

SOUZA, J. A. M. **A situação da energia nucleoeleétrica no mundo**. Rio de Janeiro: Eletrobrás Termonuclear S. A. (Eletronuclear), 2001. 92 p. Relatório Técnico.

STENSTRÖM, K. **New applications of ^{14}C measurements at the Lund AMS facility**. Lund, 1995a. 167 f. Tese de Doutorado. Universidade de Lund.

STENSTRÖM, K.; ERLANDSON, B.; HELLBORG, R.; WIEBERT, A. e SKOG, G. Environmental levels of carbon-14 around a Swedish nuclear power plant measured with accelerator mass spectrometry. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**. 113, p. 474-476, 1996a.

STENSTRÖM, K.; ERLANDSON, B.; HELLBORG, R.; WIEBERT, A. e SKOG, G. Determination of the $^{14}\text{CO}_2$ and the total airborne ^{14}C releases from two Swedish light-water reactors using accelerator mass spectrometry. **Radioactivity and Radiochemistry**, vol.7, n. 1, p.32-36, 1996b.

STENSTRÖM, K.; ERLANDSON, B.; HELLBORG, R.; WIEBERT, A.; GÖRAN, S.; VERSANEN, R.; ALPSTEN, M. e BURMAN, B. A one year study of the total air-borne ^{14}C

effluents from two Swedish light-water reactors, one boiling water and one pressurized water reactor. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry Articles**, vol. 198, n. 1, p. 203-213, 1995b.

STENSTRÖM, K.; GORAN, S.; THORNBERG, C.; ERLANDSON, B.; HELLBORG, R.; MATTSSON, S. e PERSSON, P. ^{14}C levels in the vicinity of two Swedish nuclear power plants and at two “clean-air” sites in southernmost Sweden. **Radiocarbon**, vol. 40, n. 1, p. 433-438, 1998.

STORK, A.; WITTE, R. e FÜR, F. $^{14}\text{CO}_2$ measurements in air: literature review and a new sensitive method. **Environmental Science & Technology**, vol.31, n. 4, p. 949-955, 1997.

STUIVER, M. e QUAY, P. D. Atmospheric ^{14}C changes resulting from fossil fuel CO_2 released and cosmic ray flux variability. **Earth and Planetary Science Letters**, 53, p.349-362, 1981.

STUIVER, M. e QUAY, P. D. Changes in atmospheric carbon-14 attributed to a variable sun. **Science**, vol. 207, n. 4426, p.11-18, 1980.

SUESS, H. E. Radiation concentration in modern wood. **Science** 122 (3166), p.414-417, 1955.

SYNAL, H. A., SAW, J. e SUTER, M. New concepts for radiocarbon detection systems. **Nuclear Instruments and Methods in Physisc Research B** 161-163, p.29-36, 2000.

TANS, P. P.; DE JONG, A. F. M. e MOOK, W. G. Natural atmospheric ^{14}C variation and Suess effect. **Nature**, vol. 280, p.826-827, 1979.

TEIXEIRA, G. O novo ciclo da energia nuclear. **Brasil Nuclear**, n. 23, p. 10-12, 2001

TENU, A. e DAVIDESCU, F. Long-term measurements of tritium and radiocarbon in environmental components in România. **Mediul Inconjurator**, vol. 1, 2001.

TILL, J. E. and MEYER, H. R. Radiological Assesments, A Textbook on Environmental Dose Analyses. **NUREG/CR-3332, ORNL-5968, US**. Nuclear Regulatory Commission, 1983.

TORSTENFELT, B. **Reduction of ^{14}C releases from nuclear power plants**. Suécia, 1996. 50p. Relatório técnico (SSI P 877.95).

TRUMBORE, S. Comparison of carbon dynamics in tropical and temperate soils using radiocarbon measurements. **Global Biogeochemical Cycles**, vol.7 n° 2, p.275-290, 1993.

TRUMBORE, S.; DAVIDSON, E. A.; CAMARGO, P. B.; NEPSTAD, D. C. e MARTINELLI, L. A. Belowground cycling of carbon in forests and pastures of eastern Amazonia. **Global Biogeochemical Cycles** 9, p.515-528, 1995. In: TRUMBORE, S. e ZHENG, S. Comparison of fractionation for soil organic matter ^{14}C analyses. **Radiocarbon**, vol.28, n. 2, p.219-229, 1996.

TUNIZ, C., BIRD, J. R., FINK, D. e HERZOG, G. F. **Accelerator Mass Spectrometry-Ultrasensitive Analyses for Global Science**. CRC Press LLC, 1998.

UCHRIN, G.; CSABA, E.; HERTELENDI, E.; ORMAI, P. e BARNABAS, I. ^{14}C release from a soviet-designed pressurized water reactor nuclear power plant. **Health Physics**, vol. 63, n. 6, p. 651-655, 1992.

UCHRIN, G.; HERTELEND, E.; VOLENT, G.; SLAVIK, O.; MORÁVEK, J.; KOBAL, I. e VOKAL, B. ^{14}C measurements at PWR-type nuclear power plants in three middle European countries. **Radiocarbon**, vol. 40, n. 1, p. 439-446, 1998.

UNITED NATIONS. **Sources and Effects of Ionizing Radiation. Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation - UNSCEAR**. New York, 2000. Report to the General Assembly, with scientific annexes.

VAN DER STRICHT, S. and JANSSENS, A. Radioactive effluents from nuclear power stations and nuclear fuel reprocessing plants in the European Union, 1995-1999. In: **Radiation Protection 127**. Office for Official Publications of the European Communities, Luxembourg, 2001.

VARELLA, R. F. **Fluxos de CO, CO₂, NO e NO_x e turnover de carbono em latossolo com cobertura de latossolo**. Brasília, 2002. 138f. Tese de Doutorado. Universidade de Brasília.

VERES, M.; HERTELEND, E.; UCHRIN, G.; CSABA, E.; BARNABÁS, I.; ORMAI, P.; VOLENT, G. e FUTÓ, I. Concentration of radiocarbon and its chemical forms in gaseous effluents, environmental air, nuclear waste and primary water of a pressurized water reactor power plant in Hungary. **Radiocarbon**, vol. 37, n. 2, p. 497-473, 1995.

VOGEL, J. S.; SOUTHON, J. R.; NELSON, D. E. e BROWN, T. A. Nucl. Instr. and Meth. (B5) (1984) 289. In: STENSTRÖM, K. **New applications of ^{14}C measurements at the Lund AMS facility**. Lund, 1995a. 167 f. Tese de Doutorado. Universidade de Lund.

VOKAL, B. e KOBAL, I. Radiocarbon releases at the KRSKO nuclear power plant. **Radiocarbon**, vol.39, n. 3, p. 285-292, 1997.

WALLBERG, P. e MOBERG, L. Evaluation of 20 years of environmental monitoring data around Swedish nuclear installations. **Journal of Environmental Radioactivity**, 63, p. 117-133, 2002.

WILKELMANN, I. GESEWSKY, P. e SCHWIBACH, J. (1984). Measurements of carbon-14 releases with the gaseous effluents from nuclear facilities in the Federal Republic of Germany, presented at the Second IAEA Research Coordination meeting on "Carbon-14 from nuclear facilities", Bombay, India. In: SNELLMAN, M. **Sampling and monitoring of carbon-14 in gaseous effluents from nuclear facilities - a literature survey**. Estocolmo, 1988. 50 p. Relatório técnico (Projeto SSI P 498.88).

WILKELMANN, I. e VOGL, K. (1984). Measurements of specific radionuclides in gaseous effluents from nuclear power plants and their contribution to radiation exposure. In: 6th International Congress of the International Radiation Protection Association -IRPA-1984, Berlim, p.875-878. In: SNELLMAN, M. **Sampling and monitoring of carbon-14 in gaseous effluents from nuclear facilities - a literature survey**. Estocolmo, 1988. 50 p. Relatório técnico (Projeto SSI P 498.88).

WILKELMANN, I. e FIELDS, D. E. Measurements of airborne radioactive emissions from nuclear power plants and their quality control in the Federal Republic of Germany. Neuherberg, Germany: Institut für Strahlenhygiene des Bundesgesundheitsamtes, 1985.

WOLFE, B. Nuclear power preventing the anticipated word energy disasters. **Nuclear news**, 2002.

WOO, H. J.; CHO, S. Y.; CHUN, S. K.; KIM, N.B., KANG, D. W. e KIM, E. H. Sample treatment techniques for the determination of environmental radiocarbon in a nuclear power station area. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, vol. 239, n. 3, p. 533-538, 1999b.

WOO, H. J.; CHUN, S. K.; CHO, S. Y.; KIM, Y. S.; KANG, D. W.; KIM, e. H. Optimization of liquid scintillation counting techniques for the determination of carbon-14 in environmental samples. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, vol. 239, n. 3, p. 649-655, 1999a.

YIM, MS. e CARON, F. Life cycle and management of carbon-14 from nuclear power generation. **Progress in Nuclear Energy**, p.1-35, 2005, in press.

APÊNDICE I - TABELAS

Tabela 1 - Resultados das concentrações de ^{14}C medidas nos efluentes gasosos de Angra I, no período de junho/2005 a fevereiro/2006.

CONCENTRAÇÃO DE ^{14}C NA FORMA QUÍMICA CO_2 (Bq/m ³)	CONCENTRAÇÃO DE ^{14}C TOTAL (CO_2 + HIDROCARBONETOS) (Bq/m ³)
18,67 ±0,2	No data
25,08 ±0,2	149,20
12,75 ±0,2	133,13
6,65 ±0,1	34,42
16,21 ±0,2	17,47
11,79 ±0,2	23,39
No data	16,95
20,74 ±0,2	12,68
19,88 ±0,2	32,18
18,61 ±0,2	11,58
9,40 ±0,1	7,71
10,31 ±0,2	9,61
9,14 ±0,1	5,28
7,61 ±0,1	6,64
10,73 ±0,2	6,00

Tabela 2 - Resultados das concentrações de ^{14}C medidas nos efluentes gasosos de Angra II, no período de 2001 a 2004

PERÍODO DE AMOSTRAGEM (MÊS-ANO)	CONCENTRAÇÃO DE ^{14}C TOTAL (CO_2 + HIDROCARBONETOS) (Bq/m ³)
Jan-01	1,00*±0,1
Apri-01	4,69 ±0,1
Oct-01	19,46 ±0,2
Jan-02	26,84 ±0,2
Apr-02	77,80 ±0,4
Jul-02	28,64 ±0,2
Oct-02	46,13 ±0,3
Jan-03	45,44 ±0,3
Apr-03	45,70 ±0,3
Jul-03	126,79 ±0,5
Oct-03	47,62 ±0,3
Jan-04	67,53 ±0,4
Apr-04	131,26 ±0,5
Jul-04	82,68 ±0,4
Out-04	76,94 ±0,4

Tabela 3 - Resultados de ^{14}C , expresso nas diferentes unidades de medida, em amostras de ar atmosférico coletadas em abril (A) e novembro (B) de 2002, até 3 km de distância das usinas nucleares, em diferentes direções do vento

(A)

PONTOS DE AMOSTRAGEM	Bq/kgC	$\Delta^{14}\text{C}$	mBq/m ³	pMC
NE	246±1	67±5	46±0,3	107±1,0
E	263±2	141±9	49±0,4	114±1,0
W	243±1	56±5	45±0,2	106±0,5

(B)

PONTOS DE AMOSTRAGEM	Bq/kgC	$\Delta^{14}\text{C}$	mBq/m ³	pMC
NE	367±3	596±12	69±0,6	160±1,0
E	252±1	95±6	47±0,3	110±0,6
N	305±2	328±7	57±0,3	133±0,7
WNW	257±2	118±7	48±0,3	112±0,7
W	244±2	60±6	46±0,3	106±0,6

Tabela 4 - Resultados de ^{14}C , expressos nas diferentes unidades de medida, em amostras de ar atmosférico coletadas em setembro (a), outubro (b) e novembro (c) de 2004, até 3 km de distância das usinas nucleares, em diferentes direções do vento

(A)

PONTOS DE AMOSTRAGEM	Bq/kgC	$\Delta^{14}\text{C}$	mBq/m ³	pMC
NE	283±2	229±7	53±0,2	123±1,0
E	306±2	331±7	57±0,3	133±0,7
N	305±3	327±10	57±0,4	133±1,0
WNW	300±3	304±9	56±0,4	124±0,8
W	269±2	168±8	50±0,4	117±0,8

(B)

PONTOS DE AMOSTRAGEM	Bq/kgC	$\Delta^{14}\text{C}$	mBq/m ³	pMC
NE	276±2	311±6	52±0,2	131±0,6
E	293±2	257±7	55±0,3	126±0,7
N	281±1	220±6	53±0,3	122±0,6
WNW	305±2	322±7	57±0,2	132±0,7
W	310±2	349±6	58±0,2	135±0,6

(C)

PONTOS DE AMOSTRAGEM	Bq/kgC	$\Delta^{14}\text{C}$	mBq/m ³	pMC
NE	253±1	101±6	47±0,3	110±0,6
N	261±2	134±7	49±0,3	113±0,7
WNW	291±2	262±7	54±0,3	126±0,7
W	257±2	116±8	48±0,4	112±0,9

Tabela 5 - Resultados de ^{14}C , expressos nas diferentes unidades de medida, em amostras de ar atmosférico coletadas em junho (A) e maio (B) de 2005, até 3 km de distância das usinas nucleares, em diferentes direções do vento

(A)

PONTOS DE AMOSTRAGEM	Bq/kgC	$\Delta^{14}\text{C}$	mBq/m ³	pMC
NE	279±2	213±7	52±0,3	121±0,7
N	278±1	207±6	52±0,3	120±1,0
WNW	262±3	140±12	49±0,5	114±1,2
W	261±1	137±6	49±0,3	114±0,6

(B)

PONTOS DE AMOSTRAGEM	Bq/kgC	$\Delta^{14}\text{C}$	mBq/m ³	pMC
NE	351±3	529±11	66±0,5	153±1,1
N	264±1	170±5	50±0,2	117±0,5
WNW	300±3	302±12	57±0,5	130±1,2
W	311±2	350±9	59±0,4	135±0,9

Tabela 6 - Resultados de ^{14}C , expressos nas diferentes unidades de medida, em plantas coletadas em 2004 e 2005 até uma distância máxima de 5 km dos reatores, em diferentes direções do vento.

PONTOS DE AMOSTRAGEM	Bq/kgC	$\Delta^{14}\text{C}$	pMC
A(04)	299±1	323±7	132±0,7
B(04)	264±2	170±5	117±0,5
C(04)	261±1	153±5	115±0,5
D(04)	252±1	116±5	112±0,5
E(04)	255±2	130±7	113±0,7
AR1	244±3	80±15	108±1,5
AR2	242±1	70±5	107±0,5
AR3	252±1	115±6	111±0,6
AR4	249±1	102±5	110±0,5
AR5	244±4	77±16	108±1,6
PA1	238±3	55±15	105±1,5
PA2	245±3	82±12	108±1,2
PA3	227±4	3±17	100±1,7
PA4	241±1	64±6	106±0,6
PA5	241±1	67±5	107±0,5
A(5)	296±1	310±6	131±0,6
B(5)	285±1	263±6	126±0,6
C(5)	284±2	259±7	126±0,7
D(5)	243±1	75±6	107±0,5
E(5)	246±1	90±5	109±0,5

Tabela 7 - Resultados de ^{14}C , expressos nas diferentes unidades de medida, em solos coletados a menos de 1 km do reator (usina) e a 50 km (solos testemunhas).

PONTOS DE AMOSTRAGEM	PROFUNDIDADE (cm)	Bq/kgC	$\Delta^{14}\text{C}$	pMC
Topo da montanha (usina)	20-10	240±1	63±4	107±0,4
Topo da montanha (usina)	10-05	202±1	-104±4	90±0,4
Topo da montanha (usina)	05-00	242±1	73±4	107±0,4
Meio da montanha (usina)	20-10	224±1	-8±4	99±0,4
Meio da montanha (usina)	10-05	225±1	-6±4	99±0,4
Meio da montanha (usina)	05-00	235±1	41±5	104±0,5
Meio da montanha (usina)	20-10	230±1	17±4	102±0,4
Meio da montanha (usina)	10-05	237±1	49±5	105±0,5
Meio da montanha (usina)	05-00	244±1	82±5	108±0,5
Meio da montanha (usina)	20-10	236±2	45±6	105±0,5
Meio da montanha (usina)	10-05	218±1	-35±4	96±0,4
Meio da montanha (usina)	05-00	227±1	5±5	101±0,5
Base da montanha (usina)	20-10	248±1	100±5	110±0,5
Base da montanha (usina)	10-05	237±1	48±5	105±0,5
Base da montanha (usina)	05-00	243±2	74±8	107±0,8
Base da montanha (usina)	20-10	236±2	46±7	105±0,7
Base da montanha (usina)	10-05	253±1	119±5	112±0,5
Base da montanha (usina)	05-00	251±1	110±5	111±0,5
Base da montanha (usina)	20-10	234±1	36±5	104±0,5
Base da montanha (usina)	10-05	237±1	48±6	105±0,6
Base da montanha (usina)	05-00	245±2	85±8	109±0,8
Meio da montanha (testemunha)	20-10	230±1	19±4	102±0,4
Meio da montanha (testemunha)	10-05	237±1	51±5	105±0,5
Meio da montanha (testemunha)	05-00	244±1	81±5	108±0,5
Meio da montanha (testemunha)	20-10	240±1	61±5	106±0,5
Meio da montanha (testemunha)	10-05	249±1	100±6	110±0,6
Meio da montanha (testemunha)	05-00	253±1	118±6	112±0,6
Meio da montanha (testemunha)	20-10	230±2	18±6	102±0,6
Meio da montanha (testemunha)	10-05	249±1	104±5	110±0,5
Meio da montanha (testemunha)	05-00	248±1	97±5	110±0,5
Base da montanha (testemunha)	20-10	240±1	62±5	106±0,5
Base da montanha (testemunha)	10-05	247±1	94±5	109±0,5
Base da montanha (testemunha)	05-00	245±1	85±5	108±0,5
Base da montanha (testemunha)	20-10	231±1	22±4	102±0,4
Base da montanha (testemunha)	10-05	239±1	59±5	106±0,5
Base da montanha (testemunha)	05-00	241±1	67±5	107±0,5
Base da montanha (testemunha)	20-10	235±1	38±5	104±0,5
Base da montanha (testemunha)	10-05	242±1	69±6	107±0,6
Base da montanha (testemunha)	05-00	243±1	74±5	107±0,5

Tabela 8 - Tabela com resultados das concentrações isotópicas ($\delta^{13}\text{C}$) e carbono total em solos coletados a menos de 1 km do reator (usina) e a 50 km (solos testemunhas) (os valores em negrito representam as medidas que foram realizadas em duplicata).

PONTOS DE AMOSTRAGEM	PROFUNDIDADE (cm)	$\delta^{13}\text{C}$	CARBONO TOTAL
Topo da montanha (usina)	20-10	-25,66	0,86
Topo da montanha (usina)	20-10	-25,75	0,91
Topo da montanha (usina)	10-05	-25,98	1,50
Topo da montanha (usina)	05-00	-27,85	4,10
Meio da montanha (usina)	20-10	-22,09	1,70
Meio da montanha (usina)	10-05	-24,78	2,00
Meio da montanha (usina)	10-05	-24,87	2,00
Meio da montanha (usina)	05-00	-26,76	2,86
Meio da montanha (usina)	20-10	-21,72	1,67
Meio da montanha (usina)	20-10	-21,68	1,69
Meio da montanha (usina)	10-05	-22,69	2,06
Meio da montanha (usina)	05-00	-25,51	3,18
Meio da montanha (usina)	20-10	-20,42	1,78
Meio da montanha (usina)	10-05	-24,35	1,52
Meio da montanha (usina)	05-00	-26,66	2,67
Meio da montanha (usina)	05-00	-26,66	2,73
Base da montanha (usina)	20-10	-27,93	5,80
Base da montanha (usina)	10-05	-27,81	4,96
Base da montanha (usina)	05-00	-28,01	7,84
Base da montanha (usina)	20-10	-27,97	5,94
Base da montanha (usina)	10-05	-28,08	6,88
Base da montanha (usina)	10-05	-28,06	6,75
Base da montanha (usina)	05-00	-28,15	8,27
Base da montanha (usina)	20-10	-27,93	5,32
Base da montanha (usina)	10-05	-28,03	6,51
Base da montanha (usina)	05-00	-28,11	7,29
Meio da montanha (testemunha)	20-10	-27,40	1,88
Meio da montanha (testemunha)	10-05	-27,81	2,79
Meio da montanha (testemunha)	05-00	-28,24	4,36
Meio da montanha (testemunha)	20-10	-27,04	2,20
Meio da montanha (testemunha)	10-05	-27,41	3,24
Meio da montanha (testemunha)	05-00	-27,90	5,45
Meio da montanha (testemunha)	20-10	-26,97	1,91
Meio da montanha (testemunha)	20-10	-26,90	1,93
Meio da montanha (testemunha)	10-05	-27,38	2,74
Meio da montanha (testemunha)	05-00	-28,12	4,77
Base da montanha (testemunha)	20-10	-26,47	2,12
Base da montanha (testemunha)	10-05	-26,88	2,67
Base da montanha (testemunha)	05-00	-28,07	4,81
Base da montanha (testemunha)	20-10	-26,67	2,07
Base da montanha (testemunha)	10-05	-27,09	2,77
Base da montanha (testemunha)	10-05	-27,13	2,67
Base da montanha (testemunha)	05-00	-28,10	4,01
Base da montanha (testemunha)	20-10	-26,74	2,06
Base da montanha (testemunha)	10-05	-27,55	2,96
Base da montanha (testemunha)	05-00	-28,18	3,93
Base da montanha (testemunha)	05-00	-28,16	3,78

DIREÇÃO DO VENTO	CLASSE DE ESTABILIDADE	VELOCIDADE DO VENTO					
		(m/s)					
		1-3	4-6	7-10	11-16	17-21	>21
SSE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	D	0,184524	0,077381	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	D	0,071429	0,017857	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	D	0,017857	0,005952	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000
S	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	E	0,029762	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	E	0,119048	0,089286	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	E	0,077381	0,017857	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	E	0,029762	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	F	0,011905	0,023810	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	F	0,077381	0,101190	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000

DIREÇÃO DO VENTO	CLASSE DE ESTABILIDADE	VELOCIDADE DO VENTO					
		(m/s)					
		1-3	4-6	7-10	11-16	17-21	>21
E	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	D	0,017857	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	D	0,125000	0,035714	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	D	0,023810	0,005952	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	D	0,017857	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	D	0,011905	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	D	0,005952	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	D	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	D	0,017857	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	D	0,005952	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	D	0,005952	0,011905	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000
W	D	0,011905	0,017857	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	D	0,011905	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	E	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000

DIREÇÃO DO VENTO	CLASSE DE ESTABILIDADE	VELOCIDADE DO VENTO					
		(m/s)					
		1-3	4-6	7-10	11-16	17-21	>21
WNW	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,011905	0,000000	0,000000
ENE	D	0,005952	0,011905	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000
E	D	0,011905	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	D	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	D	0,005952	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	D	0,005952	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	D	0,011905	0,011905	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	D	0,005952	0,011905	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000
SW	D	0,089286	0,041667	0,005952	0,011905	0,000000	0,000000
WSW	D	0,047619	0,035714	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000

DIREÇÃO DO VENTO	CLASSE DE ESTABILIDADE	VELOCIDADE DO VENTO (m/s)					
		1-3	4-6	7-10	11-16	17-21	>21
W	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	D	0,011905	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	E	0,000000	0,000000	0,005952	0,005952	0,000000	0,000000
NE	E	0,041667	0,005952	0,005952	0,023810	0,000000	0,000000
ENE	E	0,017857	0,023810	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	E	0,035714	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	E	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	E	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	E	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	E	0,035714	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	E	0,089286	0,011905	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000
WSW	E	0,113095	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	E	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	E	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	E	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	E	0,000000	0,005952	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000
N	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	F	0,000000	0,000000	0,005952	0,011905	0,000000	0,000000
NE	F	0,005952	0,000000	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000
ENE	F	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	F	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	F	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	F	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	F	0,017857	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	F	0,000000	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000
NW	F	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	F	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000

DIREÇÃO DO VENTO	CLASSE DE ESTABILIDADE	VELOCIDADE DO VENTO					
		(m/s)					
		1-3	4-6	7-10	11-16	17-21	>21
NE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	C	0,005952	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	C	0,000000	0,029762	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	C	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	D	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	D	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	D	0,017857	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	D	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	D	0,059524	0,059524	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	D	0,017857	0,047619	0,005952	0,005952	0,000000	0,000000
WSW	D	0,011905	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	D	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	D	0,017857	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	E	0,172619	0,083333	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	E	0,077381	0,035714	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000
NE	E	0,017857	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	E	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	E	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	E	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	E	0,017857	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	E	0,005952	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	E	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	E	0,005952	0,017857	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	E	0,023810	0,017857	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	E	0,035714	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	F	0,017857	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000

DIREÇÃO DO VENTO	CLASSE DE ESTABILIDADE	VELOCIDADE DO VENTO (m/s)					
		1-3	4-6	7-10	11-16	17-21	>21
NNE	F	0,000000	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000

(B)

DIREÇÃO DO VENTO	CLASSE DE ESTABILIDADE	VELOCIDADE DO VENTO (m/s)					
		1-3	4-6	7-10	11-16	17-21	>21
N	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	A	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	B	0,000000	0,023810	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000

DIREÇÃO DO VENTO	CLASSE DE ESTABILIDADE	VELOCIDADE DO VENTO					
		(m/s)					
		1-3	4-6	7-10	11-16	17-21	>21
WSW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	C	0,000000	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	C	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	C	0,000000	0,017857	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	C	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	D	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	D	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	D	0,000000	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000
E	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	D	0,011905	0,017857	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	D	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	D	0,000000	0,000000	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	D	0,005952	0,017857	0,029762	0,017857	0,000000	0,000000
SW	D	0,005952	0,047619	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000
WSW	D	0,023810	0,029762	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	D	0,005952	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	D	0,029762	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	E	0,035714	0,005952	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	E	0,017857	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000
NE	E	0,023810	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	E	0,035714	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	E	0,005952	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	E	0,029762	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	E	0,029762	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000

DIREÇÃO DO VENTO	CLASSE DE ESTABILIDADE	VELOCIDADE DO VENTO					
		(m/s)					
		1-3	4-6	7-10	11-16	17-21	>21
NW	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	B	0,011905	0,035714	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	C	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	C	0,000000	0,023810	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	C	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	D	0,005952	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	D	0,017857	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	D	0,083333	0,047619	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	D	0,047619	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	D	0,029762	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	D	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000

DIREÇÃO DO VENTO	CLASSE DE ESTABILIDADE	VELOCIDADE DO VENTO					
		(m/s)					
		1-3	4-6	7-10	11-16	17-21	>21
SSE	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	A	0,000000	0,017857	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	A	0,000000	0,035714	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	B	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	B	0,005952	0,017857	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	B	0,005952	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	B	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	C	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	C	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	C	0,000000	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	C	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	D	0,000000	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	D	0,000000	0,005952	0,017857	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000

DIREÇÃO DO VENTO	CLASSE DE ESTABILIDADE	VELOCIDADE DO VENTO					
		(m/s)					
		1-3	4-6	7-10	11-16	17-21	>21
NNE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	D	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	D	0,005952	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	D	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	D	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	D	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	D	0,000000	0,011905	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000
SW	D	0,023810	0,005952	0,011905	0,017857	0,000000	0,000000
WSW	D	0,035714	0,011905	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000
W	D	0,065476	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	D	0,017857	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	E	0,023810	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	E	0,005952	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	E	0,017857	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	E	0,059524	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	E	0,023810	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	E	0,011905	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	E	0,017857	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	E	0,035714	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	E	0,065476	0,005952	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	E	0,101190	0,011905	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000
W	E	0,047619	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	E	0,017857	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000

DIREÇÃO DO VENTO	CLASSE DE ESTABILIDADE	VELOCIDADE DO VENTO					
		(m/s)					
		1-3	4-6	7-10	11-16	17-21	>21
E	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	D	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	D	0,041667	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	D	0,089286	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	D	0,017857	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	D	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	E	0,101190	0,113095	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	E	0,083333	0,041667	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	E	0,005952	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000

DIREÇÃO DO VENTO	CLASSE DE ESTABILIDADE	VELOCIDADE DO VENTO					
		(m/s)					
		1-3	4-6	7-10	11-16	17-21	>21
WNW	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	A	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	B	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	C	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	D	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	D	0,000000	0,005952	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000
NE	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	D	0,000000	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	D	0,047619	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	D	0,083333	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000

DIREÇÃO DO VENTO	CLASSE DE ESTABILIDADE	VELOCIDADE DO VENTO (m/s)					
		1-3	4-6	7-10	11-16	17-21	>21
W	D	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	D	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	D	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	E	0,047619	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	E	0,029762	0,005952	0,017857	0,011905	0,000000	0,000000
NE	E	0,011905	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	E	0,011905	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	E	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	E	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	E	0,017857	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	E	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	E	0,017857	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	E	0,071429	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	E	0,089286	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	E	0,011905	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	E	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	E	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
N	F	0,017857	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNE	F	0,023810	0,000000	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000
NE	F	0,023810	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ENE	F	0,047619	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
E	F	0,017857	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
ESE	F	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SE	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSE	F	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
S	F	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SSW	F	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
SW	F	0,029762	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WSW	F	0,083333	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
W	F	0,035714	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
WNW	F	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NW	F	0,005952	0,005952	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000
NNW	F	0,011905	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000	0,000000

APÊNDICE II – FOTOGRAFIAS



Figura 1 - Sistema de preparo das amostras localizado no Departamento de Física da Universidade de Lund, em Lund na Suécia. Nesta foto, o subsistema de produção de CO_2 está em evidência.

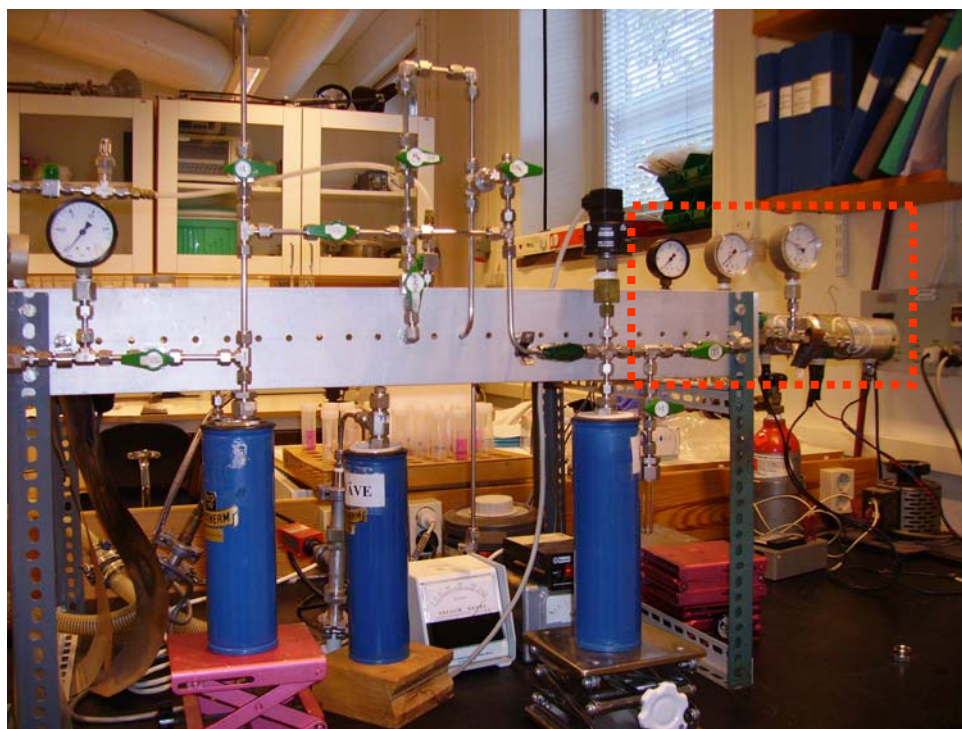


Figura 2 - Sistema de preparo das amostras localizado no Departamento de Física da Universidade de Lund, em Lund na Suécia. Nesta foto, o subsistema de grafitação está em evidência.



Figura 3 - Equipamento utilizado para prensar as amostras nos pequenos *holders* de alumínio para leitura no espectrômetro de massa com acelerador com um único estágio de aceleração (SSAMS)



Figura 4 - Sistema de espectrometria de massa com aceleração (SSAMS) localizado no Laboratório de Datação Radiocarbônica do Departamento de Geologia da Universidade de Lund, em Lund, na Suécia.



Figura 5 - Sistema de espectrometria de massa com aceleração (SSAMS)



Figura 6 - Deck 250 kV onde ocorre a aceleração do SSAMS



Figura 7 - Central Nuclear Almirante Álvaro Alberto (2004)

ARTIGO I

Determination of ^{14}C in gaseous effluents of Brazilian nuclear power plants

Cíntia Melazo Dias¹, Iêda Gomes Nicóli¹, Kurt Vogl², Roberto Ventura Santos³, José Marcus de Oliveira Godoy⁴, Isaías Meirelles⁵, Miguel S. Pinto⁵

¹National Commission of Nuclear Energy (CNEN), Brasilia, Brazil

²Federal Office of Radioprotection, Munich, Germany

³Institute of Geology, Brasilia University, Brasilia, Brazil

⁴Institute of Radioprotection and Dosimetry (IRD), Rio de Janeiro, Brazil

⁵Eletrobrás Termonuclear S.A. (Eletronuclear), Angra dos Reis, Brazil

Abstract

Nuclear power plants release ^{14}C during operation. The ^{14}C production occurs in the fuel, moderator, coolant and structural material by reactions of neutrons and ^{17}O and ^{14}N , mainly. It is released as airborne effluents in various chemical forms such as hydrocarbons, CO_2 and CO . The predominant form depends on the type of reactors. In PWRs, for example, it is the hydrocarbons. Because of long half-life ($T_{1/2} = 5730$ years) and biological importance of ^{14}C (it incorporates in the food chain by means of photosynthesis), it is of interest to quantify the amounts released by nuclear industry.

The aim of this research was to determine the ^{14}C concentration in gaseous effluents of Angra I and Angra II, two reactors of PWR type of the Nuclear Central Admiral Álvaro Alberto (CNAAA), situated in Angra dos Reis city, state of Rio de Janeiro. A device was built in order to sample the effluents from Angra I. Both hydrocarbons (total ^{14}C) and CO_2 fractions were monitored. The system was implemented in June, 2005. For Angra II, a commercial device was already working since the initial operation of the plant (2001). However, only the total ^{14}C was sampled. Liquid scintillation was the method employed for the measurements.

In spite of some deviations of procedures, for Angra I, the ^{14}C as $^{14}\text{CO}_2$ could be assessed. The measured concentration of 14 Bq/m^3 agree well with the concentration released by other PWRs. A similar German Westinghouse nuclear power plant of PWR type, for example, showed a value of 12 Bq/m^3 . The ^{14}C as total ^{14}C could not be assessed. For Angra II, the normalized values were of 0.01, 0.11, 0.16 and $0.29 \text{ TBq/GWyear}^{-1}$, for 2001, 2002, 2003 and 2004, respectively. Comparing to German nuclear power plants of PWR type, only in 2004 there was a good agreement between measurements ($0.28 \text{ TBq/GWyear}^{-1}$, in 99, for the German plants). Considering the mean of $0.14 \text{ TBq/GWyear}^{-1}$, it is two times lower than the measured for German PWRs, but it is still in the range of expected released concentrations for PWRs, which is $0.11\text{-}0.22 \text{ TBq/GWyear}^{-1}$.

1 INTRODUCTION

Carbon-14 (^{14}C) is the only naturally occurring radioactive isotope of carbon. It is produced in the upper atmosphere mainly *via* interaction between neutrons (generated by cosmic radiation) and nitrogen atoms ($^{14}\text{N}(\text{n}, \text{p})^{14}\text{C}$). According to the United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (Unsear, 2000), the natural production of ^{14}C is about 1,500 TBq per year.

^{14}C is also produced artificially in nuclear power plants, even though to a lesser extent than natural production. It is emitted as CO, CO₂ or hydrocarbons, being the dominant chemical form dependent on the type of reactor. The production of ^{14}C in all types of nuclear reactors occurs *via* capture of fission neutrons by atoms of oxygen, nitrogen and carbon present in the fuel, cladding, coolant, moderator and structure material (Davis, 1979, Yim and Caron, 2005). The main reactions and the amount of ^{14}C produced depend, however, on the design of the nuclear reactors and the total energy output.

In the nuclear fuel cycle, the reprocessing facilities are the largest ^{14}C producers. Considering nuclear power plants, the rate of production is in the following order: CANDU¹>RBMK²>BWR³>PWR⁴ (Unsear, 2000). Based on available studies, ^{14}C concentration around nuclear facilities can be higher than natural background values (e.g. Obelic *et al.*, 1986; Levin *et al.*, 1988; Loosli and Oeschger, 1989; Stenström, 1996a; Milton and Kramer, 1998 and Magnusson *et al.*, 2004, Shinohara, 2004). Since ^{14}C is easily incorporated in the food chain by photosynthesis, long-term irradiation has become an important issue, thus justifying monitoring control programs. Estimates indicate that ^{14}C emission by nuclear facilities may account for 80% of the committed effective population dose for the next 10,000 years (Unsear, 2000; BNFL, 2000).

The first reports on ^{14}C emissions by nuclear industry and its hazardous effects were published in the 70's (Magno, 1974; Martin, 1974; Kelly *et al.*, 1975; Pochin, 1976; Schwibach and Jacobi, 1976; Environmental Protection Agency (EPA), 1976). These studies led to monitoring programs aiming to establish mechanisms to decrease ^{14}C emission rates of nuclear power plants, which are nowadays strongly recommended by the International Agency of Energy Atomic (IAEA). Based on these recommendations, many countries have

¹ Canadian Deuterium Uranium

² Channelized Large Power Reactor

³ Boiling Water Reactor

⁴ Pressurized Water Reactor

their own rules that turn ^{14}C -monitoring programs obligatory (Wallberg and. Moberg, 2002; IAEA n° 421; 2004 and Sohn *et al.*, 2004, Shinohara, 2004).

The Brazilian nuclear central, named Nuclear Central Admiral Álvaro Alberto (CNAAA) has two Light Water Reactors (LWRs) of the Pressurized Water Reactor (PWR) type nuclear power plants. In PWRs, the most important ^{14}C production follow the reactions ($^{17}\text{O}(n,\alpha)^{14}\text{C}$) and ($^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$), in which oxygen is present in the coolant and fuel, and nitrogen is present as an impurity in the fuel, coolant and structural material. Considering all ^{14}C produced, only about the one produced in the coolant is expected to be released in gaseous effluents during normal operation: approximately 80% as hydrocarbons and 20% as CO_2 (Kunz, 1985; Hesbol *et al.*, 1990; Vance *et al.*, 1995; Stenström *et al.*, 1996b, Vokal and Kobal, 1997, Uchrin *et al.*, 1998 and IAEA n° 421, 2004).

This investigation aims to determine the ^{14}C concentrations in gaseous effluents of Angra I. The results are reported together with results of the ^{14}C releases from Angra II that have been measured since 2001. Measurements in Angra I were performed by a device that continuously sampled the gaseous effluents released in the vent stack, while measurements in Angra II were performed by an automated system that monitor ^{14}C and ^3H abundance. These data will be integrated in order to evaluated ^{14}C emission by Brazilian nuclear facilities as well as its dispersion in the vicinities of CNAAA.

2 THE NUCLEAR POWER PLANTS

The CNAAA has two nuclear power plants, located in Itaorna beach, 133 km East of the Rio de Janeiro city. The PWR power plants are surrounded by the Serra do Mar mountains at north and by the sea at the south (Figure 1).

The Angra I power plant is a Westinghouse 657 MW_{el} reactor that started commercial operation in 1985. In this reactor, ^{14}C occurs as dissolved hydrocarbons and as CO_2 in the coolant, together with other impurities of fission and activated corrosion products. A purification system connected to the primary circuit continuously treats the coolant by removing the hydrocarbons, CO_2 and impurities. The first step is the resin purification system. Resins will trap any ionic species, including the ^{14}C ones. After that, the coolant is directed to a chemical and volumetric control tank (TVQ), which is under highly reducing conditions. This TVQ is degassed and the gases are stored in tanks (TDG) until the decay of short-lived radionuclides, and then released to the atmosphere through the power plant vent stack. There is no monitoring system to evaluate the release of ^{14}C by the vent stack. Because of the

reducing conditions of the coolant the ^{14}C released is mainly as hydrocarbons. The reason for these high amounts of hydrogen is to prevent corrosion of the primary circuit's pipeline. Oxygen (an impurity resulting from radiolyses process in the reactor) will react with hydrogen to form additional water.

Other discharge pathways of ^{14}C are the ventings of the containment and auxiliary buildings. Occasionally, leaking of ^{14}C from various reactor components can occur in these buildings. For both, the gases are vented directly to the vent stack. The main discharge pathway varies according to the design of nuclear power plant. Kunz (1985), for example, in his research on ^{14}C discharges at two PWR's reactors, found for one of them that 42% of ^{14}C was released through gas decay tanks and, for the other one, 78% was released through the containment building.

Angra II is a Siemens 1350 MW_{eI} reactor that has been in operation since February 2001. It uses the same process as Angra I, but with no decay tanks. The gases are continuously released to the vent stack after the degassing process within the TVQ. Releases from containment and auxiliary buildings due to leakage of ^{14}C can also happen.

2.1 SAMPLING

^{14}C decays to ^{14}N by emission of a very low energy β -radiation (the majority of β particles decay with an average energy of 49.5 keV, although the maximum energy is 156 keV). Because of its low energy radiation, other nuclides of the gaseous effluents that have more energetic β particles, such as noble gases, can interfere in the ^{14}C determinations. Therefore, procedures have been developed to separate ^{14}C from these nuclides (Stenström, 1995a; IAEA n°421, 2004). Aiming to overcome these interferences, the present study used molecular sieves (Bol *et al.*, 1995) in order to trap the released CO_2 .

2.1.1 Angra I

A device was built especially for the ^{14}C sampling in the vent stack of Angra I, based on the monitoring panel of Angra II. The difference between them is that in Angra I both $^{14}\text{CO}_2$ and hydrocarbons are sampled and in Angra II only the $^{14}\text{CO}_2$ (hydrocarbons are catalytically transformed into $^{14}\text{CO}_2$). The system is fully controlled by valves, vacuumeters (-1 to 0 bar) and a time event recorder. All components of the system are arranged in a 950 x 760 x 300 mm cabinet (Figure 2).

According to the schematic drawing shown in Figure 3, the gas is pumped into the system by a diaphragm pump. In the first step it is filtered (particulate filter) (PO) and flushed throughout silica gel (SG1) in order to remove humidity. In the second step, the pumped gas is split into two pathways. In the first pathway, a cylinder containing 400 g of molecular sieve (SiO_2) 13X traps the CO_2 (MS1) (usually with 90% efficiency) This pathway also has another filter (particulate) (P1), a rotameter (FR1) and a needle valve (V1) for the measurement and controlling of the flow rates, respectively. Thereafter, the gas returns to the vent stack.

In the other pathway, the pumped gas passes through a 0.5% $\text{Pd}/\text{Al}_2\text{O}_3$ catalyst (Heraeus K-0142) within a 450°C oven, resulting in the combustion of the organic compounds. Then the gases pass through a silica gel container (SG2) followed by another cylinder containing 400 g of molecular sieve (MS2), in which the CO_2 is trapped.

Samples were obtained every two weeks during nine months. In order to recover the adsorbed CO_2 , the molecular sieves were processed in the chemistry laboratory of Angra II. For further details see the Sample Preparation and Measurements section.

2.1.2 Angra II

In Angra II, the ^{14}C -sampling device was that of the nuclear power plant's own controlling systems and has been working since the facility started commercial operation in 2001.

The system can be divided into two stages: the pressure (a) and metering/measurement section (b) (Figure 4). The pressure stage is to adapt the measurement system to the pressure and volume conditions of the plant operator measuring section (Siemens's Manual of Operating and Maintenance). A diaphragm pump (3) conveys the air through microfilters (1) and metering valve (2), the latter used to adjust the volume of air set on the flowmeter (5). Dwell pressure control valves are used (4/6.1) in order to maintain constant the flow rate. The input and output pressure of the metering/measurement section is maintained by 6.1/6.2 and 7.1/7.2, respectively. This guarantees that the same conditions will be present for metering and adsorption steps.

In the measuring section, the piston pump unit, composed of reversing magnets (8 and 9), solenoid valves (10 and 11) and a pneumatic cylinder (12), generates pulses to extract a defined volume of the gas available from the pressure stage. This defined amount of gas, then, is conveyed to an oven (13) where all hydrocarbons will be converted to CO_2 , through a $\text{Pd}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (Heraeus E-232-P) catalyst at 450°C . After, the gas is directed to a cylinder

containing 300 mg of molecular sieve grains (13X) (14). Then, the gas returns to the pressure stage and, finally, it flows back to vent stack.

The volume taken per each measurement period is, approximately, 1.5 m^3 .

This sampling system is controlled by a programmable logic controller (PLC) Simatic S5 with EPROM. It is possible to select four different pulse rates and measurement periods. In Angra II, they are of, approximately, seven minutes and $\frac{1}{4}$ of the year, respectively.

Through PLC it is possible to monitor power and pump failures, leakages, excess of pressure and temperature deviations. All components of the system are arranged in a steel cabinet of 1200 x 800 x 300 mm dimensions. A chronometer counts the sampling time.

2.2 SAMPLE PREPARATION AND MEASUREMENTS

Samples were collected every 15 days for Angra I and every 3 months for Angra II. Before measurements, they were regenerated by heating the molecular sieves at 380°C , under which conditions the adsorbed CO_2 is released. The regeneration system consists of different components connected by rubber hoses in the following order: nitrogen cylinder (carrier gas) \rightarrow pressure reducer \rightarrow fluxmeter \rightarrow container with molecular sieve \rightarrow oven \rightarrow condenser \rightarrow a Friedrichs bottle containing 300 ml of saturated $\text{Ba}(\text{OH})_2$ solution (trap to the released CO_2). The extracted CO_2 is drawn to the Friedrichs bottle where it reacts with $\text{Ba}(\text{OH})_2$ solution and precipitates BaCO_3 , which is then filtered (150 mm filter), dried for 24 hours at 50°C , and weighed. The efficiency of this system is approximately 90%.

The ^{14}C activity measurements were performed by scintillation counting (LSC) by using a Beckman LS 6500 multipurpose. For each measurement, 1 g of BaCO_3 sample was mixed in a glass vial with 15ml of a scintillation solution (Beckman Ready Solvent HP). In order to measure the analysis blank, another glass vial was prepared with 15 ml of the same solution and a Merk BaCO_3 pro analysis grade (blank). Prior to analysis the vials were homogenized and kept for 120 minutes in dark conditions in order to eliminate chemoluminescence effect. Each measurement lasted 120 minutes. The lowest detection limit was calculated at 0.17 Bq/m^3 and the analytical errors varied between 0.1 and 0.5 Bq/m^3 .

3 RESULTS AND DISCUSSION

3.1 ANGRA I

Under adequate conditions of flow rate, temperature and humidity, CO₂ adsorption efficiency by 13X molecular sieve (1 nm pore) may be higher than 95%, that is, 100 g of the molecular sieve will adsorb 5 g of CO₂. Humidity, however, has a strong influence on the CO₂ adsorption efficiency. For example, if a 100 g of molecular sieve adsorb 10 g of water, it will adsorb only about 1 g of CO₂.

Table 1 shows detailed data of the sampling process. The water content within the molecular sieves (see the Recovered water column) shows that humidity conditions were high, reaching up to 78 ml of H₂O. Because CO₂ adsorption efficiency is strongly dependent on humidity, these results may explain the low amount of recovered BaCO₃ (see the BaCO₃ mass column, especially MS1 and MS2 columns, in Table 1). This observation indicates, therefore, that the sampled volumes were not those stated in Sampled volume column of Table 1, which were calculated based on the flow rate of the monitoring panel.

But, even with an evident breakthrough of water in the system, it was possible to assess ¹⁴C concentrations in gaseous effluents. According to the calculations used to determine the activities released (see the equation below), the real volumes sampled have to be assessed and, in order to do so, the recovered masses must be divided by 3.2 g (see last column of Table 1).

$$C = A * M / 60 * m * V$$

where:

C = Concentration of ¹⁴C releases (Bq/m³)

A = Activity of the sample (DPM)

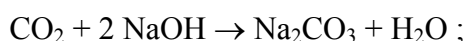
M = Recovered mass of BaCO₃ (g)

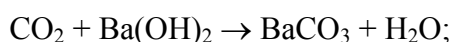
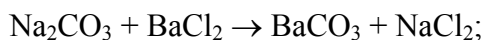
DPM/60 = Bq

m = Amount of BaCO₃ sample used to measure in the LSC (g)

V = Sampled air volume (m³)

This 3.2 g means the amount of BaCO₃ contained in 1 m³ of air, considering the CO₂ content of gaseous effluents similar to the atmosphere (370 ppm). This concentration corresponds to 0.73 g/m³. The BaCO₃ is produced *via* reactions of CO₂ with NaOH (or directly with Ba (OH)₂) as follows:





In both cases, 1 mol of CO_2 results in 1 mol of BaCO_3 . The mol mass of CO_2 is 44 g, the mol mass of BaCO_3 is 197 g. Thus, from 1 m³ of air, one gets about 0.73 g of CO_2 and about 3.2 g of BaCO_3 . The ^{14}C concentrations calculated using the real air volumes sampled can be seen in Table 2.

For the ^{14}C as $^{14}\text{CO}_2$, the mean value was calculated in 14 Bq/m³. This concentration agrees well with activity of ^{14}C as CO_2 of Obrigheim, 300 MWe, an old Westinghouse nuclear power plant that is of 12 Bq/m³(⁵). Another similar value is of 24 Bq/m³, found for a PWR (915 MW) in Sweden (Stenstrom, 1996b). Since it was not possible to determine the concentrations for long time spans, normalized values weren't calculated.

Considering total ^{14}C (hydrocarbons+ $^{14}\text{CO}_2$), the concentrations decreased with time resulting in low ratios of hydrocarbons form and $^{14}\text{CO}_2$, when it should be the opposite, since hydrocarbons are more abundant than CO_2 in PWRs (Table 2). Furthermore, the mean value measured was too low (33 Bq/m³) when compared to others LWRs worldwide. In Sweden, for example, a mean of 200 Bq/m³ (PWR of 915 MW_{el} output) was measured by Stenstrom *et al.*, (1996b). Uchrin *et al.* (1998) found for a Westinghouse PWR (632 MW_{el}) a mean of 90 Bq/m³. It seems that, in this part of the sampling process, these results can be related to the catalyst step. It is known that humidity had influenced the monitoring in this study and that water could had reached the catalyst lowering, drastically, its efficiency (Vogl, 2006, personal communication)⁵. Since it is not possible to estimate this error, even with the corrected volumes sampled, the measurements of ^{14}C concentration as total ^{14}C would still remain uncertain.

3.2 ANGRA II

Detailed data of the sampling in Angra II are shown in Table 3. It is noteworthy that, for some periods, the sampling efficiency was low (see BaCO_3 masses and Air volumes sampled columns of Table 3).

⁵ Personal communication (2006) from K. Vogl, The Federal Office for Radiation Protection (BFS), Bundesamt für Strahlenschutz, PO BOX 10 01 49, D-38201 Salzgitter, Federal Republic of Germany.

The reasons for such low efficiencies in some periods at Angra II are not so clear. One hypothesis could be humidity but, since there is no available data about recovered water volumes during the years sampled, further tests would be needed.

Another possibility could be related to the sample preparation in the regeneration system (see Sample Preparation and Measurements section). The hot extraction of water and CO₂ by the N₂ stream appears to be quite reliable. Usually, according to international experience, the recovery is about 95 %. Indeed, during sampling in Angra I, the system was tested and the results yielded approximately 90 % of recovery. However, for Angra II measurements, there is no record about recovery tests. Vogl (2006, personal communication)⁵ stated that the efficiency of the Friedrich washing bottle can decrease with time. This happens because the BaCO₃ precipitates directly in the Friedrich washing bottle, since the Ba(OH)₂ is used instead of NaOH, and plug the spiral, even to the point that can't be cleaned. So the air stream, or part of it, can flow outside the spiral decreasing the efficiency of the process.

In spite of that, assuming the CO₂ concentration of gaseous effluents in Angra II similar to the atmospheric value, ¹⁴C activities can be assessed in the same way applied to Angra I. The measured ¹⁴C activity concentration in the air of the vent stack varied between ~ 5 Bq/m³ in 2001, the first year of commercial operation, and 131 Bq/m³, in 2004 (Table 4). The release rate, calculated based on the activity measurements and the flow rate of the vent stack (approximately 62.5 m³/s), can be seen in Figure 5. Considering the power levels, the normalized values were 0.01, 0.11, 0.16, and 0.29 TBq/GWyear for 2001, 2002, 2003, and 2004, respectively, with a mean of 0.14 TBq/GWyear.

It is known that about all ¹⁴C produced in the coolant of PWRs is released to the environment as airborne in gaseous effluents. According to Bush *et al.* (1984) and Vance *et al.* (1995), this amount is in a range of 0.11-0.23 TBq/GWyear and, indeed, for the period of 1995-1999, data of other countries shows that PWR's power plants had released a mean of 0.20 TBq/GWyear (Van der Strich and Janssens, 2001). In Sweden, for example, the mean activity measured during 1992 was 200 Bq/m³, which gave a ¹⁴C release rate of 0.27 TBq/GWyear (for a 915 MW_{eI} PWR reactor) (Stenström, 1996b). In Germany, the mean for PWR's plants was of 0.28 TBq/GWyear, in 1999 (Van der Stricht and Janssens, 2001). Therefore, although the mean value is in the expected range, when compared to the mean measured activities of other nuclear power plants, Angra's result is two times lower.

In terms of releases per year (TBq/year), for Angra II (Figure 6), the highest activity measured in this study, 0.18 TBq/year, was almost four times lower than the highest registered for one German PWR's, in 1999, which was 0.7 TBq/year (both power plants have

similar electrical output) (Table 8) (Van der Stricht and Janssens, 2001). The mean value for the German power plants, in 1999, was of 0.25 TBq/year and for Angra II, considering four years sampling, was 0.10 TBq/year.

As stated before, the amount of ^{14}C produced, expressed in terms of activity, depends on the concentrations of the nuclides O-16 and N-14 as well as on the neutron fluence. The produced thermal and also electric energy is loosely proportional to the integral neutron fluence in the core. Therefore, there is some relationship between the thermal or electric energy produced and the amount of generated ^{14}C .

Since gaseous effluents in Angra II are continuously discharged through vent stack, it is expected to find this proportional relation of ^{14}C release rate and power levels of reactor. However, so far, this trend was not observed in this study (Figure 7). Joshi *et al* (1987) and Stenström (1995b) registered such positive correlation. However, Maruska (1981) found a poor correlation between ^{14}C releases and operational data at PNGS-A, in Canada.

It is also expected a higher ^{14}C releases during outages because in these periods the contention building and gas decay tanks are continuously ventilated (Kunz, 1985 and Stenström, 1995b). As indicated in Figure 5, the periods of July (2003), April and October (2004) showed the highest activities released. For July (2003), that corresponds to the sampling period of July, August and September, there was no correlation because the outage had occurred in April/May (15/04 to 10/05-2003). In 2004, since the outage was in May/June (13/05 to 11/06), there was a correlation to the April sampling period, which corresponds to the months April, May and June.

4 CONCLUSIONS

The determination of ^{14}C concentration in gaseous effluents of both reactors had similar monitoring processes. Detailed data, however, have indicated, for some time spots, a low efficiency in the sampling. Humidity, which strongly influences the adsorption capacity of molecular sieves, leading to reduced BaCO_3 mass recovery, and thus, reduced sampled air volumes, and leaking in the regeneration systems may explain the low efficiencies achieved.

In spite of that, based on international experience and empirical data, the ^{14}C activities in gaseous effluents of both facilities could be assessed. The values showed that the releases are comparable to other PWR's worldwide. For Angra, the releases of ^{14}C as CO_2 was of 14 Bq/m^3 , which is in accordance with data of German and Swedish nuclear power plants. The normalized values couldn't be calculated because of the short sampling period

(nine months). For Angra II, in 2004, the release, which was $0.29 \text{ TBq/GWyear}^{-1}$, was very similar to data of German power plants registered in 1999 ($0.28 \text{ TBq/GWyear}^{-1}$). The mean (related to 2001, 2002, 2003 and 2004 sampling period) is, however, lower than expected but still within the range of PWR's emissions.

5 ACKNOWLEDGMENTS

The National Commission of Nuclear Energy (CNEN), the Brazilian nuclear regulatory body, provided the funding for this study. We are very grateful to Dr. Kurt Vogl, who was extremely kind in providing us guidance and assistance throughout this investigation. We also wish to thank the Eletrobrás Termonuclear S.A. - Eletronuclear, the company that operates the power plants, which gave support to the development of this work.

6 REFERENCES

BRITISH NUCLEAR FUELS (BNFL). **Discharges and monitoring of the environment in the UK**. England, 2002. Technical Report.

BOL, R. A. and HARKNESS, D. D. The use of zeolite molecular sieves for trapping low concentrations of CO_2 from environmental atmospheres. **Radiocarbon**, v. 37, n. 2, p. 643-647, 1995.

BUSH, R. P. Carbon-14 waste management. A review. **Radioactive Waste Management** (Proc.Int. Con. SEATTLE, WA, 1983), vol 2 p. 441-454, Viena, 1984.

ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY (EPA). Final Environmental Statement: 40 CFR 190 environmental radiation protection requirements for normal operations of activities in the uranium fuel cycle (520/4-76-016), 1976. In: SCHWIBACH, J.; RIEDEL, H. and BRETSCHNEIDER, J. **Investigations into the emission of carbon-14 compounds from nuclear facilities**. Luxembourg, 1978. 63 p. Report of Commission of the European Communities.

HESBOL, R. PUIGDOMENECH, I. and EVANS, S. **Source terms, isolation and radiological consequences of carbon-14 waste in Swedish SFR repository**. SKB Technical Report 90-02, 1990.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY-IAEA- N° 421 **Management of waste containing tritium and carbon-14**. Technical Report Series n° 421, 2004.

JOSHI, M. L.; RAMAMIRTHAN, B. and SOMAN, S. D. Measurement of $^{14}\text{CO}_2$ emission rates from a pressurized heavy water reactor. **Health Physics**, vol. 52, n. 6, p.789-791, 1987.

Jr. DAVIS, W. Carbon-14 productions in nuclear reactors. In: CARTER, M. W., MOGHISSI, A. A. and KAHN, B.(Eds.). **Management of low-level radioactive waste**. vol. 1. Oxford Pergamon Press, p.151-191, 1979.

KELLY, G.N.; JONES, J.A.; BRYANT, P.M.; and HARLEY, P. The predicted radiation exposure of the population of the European Community Resulting from discharges of krypton-85, tritium, carbon-14 and iodine-129 from nuclear power industry to the year 2000. Commission of the European Communities, Luxembourg. DocV/2676/75, 1975. In: SCHWIBACH, J.; RIEDEL, H. and BRETSCHNEIDER, J. **Investigations into the emission of carbon-14 compounds from nuclear facilities.** Luxembourg, 1978, 63 p. Report of Commission of the European Communities.

KUNZ, C. Carbon-14 discharge at three light-water reactors. **Health Physics**, vol. 49, n. 1, p. 25-35, 1985.

LEVIN, I.; KROMER, B.; BARABAS, M. and MÜNNICH, K. O. Environmental distribution and long-term dispersion of reactor ^{14}C around two German nuclear power plants. **Health Physics**, vol. 54, n. 2, p. 149-156, 1988.

LOOSLI, E. H. and OESCHGER, H. ^{14}C in the environment of Swiss nuclear installations. **Radiocarbon**, vol. 31, n 3, p. 747-753, 1989.

MAGNO, P.J.; NELSON, O.B. and ELLETT, W.H. A consideration of the significance of carbon-14 discharges from the nuclear power industry. 13th AEC Conference Air Cleaning, 1974, San Francisco. In: SCHWIBACH, J.; RIEDEL, H. and BRETSCHNEIDER, J. **Investigations into the emission of carbon-14 compounds from nuclear facilities.** Luxembourg, 1978. 63 p. Report of Commission of the European Communities.

MAGNUSSON, A., STENSTRÖM, K., SKOG, G., ADLIENE, D., ADLYS, G., HELLBORG, R., OLARIU, A., ZAKARIA, M., RÄÄF, C. and MATTSSON, S. Levels of ^{14}C in the terrestrial environment in the vicinity of two European nuclear power plants. **Radiocarbon**, vol. 46, n 2, p. 863-868, 2004.

MARTIN, A. and APSIMON, H. Population exposure and the interpretation of its significance. Proceedings of the seminar on radiological safety, evaluation of populations doses and application of radiological safety standards to man and the environment, 1974, IAEA, Portoroz. In: SCHWIBACH, J.; RIEDEL, H. and BRETSCHNEIDER, J. **Investigations into the emission of carbon-14 compounds from nuclear facilities.** Luxembourg, 1978. 63 p. Report of Commission of the European Communities.

MARUSKA, R. A correlation of measured carbon-14 emissions and station operating parameters. Ontario Hydro Report RMEP-IR-03483-1, with addendum, 1982. In: MILTON, G. M.; KRAMER, S. J.; BROWN, R. M.; REPTA, C. J. W.; KING, K. J. and RAO, R. R. Radiocarbon dispersion around Canadian nuclear facilities. **Radiocarbon**, vol. 37, n. 2, p. 485-496, 1995.

MILTON, G. M. and KRAMER, S. J. Using ^{14}C as a tracer of carbon accumulation and turnover in soils. **Radiocarbon**, vol. 40, n.2, p. 999-1011, 1998.

OBELIC, B.; KRAJCAR-BRONIC, I.; SRDOC, D. and HORVATINIC, N. Environmental ^{14}C levels around the 632 Mw_{el} nuclear power plant KRSKO in Yugoslavia. **Radiocarbon**, vol. 28(2A), p.644-648, 1986.

OTLET, R. L.; FULKER, M. J. and WALKER, A. J. Environmental impact of atmospheric carbon-14 emissions resulting from the nuclear energy cycle. In: TAYLOR, R. E.; LONG, A. and KRA, R. S. (eds). Radiocarbon after four decades: an interdisciplinary perspective. New York, Springer Verlag, 1992, p.: 519-534. In: BUZINNY, M.; KOVALYUKH, N.; LIKHTARJOV, I.; LOS, I., NESVETAJLO, V.; PAZDUR, M. F.; SKRIPKIN, V.; SHKVORETS, O. and SOBOTOVICH, E. Ecological chronology of nuclear fuel cycle sites. **Radiocarbon**, vol. 37, n. 2, p. 469-473, 1995.

POCHIN, E. E. Estimated population exposure from nuclear power production and other radioactive sources. Nuclear Energy Agency Organization for Economic Co-operation and Development, 1976. In: SCHWIBACH, J.; RIEDEL, H. e BRETSCHNEIDER, J. **Investigations into the emission of carbon-14 compounds from nuclear facilities.** Luxembourg, 1978. 63 p. Report of Commission of the European Communities.

SCHWIBACH, J. and JACOBI, W. Die umwelt-und sicherheitsproblematik. Symposium über die entsorgung der kernenergie, 1976. In: SCHWIBACH, J.; RIEDEL, H. e BRETSCHNEIDER, J. **Investigations into the emission of carbon-14 compounds from nuclear facilities.** Luxembourg, 1978. 63 p. Report of Commission of the European Communities.

SHINOHARA, K. Measurement and behavior of ^{14}C and ^{129}I in the environment. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, vol 260, n 2, p.265-271, 2004.

SHINOHARA, K. Assessment of radiological effects on the regional environment due to operation of the Tokai Reprocessing Plant. **Journal of Environmental Radioactivity**, 72, p.299-322, 2004.

SOHN, W., KANG, D. W., and KIM, W.S. An estimate of carbon-14 inventory at Wolsong nuclear power plant in the Republic of Korea. **Journal of Nuclear Science and Technology**, vol. 40, n 8, p.604-613, 2003.

SOHN, W.; KANG, D. and CHI, J. Approaches for reducing Carbon-14 stack emissions from KOREACANDU nuclear power plant. **Journal of Nuclear Science and Technology**, vol 41, n 2, p.235-246, 2004.

STENSTRÖM, K. **New applications of ^{14}C measurements at the Lund AMS facility.** PhD Dissertation. Lund University Press, Lund, 1995a.

STENSTRÖM, K.; ERLANDSON, B.; HELLBORG, R.; WIEBERT, A.; GÖRAN, S.; VERSANEN, R.; ALPSTEN, M. and BURMAN, B. A one year study of the total air-borne ^{14}C effluents from two Swedish light-water reactors, one boiling water and one pressurized water reactor. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry Articles**, vol. 198, n. 1, p. 203-213, 1995b.

STENSTRÖM, K.; ERLANDSON, B.; HELLBORG, R.; WIEBERT, A. and SKOG, G. Environmental levels of carbon-14 around a Swedish nuclear power plant measured with accelerator mass spectrometry. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**. 113, p. 474-476, 1996a.

STENSTRÖM, K.; ERLANDSON, B.; HELLBORG, R.; WIEBERT, A. and SKOG, G. Determination of the $^{14}\text{CO}_2$ and the total airborne ^{14}C releases from two Swedish light-water reactors using accelerator mass spectrometry. **Radioactivity and Radiochemistry**, vol.7, n. 1, p.32-36, 1996b.

UCHRIN, G.; HERTELEND, E.; VOLENT, G.; SLAVIK, O.; MORÁVEK, J.; KOBAL, I. and VOKAL, B. ^{14}C measurements at *PWR*-type nuclear power plants in three middle European countries. **Radiocarbon**, vol. 40, n. 1, p. 439-446, 1998.

UNITED NATIONS. **Sources and Effects of Ionizing Radiation. Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation – UNSCEAR.** New York, 2000. Report to the General Assembly, with scientific annexes, vol I.

VAN DER STRICHT, S. and JANSSENS, A. Radioactive effluents from nuclear power stations and nuclear fuel reprocessing plants in the European Union, 1995-1999. In: **Radiation Protection 127.** Office for Official Publications of the European Communities, Luxembourg, 2001.

VANCE, J. N.; CLINE, J. E. and ROBERTSON, D. E. **Characterization of carbon-14 generated by the nuclear power industry**. EPRI TR-105715, EPRI, Electric Power Research Institute, Palo Alto, California, 1995.

YIM, MS. and CARON, F. Life cycle and management of carbon-14 from nuclear power generation. **Progress in Nuclear Energy**, p.1-35, 2005, in press.

WALLBERG, P. and MOBERG, L. Evaluation of 20 years of environmental monitoring data around Swedish nuclear installations. **Journal of Environmental Radioactivity**, 63, p. 117-133, 2002.

VOKAL, B. and KOBAL, I. Radiocarbon releases at the KRSKO nuclear power plant. **Radiocarbon**, vol.39, n. 3, p. 285-292, 1997

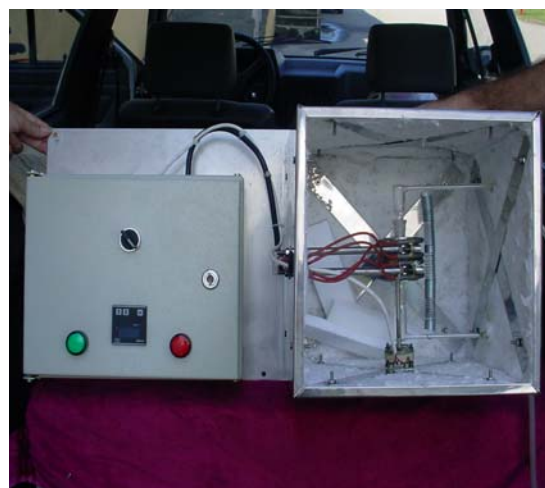
FIGURES



Figure 1 - Figure showing the location of Nuclear Central Admiral Álvaro Alberto (CNAAA), situated in Itaorna beach, 133 km east of the Rio de Janeiro city, in Angra dos Reis region, state of Rio de Janeiro ($23^{\circ} 01' S$ and $44^{\circ} 27' W$) (provided by Eletronuclear).

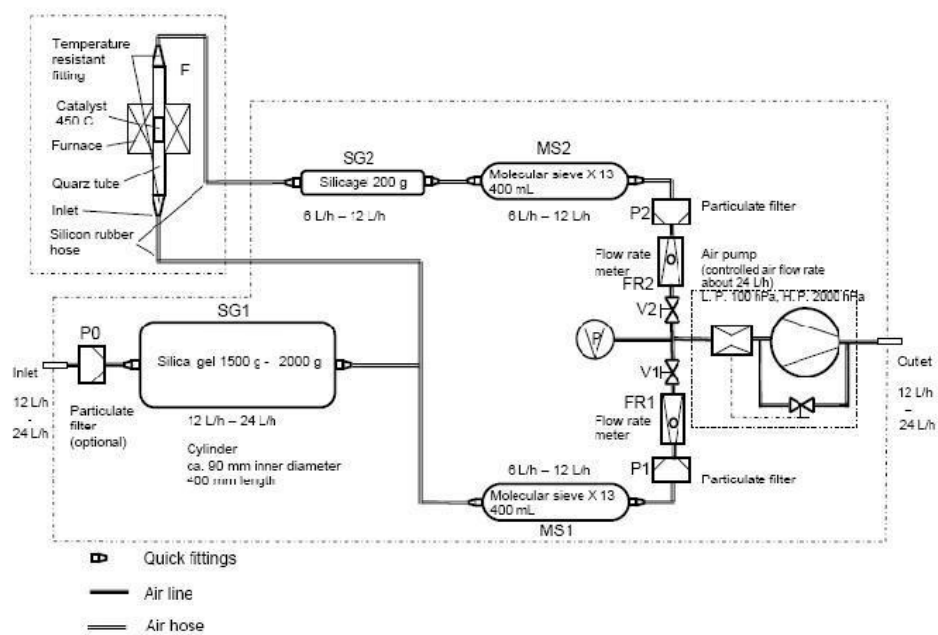


(A)



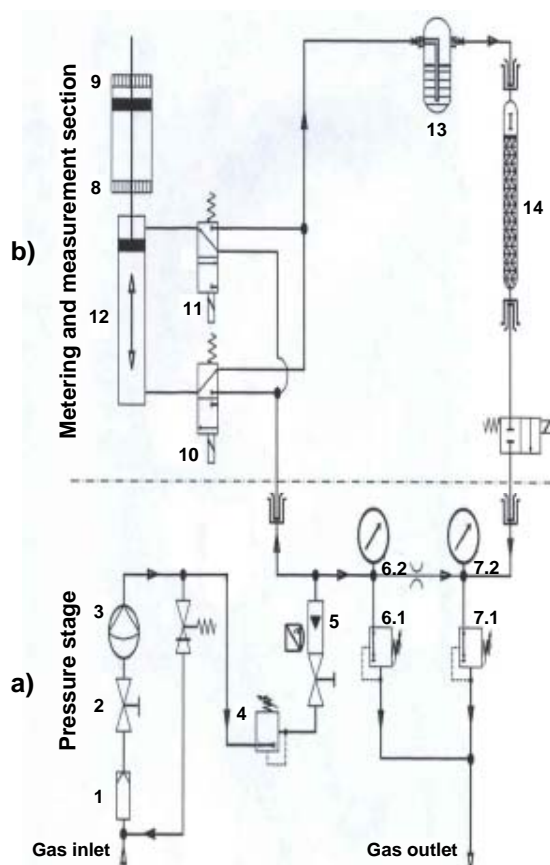
(B)

Figure 2 - Picture of the ^{14}C sampling system of Angra I, built in 2003 ((A) inside cabinet, (B) oven where the hydrocarbons were converted into CO_2).



P0- particulate filter	MS2 – molecular sieve (C-14 as hydrocarbons and other compounds)
SG1- silica gel container	P1- particulate filter
MS1- molecular sieve cylinder (C-14 as $^{14}\text{CO}_2$)	P2-particulate filter
F- oven	FR1-flow rate meter
SG2- silica gel container	FR2-flow rate meter

Figure 3 - Schematic drawing of the ^{14}C sampling system of Angra I.



1-microfilters	7.2- dwell pressure control valves
2-metering valve	8- reversing magnets
3-diaphragm pump	9-reversing magnets
4-dwell pressure control valves	10-solenoid valves
5-flowmeter	11-solenoid valves
6.1-dwell pressure control valves	12-pneumatic cylinder
6.2- dwell pressure control valves	13-oven
7.1- dwell pressure control valves	14-cylinder with molecular sieves

Figure 4 - Schematic drawing of the ^{14}C sampling system of Angra II (modified from Siemens's Manual of Operating and Maintenance, document of power plants's operators)

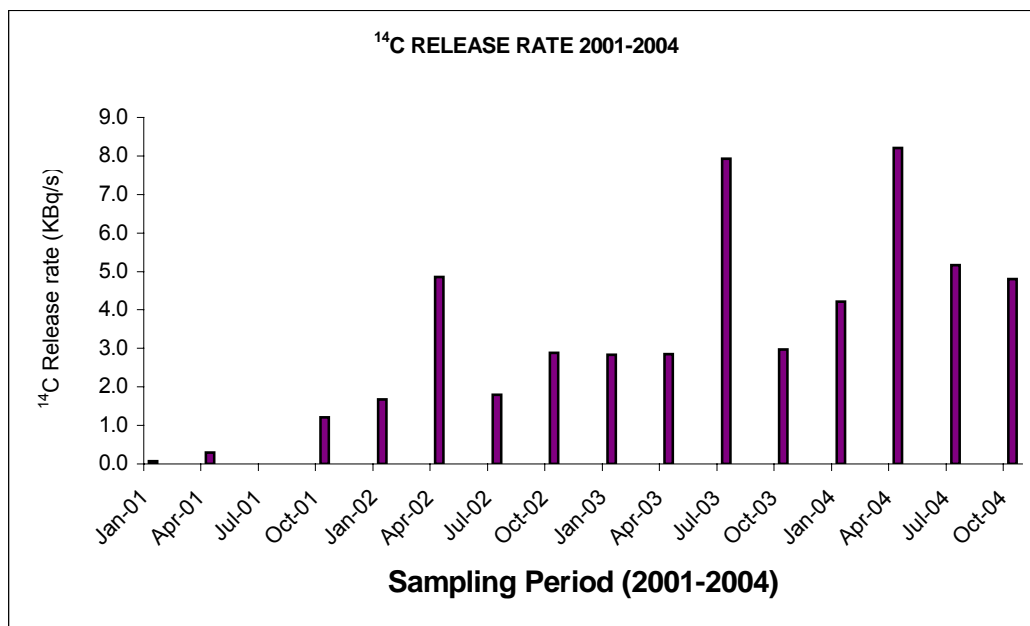


Figure 5 - ^{14}C release rates in Angra II for 2001/2004 period. Each month in the graphic corresponds to a three month sampling period (there was no data for July/2001).

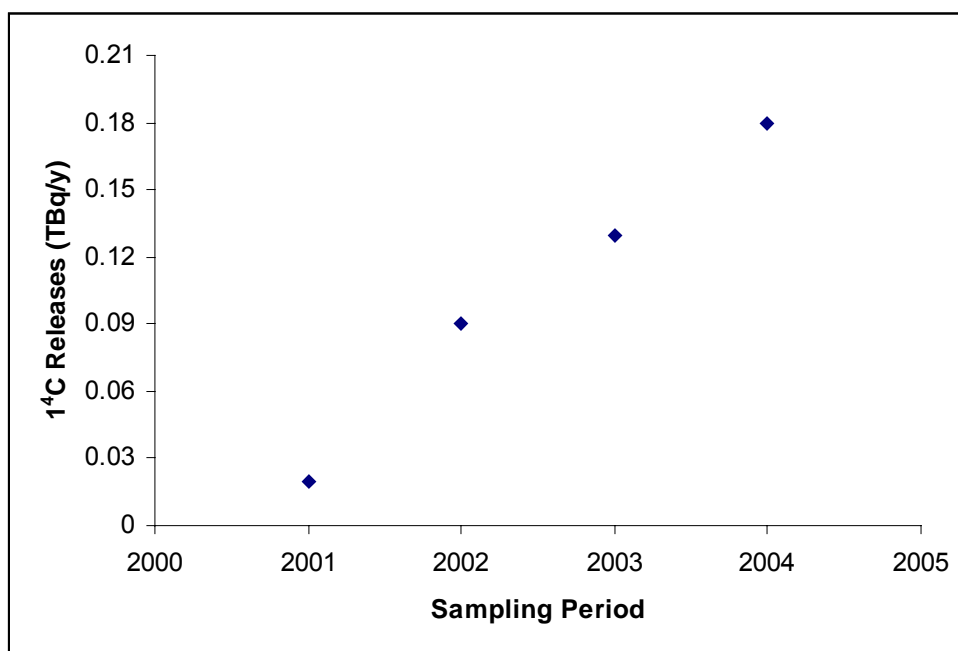


Figure 6 - ^{14}C releases of Angra II, per year, for the 2001/2004 period.

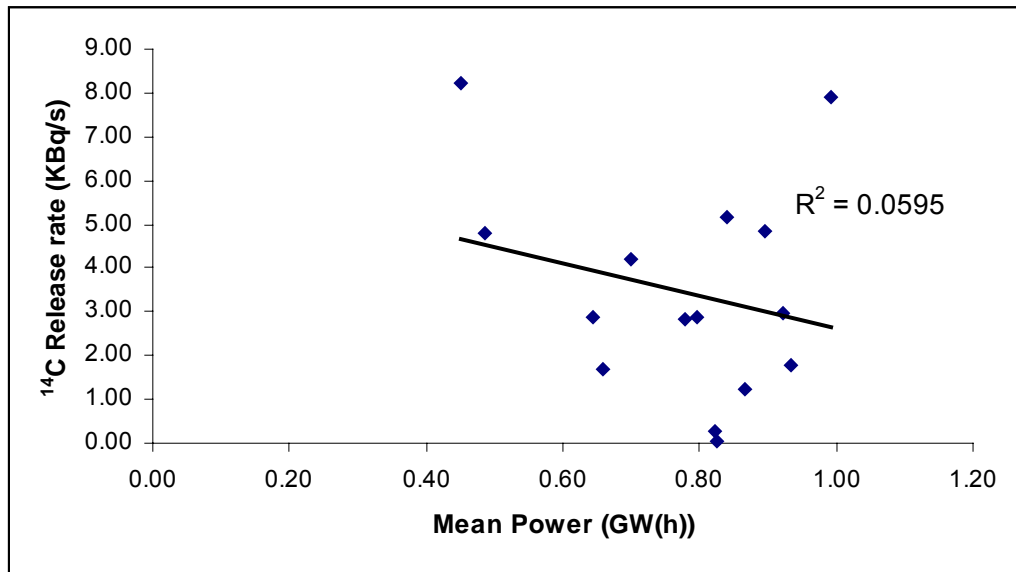


Figure 7 - Average power levels for the 2001/2004 period and ¹⁴C releases for the same period.

TABLES

Table 1 - Detailed data from the sampling process of ^{14}C in gaseous effluents of Angra I

Sampling period	Recovered water from the molecular sieve		Air volume				BaCO ₃ mass	
	MS1 ¹ (ml)	MS2 ² (ml)	Expected (m ³)	Calculated based on recovered BaCO ₃ (MS1) ¹ (m ³)	Calculated based on recovered BaCO ₃ (MS2) ² (m ³)	Expected (g)	Recovered (MS1) ¹ (g)	Recovered (MS2) ² (g)
07/06/2005-16/06/2005	20.00	No data	2.88	3.29	No data	9.21	10.54	No data
16/06/2005-30/06/2005	21.00	reflux	4.32	1.86	1.74	13.82	5.96	5.58
30/06/2005-15/07/2005	78.00	28.00	4.61	0.81	2.20	14.75	2.58	7.05
15/07/2005-25/08/2005	59.00	64.00	11.81	1.20	0.53	37.79	3.84	1.71
25/08/2005-08/09/2005	40.00	38.00	4.32	1.59	1.57	13.82	5.09	5.01
08/09/2005-22/09/2005	No data	14.00	4.32	0.87	1.19	13.82	2.79	3.82
22/09/2005-07/10/2005	No data	34.00	4.61	No data	0.43	14.75	No data	1.39
07/10/2005-21/10/2005	35.00	40.00	4.32	1.18	0.52	13.82	3.78	1.65
21/10/2005-09/11/2005	57.00	12.00	5.47	1.59	0.40	17.50	5.09	1.27
09/11/2005-25/11/2005	21.00	21.00	4.90	1.50	1.73	15.68	4.79	5.52
25/11/2005-16/12/2005	35.00	58.00	6.34	0.74	0.39	20.28	2.36	1.26
16/12/2005-29/12/2005	35.00	40.00	4.03	0.72	0.62	12.89	2.30	1.97
29/12/2005-16/01/2006	45.00	49.00	5.18	0.37	0.26	16.57	1.18	0.84
16/01/2005-03/02/2006	53.00	40.00	5.47	0.43	0.40	17.50	1.39	1.29
03/02/2005-24/02/2006	54.00	40.00	6.34	0.29	0.26	20.28	0.88	0.83

¹ Molecular sieve without catalyst, meaning ^{14}C as CO₂

² Molecular sieve with catalyst, meaning ^{14}C as CO₂ and other compounds

Table 2 - Results of ^{14}C activity concentration as CO_2 and as CO_2 and other compounds in gaseous effluents of Angra I. The analytical errors varied between 0.1 and 0.5 Bq/m^3

Sampling period	Activity concentration of ^{14}C as CO_2 (Bq/m^3)	Activity concentration of ^{14}C as CO_2 and other compounds (Bq/m^3)	Ratio of ^{14}C as CO_2 an other compounds and ^{14}C as CO_2
07/06/2005 - 16/06/2005	18.67	No data	No data
16/06/2005 - 30/06/2005	25.08	149.20	5.95
30/06/2005 - 15/07/2005	12.75	133.13	10.44
15/07/2005 - 25/08/2005	6.65	34.42	5.17
25/08/2005 - 08/09/2005	16.21	17.47	1.08
08/09/2005 - 22/09/2005	11.79	23.39	1.98
22/09/2005 - 07/10/2005	No data	16.95	No data
07/10/2005 - 21/10/2005	20.74	12.68	0.61
07/10/2005 - 21/10/2005	19.88	32.18	1.62
09/11/2005 - 25/11/2005	18.61	11.58	0.62
25/11/2005 - 16/12/2005	9.40	7.71	0.82
16/12/2005 - 29/12/2005	10.31	9.61	0.93
29/12/2005 - 16/01/2006	9.14	5.28	0.58
16/01/2005 - 03/02/2006	7.61	6.64	0.87
03/02/2005 - 24/02/2006	10.73	6.00	0.56

Table 3 - Detailed data from ^{14}C sampling process in gaseous effluents of Angra II.

Sampling period (month-year)	Air volume		BaCO_3 mass	
	Expected (m^3)	Calculated based on recovered BaCO_3 (m^3)	Expected (g)	Recovered (g)
jan/01	1,22	No data	3,90	No data
abr/01	1,57	1,10	5,02	3,52
out/01	3,84	1,26	12,29	4,03
jan/02	1,65	0,66	5,28	2,11
abr/02	1,55	0,42	4,97	1,34
jul/02	1,50	1,43	4,80	4,56
out/02	1,36	0,83	4,36	2,67
jan/03	1,64	1,16	5,26	3,70
abr/03	1,40	0,99	4,48	3,17
jul/03	1,50	1,03	4,79	3,30
out/03	1,74	1,05	5,58	3,37
jan/04	1,90	0,70	6,08	2,23
abr/04	1,25	0,54	3,98	1,73
jul/04	1,67	1,03	5,33	3,30
Out-04	1,50	1,22	4,81	3,91

Table 4 - ^{14}C concentration in gaseous effluents of Angra II after correction of the sampled air volume. The analytical errors varied between 0.1 and 0.5 Bq/m³

Sampling period (month-year)	^{14}C concentration in gaseous effluents (Bq/m ³)
Jan-01	1.00*
Apr-01	4.69
Oct-01	19.46
Jan-02	26.84
Apr-02	77.80
Jul-02	28.64
Oct-02	46.13
Jan-03	45.44
Apr-03	45.70
Jul-03	126.79
Oct-03	47.62
Jan-04	67.53
Apr-04	131.26
Jul-04	82.68
Out-04	76.94

* This value was not corrected because there is no data about recuperated BaCO₃ for this period

Table 5 - Results of ^{14}C (TBq/year) releases for Angra II and German PWR's (data of German PWR's extracted from Van der Stricht and Janssens, 2001)

Nuclear power plants	Power levels (MW)	Year	^{14}C Releases (TBq/year)
Angra II	1350	2001	0.020
Angra II	1350	2002	0.089
Angra II	1350	2003	0.131
Angra II	1350	2004	0.177
Biblis A	1167	1999	0.300
Biblis B	1240	1999	0.100
Brokdorf	1370	1999	0.300
Emsland	1290	1999	0.700
Isar II	1380	1999	0.540
Grafenrheinfeld	1275	1999	0.050
Grohnde	1360	1999	0.330
Neckarwestheim 1	785	1999	0.240
Neckarwestheim 2	1269	1999	0.270
Obrigheim	340	1999	0.047
Philippsburg 2	1358	1999	0.180
Stade	640	1999	0.190
Unterweser	1285	1999	0.037

ARTIGO II

^{14}C dispersion around two PWR nuclear power plants in Brazil

Cíntia Melazo Dias¹, Kristina Stenström², Igor Luiz Bacelar Leão³, Roberto Ventura Santos⁴,
Iêda Gomes Nícoli¹, Göran Skog⁵, Peter Ekström² and Rosângela da Silveira Corrêa⁶

¹National Commission of Nuclear Energy (CNEN), Brasilia, Brazil

²Department of Physics, Division of Nuclear Physics, Lund University, Lund, Sweden

³National Commission of Nuclear Energy (CNEN), Rio de Janeiro, Brazil

⁴Institute of Geology, Brasilia University, Brasilia, Brazil

⁵Radiocarbon Dating Laboratory, GeoBiosphere Science Centre, Lund University, Lund,
Sweden

⁶National Commission of Nuclear Energy (CNEN), Goiânia, Brazil

Abstract

Atmospheric air samples were taken within 3 km from power plants, in five different distances and wind directions, during 2002, 2004 and 2005, in order to check the environmental ^{14}C enrichment due to the operation of nuclear power plants. The sampling system consisted of a pump connected to a trapping column filled with 3 M NaOH solution. The trapped CO_2 was, then, precipitated as BaCO_3 using a BaCl_2 solution. The single stage accelerator mass spectrometry (SSAMS) was the system employed for the ^{14}C concentration measurements. For all sampled sites (five) there was important ^{14}C excess during the sampled years. The maximum excesses were of 15 and 14 mBq/m^3 NE of the plants, the most impacted direction according to previously reported data. The mean excesses found were 12 mBq/m^3 to the NE direction, 8 mBq/m^3 to the E, 10 mBq/m^3 to the N, 8 mBq/m^3 to the WNW and 7 mBq/m^3 to the W direction (increasing distances from NE to W). When compared to other LWR's data, these means are higher. From revised literature, the maximum mean values already reported were, approximately, of 3 mBq/m^3 . It seems that topography is related to these values since it works as a barrier to the transport of the plume favoring the ^{14}C accumulation in the sampled area. Also the locations of the sampling points, in elevated terrains, enhance the chances to measure since the plume can be intercepted before it is drawn to the ground. The dispersion pattern didn't follow a Gaussian model and the equilibrium between ^{14}C concentrations in air and vegetation was found only in the NE direction.

1 INTRODUCTION

Besides the 1,500 TBq of ^{14}C naturally produced every year in the atmosphere (Unsear, 2000), nuclear power plants also release non-negligible amounts of ^{14}C in their routine operation. Considering that the average ^{14}C activity released between 1995-1997 was

0.44 TBq/GW_{el}·year⁻¹ (Unsear, 2000) and that in 2004 the total nuclear energy produced was 366 GW (www.iaea.org/pris), the total amount of ¹⁴C released by nuclear power plants equals roughly 161 TBq. Because of the long half-life of ¹⁴C (5730 years) and its high mobility in the environment (it is incorporated into the food chain through the photosynthesis), measurements of the activity released are of greatest interest. Among nuclear reactors, light water reactors (LWRs), are the lowest ¹⁴C producers (Unsear, 2000), but - since they comprise the majority of nuclear reactors in the world (80 %) - their contribution to the atmospheric ¹⁴C enrichment may be significant.

The origin of ¹⁴C in LWR is related mainly to ¹⁷O(n, α)¹⁴C and ¹⁴N(n, p)¹⁴C nuclear reactions. While ¹⁷O nuclide occurs naturally in the coolant, moderator and fuel, ¹⁴N is present as an impurity in the fuel, structural material, coolant and moderator. In most cases, the released ¹⁴C is generated in the coolant during normal operation and is transferred to the atmosphere as airborne gaseous effluents (Kunz, 1985; IAEA n^o.421, 2004). The ¹⁴C can be released as CO₂, CO and hydrocarbons, but the main chemical form depends on the type of reactor. For boiling water reactors (BWRs), CO₂ is the dominant released form, while for pressurized water reactors (PWRs), hydrocarbons are the most important released form (Kunz, 1985; Hesbol *et al.*, 1990; Vance *et al.*, 1995; Stenström *et al.*, 1996 (a) and IAEA n^o 421, 2004). The average amount of ¹⁴C released from BWRs and PWRs was 0.51 TBq/GW_{el}·year⁻¹ and 0.22 TBq/GW_{el}·year⁻¹, respectively, between 1990 and 1994 (Unsear, 2000).

Studies performed around BWR and PWR reactors have shown slightly ¹⁴C enrichment in atmospheric air as well as in vegetation samples (Levin *et al.*, 1988; Loosli and Oeschger, 1989; Uchirin *et al.*, 1992, Veres, *et al.*, 1995, Stenström *et al.*, 1996 (b); Stenström *et al.*, 1998). ¹⁴C signals can be more pronounced around BWRs not only because they emit a higher ¹⁴C amount, but also because ¹⁴CO₂ is the main released chemical form and hence, is easily assimilated by plants through photosynthesis.

Brazil has two PWRs reactors named Angra I and Angra II that have maximal electrical outputs of 657 MW_{el} and 1350 MW_{el}, respectively. Although the vicinities of these power plants have been monitored for nuclides such as ¹³⁷Cs, ¹³¹I, ⁵⁴Mn, ⁵⁸Co, ⁶⁰Co, etc (Eletronuclear, 2003), no previous survey has addressed ¹⁴C emissions. The present study aims to evaluate the amount of ¹⁴C released in the vicinity of these PWR as well as its dispersion using a Gaussian plume model. In order to perform this investigation, ambient air was sampled at various distances from the power plants in the years 2002, 2004 and 2005.

The source strengths were also determined by measuring the ^{14}C concentrations in the air collected in the vent stacks of both units.

2 BACKGROUND VALUES

In order to verify a clear ^{14}C signal around nuclear facilities it is important to consider the two major effects that modulate ^{14}C levels in atmospheric CO_2 : the nuclear bomb testing (that occurred mainly in the 1950's and early 1960's) and the Suess effect (Suess, 1955). Before these major antagonistic effects, considering the equilibrium between natural production and radioactive decay, the $^{14}\text{CO}_2$ atmospheric level used to be 226 Bq/kg of carbon. But, as result of the nuclear weapons testing, by the year 1963 the ^{14}C atmospheric concentration had doubled and, since the end of the tests, the atmospheric ^{14}C levels have decreased due to its uptake by the oceans and the biosphere. The Suess effect, on the other hand, dilutes the atmospheric ^{14}C concentration because CO_2 from combusted fossil fuels is " ^{14}C free". In wintertime, this effect can be even more pronounced, as observed in measurements of samples collected in European "clean air" sites (Levin *et al.*, 1985 and Levin and Kromer, 2004).

Taking these factors into account, the reference value for an uncontaminated site (far from nuclear facilities and close to "clean air" regions) has been determined to be 241 Bq/kgC ($\Delta^{14}\text{C} = 68\%$, 106 pMC or 44 mBq/m³), for the period 2002-2003 (Magnusson *et al.*, 2004). This value originates from measurements of vegetation samples collected in "clean air" sites in Sweden and is in good agreement with data of background ^{14}C activity (atmospheric samples) recorded in different "clean air" stations in Europe (Levin and Kromer, 2004).

The latest ^{14}C background data reported for South America (Merida -Venezuela) was published in 1995 (Rozanski *et al.*) and, for the South Hemisphere, an extensive review of data selected from atmospheric samples, tree rings and organic matter, up to 2001, can be seen in Hua and Barbetti (2004). Because the comparison of this data to background levels of European "clean air" stations showed a small ^{14}C inter-hemisphere difference (generally 2-5 ‰ higher in South America, for example) (Levin and Hesshaimer, 2000, Levin and Kromer, 2004), the recent background value (2002/2003) registered in Sweden was used as reference level in this study.

3 METHODS

3.1 STUDIED AREA

The two PWR nuclear power plants are located in the Angra dos Reis region between the Serra do Mar mountains and the Ilha Grande Bay (Figure 1). Angra I has a vent stack with 55 m and initiated operation in 1987 and Angra II has a vent stack of 126 m and initiated operation in 2000.

The sampling sites shown in Figure 2 were placed within 3 km of the power plants, after considering the different wind directions (at 500 (A), 510 (B), 800 (C), 1000 (D) and 2900 (E) m from the power plant). At each site, an air sampling system was placed inside a specially designed sampling station (Figure 3 (a), (b), respectively). Because of their strategic positions, the same sites are used by operators in their environmental monitoring control and emergency procedures. These sites are inside the direct influenced area up to 5 km from reactors, named as AID-5 km.

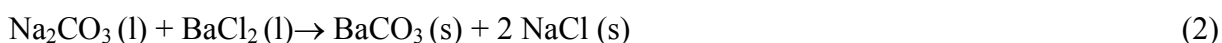
3.2 SAMPLING

Many methods have been used to sample atmospheric $^{14}\text{CO}_2$ (Stork *et al.*, 1997). They are classified as non-reactive or reactive procedures, the latter being employed in this study (Levin *et al.*, 1980; Levin *et al.*, 1988; Rozanski *et al.*, 1995; Szántó *et al.*, 1997, Woo *et al.*, 1999; Sion, 2000).

The air sampling system used consisted of a pump (an American universal sample pump, catalog n°. 224-44XR, of SKC Inc.) connected via a silicon rubber hose to a glass bottle containing a glass frit and 400 ml of NaOH (3 M) solution. Atmospheric CO_2 was obtained by flushing air through the NaOH solution according to the following reaction:



In order to guarantee a high CO_2 absorption by the sodium hydroxide solution (more than 90 % efficiency), the system flow rate was set to 1 l/min. Once the absorption process was finished, BaCl_2 (20 %) was added to the solution aiming to precipitate the $\text{BaCO}_3(\text{s})$ according to the following reaction:



The mixture was then centrifuged and the solid fraction washed three times with distilled water in order to remove the excess of salt. The separated solid was dried (60 °C) and weighed.

Atmospheric CO₂ samples were collected during a one week period in April and November of 2002, in September, October and November of 2004 and May and June of 2005.

3.3 SAMPLE PREPARATION AND MEASUREMENTS

The samples were measured using an accelerator mass spectrometer (AMS) from the Department of Geology, Lund University, Sweden. For AMS measurements, the carbon has to be extracted from the BaCO₃ and converted into solid carbon by using a graphitization line (Stenström, 1995). In this system, carbon is released as CO₂ by reacting the BaCO₃ with 5 ml of phosphoric acid (90 %). Then, the carbon dioxide is converted into elemental carbon employing a Fe-catalytic reduction process. Since AMS measurements require about 1 mg of carbon, only 80 mg of BaCO₃ is used in the analyses.

The AMS employed is a single stage accelerator mass spectrometer (SSAMS), described in Synal *et al.* (2000), Schroeder *et al.* (2004) and Skog (2006). The elemental carbon samples were pressed into an aluminum holder and placed in the ion source of the accelerator, which can hold up to 40 samples. Each measurement lasted 20 minutes. Certified NBS oxalic acid was used as reference material and anthracite, free of ¹⁴C, was used as reference for background values of the sample preparation and accelerator system. The analytical precision is better than 5‰ and the sensitivity better than 0.05 dpm/gC (Schroeder *et al.*, 2004), corresponding to 0.8 μBq/mg C. Analytical errors of the samples in this study are smaller than 3 %.

3.4 DISPERSION MODELLING

Since the Gaussian plume model requires short computation time and proved to be reliable to estimate the long-term dispersion of radioactive effluents, it is one of the most commonly used models (Otlet *et al.*, 1983, Levin *et al.*, 1988, Leão, 1998, Sangarun *et al.*, 1996, Noguchi and Yokoyama, 2000, Drews and Lauritzen, 2003, Lutman *et al.*, 2004 and Maceika *et al.*, 2005). In this study, the measured ¹⁴C concentrations of atmospheric air were compared to the theoretical values calculated using the following Gaussian plume equation:

$$\chi = \frac{Q}{2\pi\sigma_y\sigma_z u} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{y}{\sigma_y}\right)^2\right] \left\{ \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{z-H}{\sigma_z}\right)^2\right] + \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{z+H}{\sigma_z}\right)^2\right] \right\} \quad (3)$$

where:

χ = atmospheric air concentration considering a distance x (m) from the source, transversally to the distance y (m) and vertically to the distance z (m) above ground (Bq/m^3).

Q = source strength (Ci/year)

u = wind velocity (m/s)

σ_y = horizontal dispersion parameter (m)

σ_z = vertical dispersion parameter (m)

H = effective height of the vent stack (m)

y = transversal distance (m)

z = vertical distance (m)

The theoretical air concentrations were calculated using the software Cap 88 version 2.1 developed by the Environment Protection Agency (EPA). This computer code is a set of databases and associated utility programs that allows the user to estimate and evaluate the dose and risk of atmospheric radionuclides under the 40 Code Federal Regulation (CFR), Part 61.93, National Emissions for Hazardous Air Pollutants (NESHAPS) (Chaki, 2002).

The ^{14}C concentrations were calculated separately for Angra I and Angra II and then added up before comparing with the measured activities.

The following parameters were applied in the calculation of the concentrations:

1- For Angra I: Since measurements of released ^{14}C from Angra I were not available, a mean value of 0.200 TBq/year (5.4 Ci/year) was used based on PWR data from many countries for the year 1999 (Van der Stricht and Janssens, 2001)

2- For Angra II: The source strength used corresponded to the value measured in 2004, that was of 0.177 TBq/year (corresponding to 5 Ci/year (Dias *et al.*, 2006)).

3- Meteorological statistics had been performed for each of the seven weeks $^{14}\text{CO}_2$ sampling period. As a result, seven tables were prepared in the CAP88's format file, each containing the frequency of the distribution of wind velocities categories per wind direction considering all the Pasquill stability classes. Hourly meteorological data, registered during each one-week sampling period, was used in the statistics. The meteorological data were provided by the nuclear power operators. The CNAEA has four meteorological towers spread around the region. The data registered by the main and most representative one (with a height of 100 m) was used in this study. This tower is located 50 m above ground and it has three

measurement levels: at 10 m, 60 m and 100 m. The data taken at level 10 m was used for the calculation of concentrations of Angra's I releases since the effective height of this level is 60 m, approximately the height of the vent stack. For Angra II, the data of the level 100 m (effective 150 m) was used.

4- Topography of the region was incorporated into the model by subtracting the heights of the vent stacks from the heights of the sampling sites terrain. The topographic profiles were available in Leão (1998). These "final" heights of the vent stacks were used as input to the CAP88 (Table 1).

5- The plume rise calculation used the Rupp's equation for *momentum* (Chaki, 2002):

$$\Delta h = 1.5 vd/u \quad (4)$$

where:

Δh = plume rise (m)

v = discharge velocity of gaseous effluents (m/s)

d = inner diameter of vent stack (m)

u = wind velocity (m/s)

The plume rise is added to the "final heights" of the vent stacks in order to obtain the "effective height" of the vent stacks (H). The velocities of the discharge are required by CAP program to calculate the plume rise and they are of 11.05 and 7.01 m/s for Angra I and Angra II, respectively.

4 RESULTS AND DISCUSSION

The data obtained in the present study show that all samples collected in the vicinity of the power plants presented ^{14}C excess compared to Magnusson *et al.* (2004) background values. Among the 30 samples analyzed: 46 % fell into 1-10 % ^{14}C excess range but the majority, 56 %, had an excess between 11 and 40 % (Figure 4). The ^{14}C excesses found during the sampling period (2002, 2004 and 2005) and means, for each sampling site, are shown in Figure 5.

The excesses values measured for the PWRs of Angra are higher when compared to the observed ^{14}C excess range of LWRs power plants worldwide. For instance, the mean excess for atmospheric air samples taken at 1.75 km from a BWR facility by Levin *et al.* (1988) was 2 mBq/m³, although the authors have reported a maximum excess of 12 mBq/m³.

Stenström *et al.* (1998) found an excess of 2 mBq/m³ for a sample collected downwind direction at 3 km from two nuclear power plants of BWR type. Uchrin *et al.* (1998) reported similar mean value (approximately 3 mBq/m³) measured in air samples also collected at, roughly, 1 km far from four PWRs units. Molnár *et al.* (2002) registered maximum excess of approximately 1.2 mBq/m³, at 1.5 km from one PWR reactor.

The origin of the ¹⁴C excess values may be related both to the amount of ¹⁴C released by the power plants as well to the atmospheric dispersion around the facility. Recent unpublished measurements made in 2005 in Angra I vent stack indicated an emission of 14 Bq/m³ as ¹⁴CO₂. This value is comparable to that reported for a similar Westinghouse nuclear power plant, such as Obrigheim (300 MW_{el}), which emits about 12 mBq/m³⁽¹⁾. Measurements made in Angra II in 2004 indicated a mean value of 90 Bq/m³ giving 0.29 TBq/GW year⁻¹, approximately within the expected range of 0.11 - 0.22 TBq/GW year⁻¹, for PWR reactors (Bush *et al.*, 1984, Vance *et al.*, 1995, Van der Strich and Janssens, 2001, IAEA n^o 421, 2004). Therefore, based on the considerations above, the emission of ¹⁴C by the power plants does not support the high excesses values found in this study.

Considering the high cliffs that surround the nuclear facility, the atmospheric dispersion in the region may be significantly influenced by topography. All the sampling points, except the W direction, are situated at high elevations. It means that the plume can be “intercepted” by the air sampling systems before its dilution on the way down to the ground. Otlet *et al.* (1983) found that samples collected in high terrains showed higher ¹⁴C concentration than those taken at lower elevations. Besides, the mountain that surrounds the power plant favors the ¹⁴C accumulation because it works as an obstacle for the dispersion of the plumes since it lowers wind velocity (which is not greater than 2 m/s during all the year) (Leão, 1998 and Eletronuclear, 2005), delaying its transport and diffusion.

Although ¹⁴C excesses are higher than reported in literature, the dose contribution, in all situations, is far less than the total dose attributed to natural ¹⁴C. Taking 12 mBq/m³, the maximum mean excess measured in this study, the annual effective dose equivalent to individuals was calculated in 0.07 µSv/year, that represents 0.7 % of the natural value, which is of 10 µSv/y (Roussel-Debet *et al.*, 2006). In Brazil, the dose constraint for critical groups due to operation of one nuclear installation was set in 0.3 mSv/year. It means that for the CNAEA, which has two nuclear reactors, this limit value is 0.6 mSv/year (CNEN 3.01).

Furthermore, the dose contribution from anthropogenic ^{14}C in vicinities of nuclear power plants is expected to be in the order of $1\ \mu\text{Sv}$ (Levin *et al.*, 1988 and Shinohara, 2004)

For each year separately, it was not possible to observe a trend of a Gaussian dispersion pattern. When theoretical values, calculated by means of the Gaussian model as described above, were compared to the measured ones, the majority didn't agree (Table 2).

It is important to emphasize that; in general, the sets of tests ran in the CAP program for these calculations seemed to fulfill the requirements. So, a factor of 2 difference between the predicted and measured value would be considered a good agreement, although even larger differences can be acceptable. However, one has to take into account that the default diffusion parameters may not be the best ones since the sampled terrain shows a very complex topography. The diffusion parameters represent the turbulence. For higher surface roughness, the turbulence increases relative to the turbulence over a flat surface. Thus, the code will match better results for some locations than for others.

It was not found a Gaussian dispersion pattern neither when the means for each sampling site, during the sampled years, are considered (Figure 5). However, when it comes to vegetation samples (forthcoming paper), such a trend can be observed. Plants were taken in 2004 (November) and 2005 (June), at the same air sampling points, and the results can be seen in Table 3.

According to the literature, the models of ^{14}C transfer in the environment are based on the principle of equilibrium, meaning that carbon specific activity in plants is the same as in atmospheric air (Scott *et al.*, 1991; Sheppard *et al.*, 1994, Garnier-Laplace *et al.*, 1998 and Roussel-Debet *et al.*, 2006). Therefore, through analyses of ^{14}C activities in vegetation, it would be expected to find similar activities in air samples. In this study, it was possible to observe this positive correlation only for samples taken at NE (in both years) and N (only in 2005) (Table 3).

Perhaps this lack of equilibrium is related to short-term sampling period. Since grass does not grow in a constant rate, if the growing rate is not as high as when the ^{14}C concentration is above the average in a specific sampling point, ^{14}C activity in plants will be lower than in air, or the opposite. So, a long-term sampling period could compensate these differences. Indeed, Milton *et al.* (1995) had stated that, in order to validate such an equilibrium, "short-term air and vegetation measurements must be viewed with caution".

¹ Personal communication (2006) with K. Vogl, The Federal Office for Radiation Protection (BFS), Bundesamt für Strahlenschutz, PO BOX 10 01 49, D-38201 Salzgitter, Federal Republic of Germany.

Moreover, according to Collins and Bell (2001), the mechanisms of activity deposition and allocation can differ among different plant species. For instance, leaves are the predominant site of deposition, but for some species, as they increasingly develop, the sites can change to other organs.

Maybe the short-term sampling also explains why a Gaussian pattern was not found for the air samples. During the week, the winds can be very changeable, enhancing the possibilities to measure in all sampling points, even at those that are not in the dominant wind direction.

In conclusion, the majority of the atmospheric air samples analysed (56 %) were in a range of 11-40 % of ^{14}C excess. The mean excesses, considering the three years of investigation, were higher in all sampling points when compared to activities already measured around other LWR power plants. The maximum mean ^{14}C excess measured in this investigation was of 12 mBq/m³, which is four times higher than the mean reported in literature, concerning PWRs and BWRs reactors. The dose contribution due to this more elevated concentration, however, represents only 0.7 % of the total dose delivered by natural ^{14}C .

It is possible that the topography of the region favors the ^{14}C accumulation in the sampled area since the mountains that surround the CNAAA act as a barrier to the transport and diffusion of the plume. Besides, the elevated terrain where sampling points are located also enhance the chances to measure higher concentrations because the plume is intercepted before dilution on its way down to the ground.

The atmospheric dispersion of the nuclide didn't follow a Gaussian pattern, as it was found for vegetation samples (Dias *et al*, 2006), and there wasn't equilibrium between ^{14}C concentrations in air and vegetation, except for the samples taken at NE direction.

5 REFERENCES

BUSH, R. P. Carbon-14 waste management. A review. **Radioactive Waste Management** (Proc.Int. Con. SEATTLE, WA, 1983), vol 2 p. 441-454, Viena, 1984.

CHAKI, S. **CAP88-PC Version 2.1** - User's Guide - Environmental Protection Agency, U.S. EPA. Office of Radiation and Indoor Air. Washington DC, 2002.

COLLINS, C. D. and BELL, J. N. B. Experimental studies on the deposition to crops of radioactive gases released from gas-cooled reactors – III. Carbon-14 dioxide. **Journal of Environmental Radioactivity** 53, p. 215-229, 2001.

COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR. **CNEN 3.01**: Diretrizes Básicas de Proteção Radiológica. Rio de Janeiro, 2005.

DIAS, C.M., SANTOS, R. V., STENSTRÖM, K., NÍCOLI, I.G., CORRÊA, R.S. and SKÖG, G. **^{14}C content in vegetation in the vicinities of Brazilian nuclear power reactors**. Unpublished data, 2006.

DREWS, M. and LAURITZEN, B. Gaussian plume model analysis of atmospheric dispersion measurements of radioactive releases from the BR1 research reactor in Mol, Belgium. In: Paile, W. (ed.) Radiation and Nuclear Safety Authority, Helsinki (Finland), Radiation protection in the 2000s - Theory and practice. Nordic Society for Radiation Protection. PROCEEDINGS OF THE XIII ORDINARY MEETING, 521 p. p.418-423, Jun, 2003.

ELETRONUCLEAR S.A (ELETRONUCLEAR)- **Programa de Monitoração Ambiental Radiológico Operacional (PMA)**. Rio de Janeiro, 2003.

ELETRONUCLEAR S.A (ELETRONUCLEAR). **Estudo de Impacto Ambiental – Unidade 3 da Central Nuclear Almirante Álvaro Alberto (CNAEA) (EIA)**. Rio de Janeiro, 2005. Technical Report with scientific annexes.

GARNIER-LAPLACE, J., ROUSSEL-DEBET, S. and CALMON, P. Modelisation des transferts du carbon 14 émis par les réacteurs à eau pressurisée en fonctionnement normal, dans l'environnement proche du site, dans milieux aquatique de eau douce et terrestre. Rapport IPSN/SERE 98-07, 1998. In: ROUSSEL-DEBET, S.; GONTIER, G. and SICLET, F. Distribution of carbon-14 in the terrestrial environment close to French nuclear power plants. **Journal of Environmental Radioactivity**, p. 1-14, 2006 (in press).

HESBOL, R. PUIGDOMENECH, I. and EVANS, S. **Source terms, isolation and radiological consequences of carbon-14 waste in Swedish SFR repository**. SKB Technical Report 90-02, 1990.

HUA, Q. BARBETTI, M. and ZOPPI, U. Radiocarbon in annual tree rings from Thailand during the pre-bomb period-AD 1838-1954. **Radiocarbon**, vol 46, n° 2, p.925-932, 2004.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY - IAEA. Available in: www.iaea.org/pris. Accessed in 18/06/2005.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY-IAEA. **Management of waste containing tritium and carbon-14**. Technical Reports Series n° 421, Vien, 2004.

KUNZ, C. Carbon-14 discharge at three light-water reactors. **Health Physics**, vol. 49, n° 1, p. 25-35, 1985.

LEÃO, I., L., B. **Cenários ambientais em centrais nucleares: integração da meteorologia do local com outros fatores ambientais por meio do sistema de informações geográficas**. Rio de Janeiro, 1998. 102p. Master Thesis. Instituto Militar de Engenharia (IME).

LEVIN, I. and HESSHAIMER, V. Radiocarbon- a unique tracer of global cycle carbon dynamics. **Radiocarbon**, vol. 42, n° 1, p. 69-80, 2000.

LEVIN, I. and KROMER, B. The tropospheric $^{14}\text{CO}_2$ levels in mid latitudes of the northern hemisphere (1959-2003). **Radiocarbon**, vol. 46, n° 3, p. 1261-1272, 2004.

LEVIN, I., MÜNNICH, K. O. and WEISS, W. The effect of anthropogenic CO_2 and ^{14}C sources on the distribution of ^{14}C in the atmosphere. **Radiocarbon**, vol. 22, n°2, p. 379-363, 1980.

LEVIN, I.; KROMER, B.; BARABAS, M. and MÜNNICH, K. O. Environmental distribution and long-term dispersion of reactor ^{14}C around two German nuclear power plants. **Health Physics**, vol. 54, n. 2, p. 149-156, 1988.

LEVIN, I.; KROMER, B.; SCHOCH-FISCHER, H.; BRUNS, M.; MÜNNICH, M.; BERDAU, D.; VOGEL, J. C. and MÜNNICH, K. O. 25 years of tropospheric ^{14}C observations in Central Europe. **Radiocarbon**, vol. 27, n^o 1, p. 1-19, 1985.

LOOSLI, E. H. and OESCHGER, H. ^{14}C in the environment of Swiss nuclear installations. **Radiocarbon**, vol. 31, n^o 3, p. 747-753, 1989.

LUTMAN, E. R., JONES, S. R., HILL, R. A., McDONALD, P. and LAMBERS, B. Comparisons between the predictions of a Gaussian plume model and Lagrangian particle dispersion model for annual average calculations of long-range dispersion of radionuclides. **Journal of Environment Radioactivity** 75, p.339-355, 2004.

MACEIKA, E., REMEIKIS, V., ANCIUS, D. and RIDIKAS, D. Evaluation of the radiological consequences of ^{14}C due to contaminated Ignalina NPP graphite incineration. **Lithuanian Journal of Physics**, vol.45, n^o 5, p.383-391, 2005.

MAGNUSSON, A.; STENSTRÖM, K.; SKOG, G.; ADLIENE, D., ADLYS, G.; HELLBORG, R.; OLARIU, A.; ZAKARIA, M.; RÄÄF, C. and MATTSSON, S. Levels of ^{14}C in the terrestrial environment in the vicinity of two European nuclear power plants. **Radiocarbon**, vol. 46, n^o 2, p. 863-868, 2004.

MILTON, G. M.; KRAMER, S. J.; BROWN, R. M.; REPTA, C. J. W.; KING, K. J. and RAO, R. R. Radiocarbon dispersion around Canadian nuclear facilities. **Radiocarbon**, vol. 37, n. 2, p. 485-496, 1995.

MOLNÁR, M., SZÁNTÓ, Zs., ESVINGOR, E., PALCSU, L., FUTÓ, I. and ELEKES, Z. Measurements of beta emitters in the air around the Paks NPP, Hungary. In: PROCEEDINGS OF THE INTERNATIONAL CONFERENCE OF APPLICATIONS OF HIGH PRECISION ATOMIC AND NUCLEAR METHODS Neptun, Romania, Sept. 2002.

NOGUCHI, H. and YOKOYAMA, S. Development of dose assessment code for accidental releases of activation products. Japan Health Physics Society, Tokyo (Japan) IRPA-10. In: PROCEEDINGS OF THE 10TH INTERNATIONAL CONGRESS OF THE INTERNATIONAL RADIATION PROTECTION ASSOCIATION ON HARMONIZATION OF RADIATION, HUMAN LIFE AND THE ECOSYSTEM. Tokyo, Japan, Japan Health Physics Society, 1 v. [6 p.] May, 2000.

OTLET, R. L., WALKER, A. J. and LONGLEY, H. The use of ^{14}C in natural materials to establish the average gaseous dispersion patterns of releases from nuclear installations. **Radiocarbon**, vol 25, n^o 2, p. 593-602, 1983.

ROUSSEL-DEBET, S.; GONTIER, G. and SICLET, F. Distribution of carbon-14 in the terrestrial environment close to French nuclear power plants. **Journal of Environmental Radioactivity**, in press, p. 1-14, 2006.

ROZANSKI, K., LEVIN, I., STOCK, J., FALCON, R. E. G. and RUBIO, F. Atmospheric ^{14}C variations in the equatorial region. **Radiocarbon**, vol 37, n^o 2, p. 509-515, 1995.

SANGARUN, P.; CHITTRAKARN, T.; and BHONGSUWAN, T. Dispersion modeling of radioactive materials in atmosphere from a nuclear power plant. PROCEEDINGS OF THE 6TH NUCLEAR SCIENCE AND TECHNOLOGY CONFERENCE, 761 p. [15 p.], Dec, 1996.

SCHROEDER, J. B., HAUSER, T. M., CLODY, G. M and NORTON, G. A. Initial results with low energy single stage AMS. **Radiocarbon**, vol. 46, n^o 1, p.1-4, 2004.

SCOTT, E. M., BAXTER, M. S., and McCARTNEY, M. Consideration on the modeling of environmental radiocarbon. In: BIOMOV. SYMPOSIUM ON THE VALIDITY OF ENVIRONMENTAL TRANSFER MODELS. Swedish Radiation Protection Inst., Stockholm, Sweden, 498p. p. 107-123, 1991.

SHEPPARD, S. C., AMIRO, B. D., SHEPPARD, M. I., STEPHENSON, M., ZACH, R. and BIRD, G. A. Carbon-14 in the biosphere: modelling and porting research for the Canadian Nuclear Fuel Waste Management Program. **Waste Manage** 14 (5), p.445-456, 1994.

SHINOHARA, K. Measurements and behavior of ¹⁴C and ¹²⁹I in the environment. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, vol. 260, n^o 2, p. 265-271, 2004.

SION, N. Detection and measurement of carbon-14 in nuclear power plants gaseous effluents. Japan Health Physics Society, Tokyo (Japan) IRPA-10. In: PROCEEDINGS OF THE 10th INTERNATIONAL CONGRESS OF THE INTERNATIONAL RADIATION PROTECTION ASSOCIATION ON HARMONIZATION OF RADIATION, HUMAN LIFE AND THE ECOSYSTEM. Tokyo, Japan, Japan Health Physics Society, 1 v. May, 2000.

SKOG, G. The single stage AMS machine at Lund University: Status Report. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, in press, 2006.

STENSTRÖM, K. **New applications of ¹⁴C measurements at the Lund AMS facility.** Lund, 1995. 100p. PhD Dissertation. Lund University.

STENSTRÖM, K.; ERLANDSON, B.; HELLBORG, R.; WIEBERT, A. and SKOG, G. Environmental levels of carbon-14 around a Swedish nuclear power plant measured with accelerator mass spectrometry. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**. 113, p. 474-476, 1996b.

STENSTRÖM, K.; ERLANDSON, B.; HELLBORG, R.; WIEBERT, A. and SKOG, G. Determination of the ¹⁴CO₂ and the total airborne ¹⁴C releases from two Swedish light-water reactors using accelerator mass spectrometry. **Radioactivity and Radiochemistry**, vol.7, n. 1, p.32-36, 1996a.

STENSTRÖM, K.; GORAN, S.; THORNBERG, C.; ERLANDSON, B.; HELLBORG, R.; MATTSSON, S. and PERSSON, P. ¹⁴C levels in the vicinity of two Swedish nuclear power plants and at two "clean-air" sites in southernmost Sweden. **Radiocarbon**, vol. 40, n. 1, p. 433-438, 1998.

STORK, A.; WITTE, R. and FÜR, F. ¹⁴CO₂ measurements in air: literature review and a new sensitive method. **Environmental Science & Technology**, vol.31, n. 4, p. 949-955, 1997.

SUESS, H. E. Radiation concentration in modern wood. **Science** 122 (3166), p.414-417, 1955.

SYNAL, H. A., JACOB, S. and SUTER, M. New concepts of radiocarbon detection systems. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B** 161-163, p. 29-36, 2000.

SZÁNTÓ, Zs., SVINGOR, E. and PINTER, T. Concentration of betta emitters in primary water, stack air, nuclear waste and environment of Middle European Nuclear Power Plants. PROCEEDINGS OF 4^o REGIONAL MEETING NUCLEAR ENERGY IN CENTRAL EUROPE, 1997.

UCHRIN, G.; CSABA, E.; HERTELENDI, E.; ORMAI, P. and BARNABAS, I. ^{14}C release from a soviet-designed pressurized water reactor nuclear power plant. **Health Physics**, vol. 63, n. 6, p. 651-655, 1992.

UCHRIN, G.; HERTELEND, E.; VOLENT, G.; SLAVIK, O.; MORÁVEK, J.; KOBAL, I. and VOKAL, B. ^{14}C measurements at *PWR*-type nuclear power plants in three middle European countries. **Radiocarbon**, vol. 40, n. 1, p. 439-446, 1998.

UNITED NATIONS. **Sources and Effects of Ionizing Radiation. Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation – UNSCEAR**. New York, 2000. Report to the General Assembly, with scientific annexes.

VAN DER STRICHT, S. and JANSSENS, A. Radioactive effluents from nuclear power stations and nuclear fuel reprocessing plants in the European Union, 1995-1999. In: **Radiation Protection 127**. Office for Official Publications of the European Communities, Luxembourg, 2001.

VANCE, J. N.; CLINE, J. E. and ROBERTSON, D. E. **Characterization of carbon-14 generated by the nuclear power industry**. EPRI TR-105715, Electric Power Research Institute, Palo Alto, California, 1995.

VERES, M.; HERTELEND, E.; UCHRIN, G.; CSABA, E.; BARNABÁS, I.; ORMAI, P.; VOLENT, G. and FUTÓ, I. Concentration of radiocarbon and its chemical forms in gaseous effluents, environmental air, nuclear waste and primary water of a pressurized water reactor power plant in Hungary. **Radiocarbon**, vol. 37, n. 2, p. 497-473, 1995.

WOO, H. J.; CHO, S. Y.; CHUN, S. K.; KIM, N.B., KANG, D. W. and KIM, E. H. Sample treatment techniques for the determination of environmental radiocarbon in a nuclear power station area. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, vol. 239, n^o. 3, p. 533-538, 1999.

FIGURES

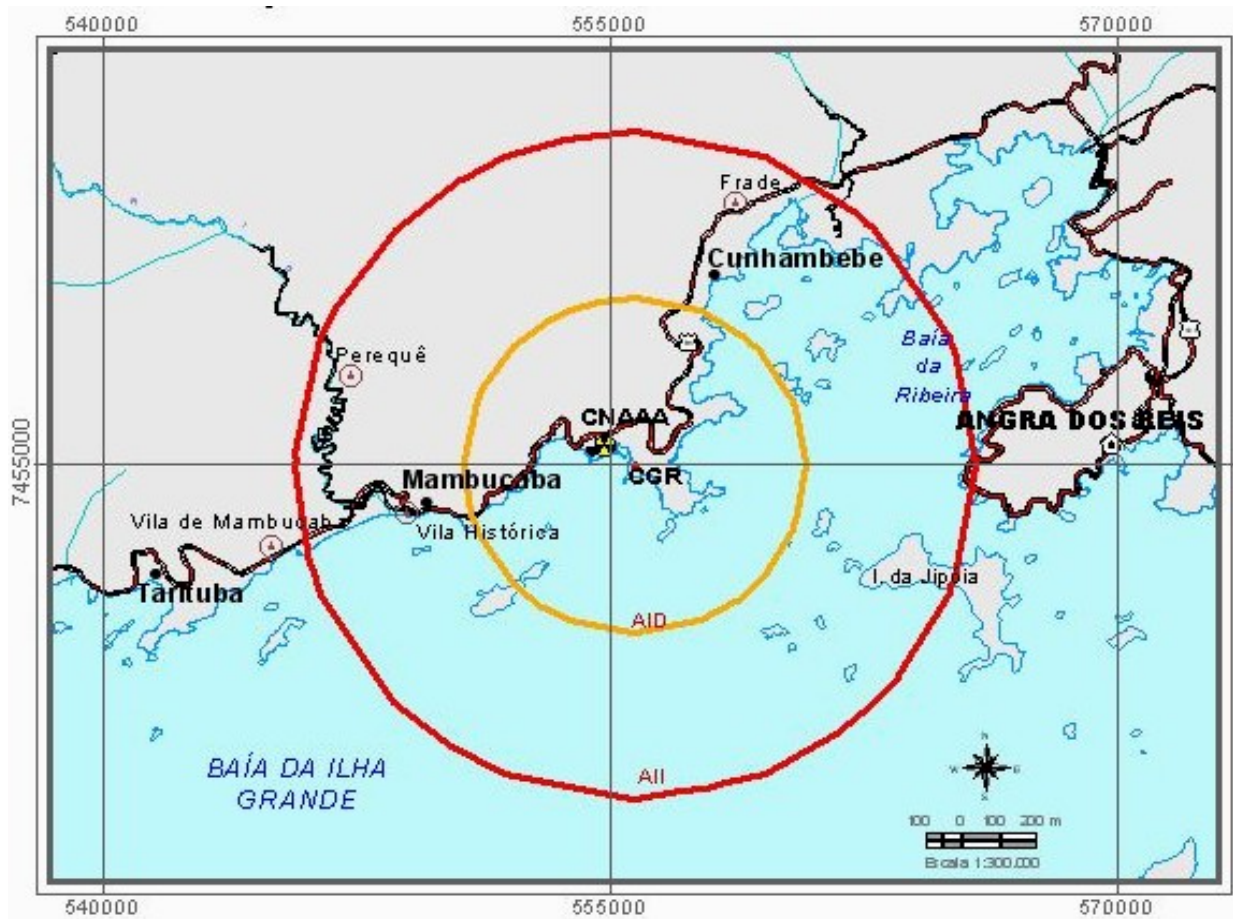


Figure 1 - Location map of Nuclear Central Admiral Álvaro Alberto (CNAAA) (provided by Eletronuclear (2005)) (AID = 5 km from power plant and AII = 15 km from power plant)

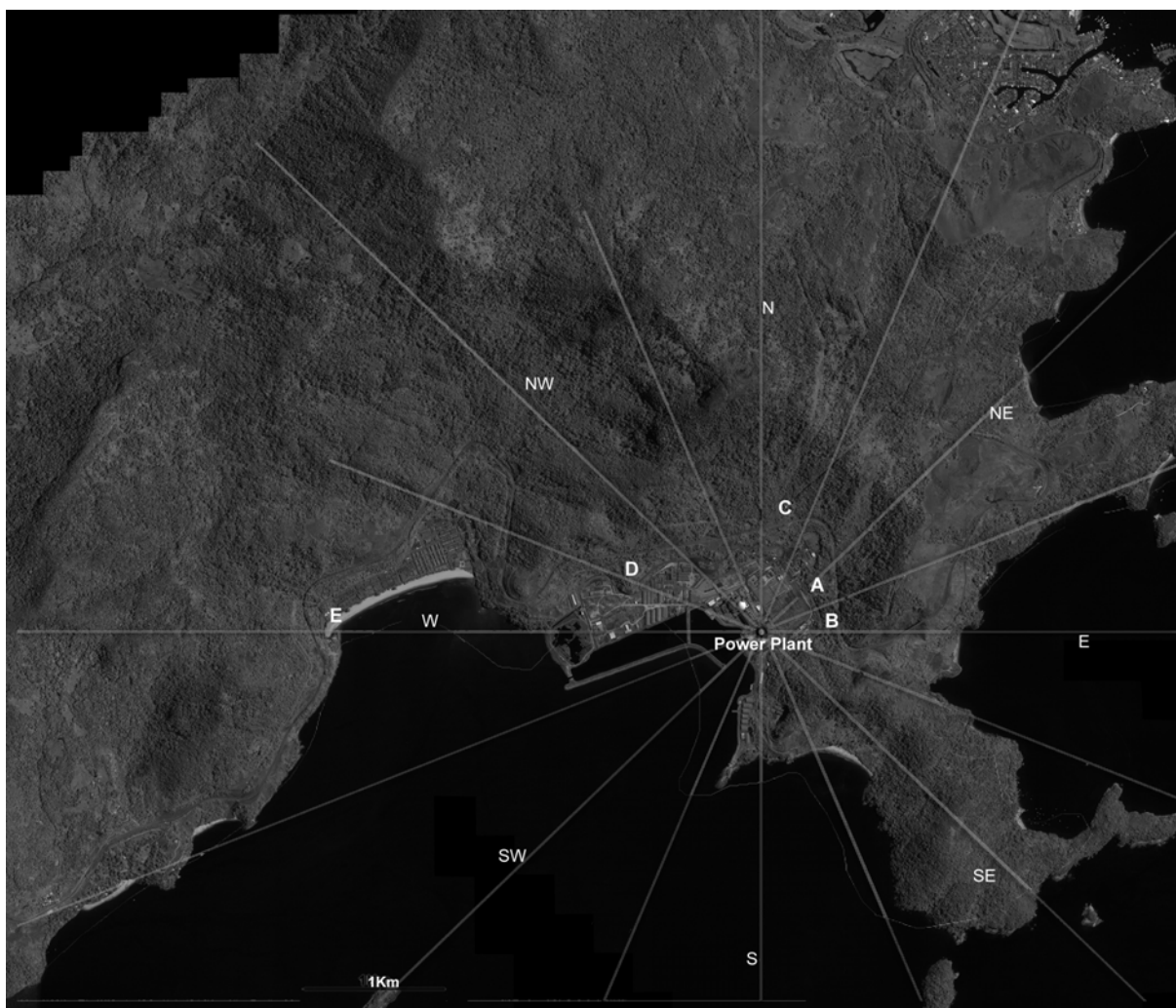


Figure 2 - Figure showing the location of air sampling points (provided by Eletronuclear). The distances from power plant increased from sampling point A to E: 500 m (A), 510 m (B), 800 m (C), 1000 m (D) and 2900 m (E).



Figure 3 - Air sampling apparatus showing the pump, the hose and the bottle containing a glass frit and 400 ml of NaOH (3 M) solution (A) and sampling station (B)

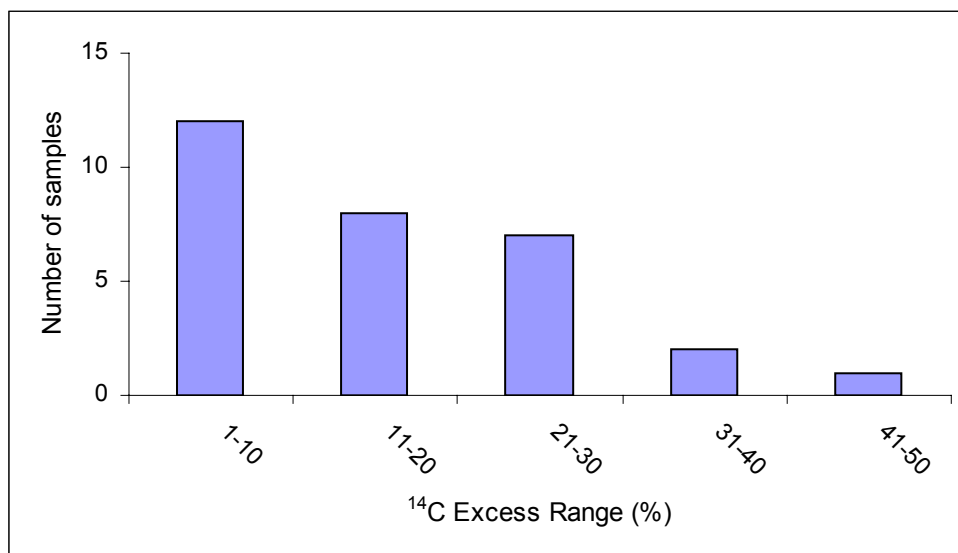


Figure 4 - Distribution of samples based on the ^{14}C excess ranges (%)

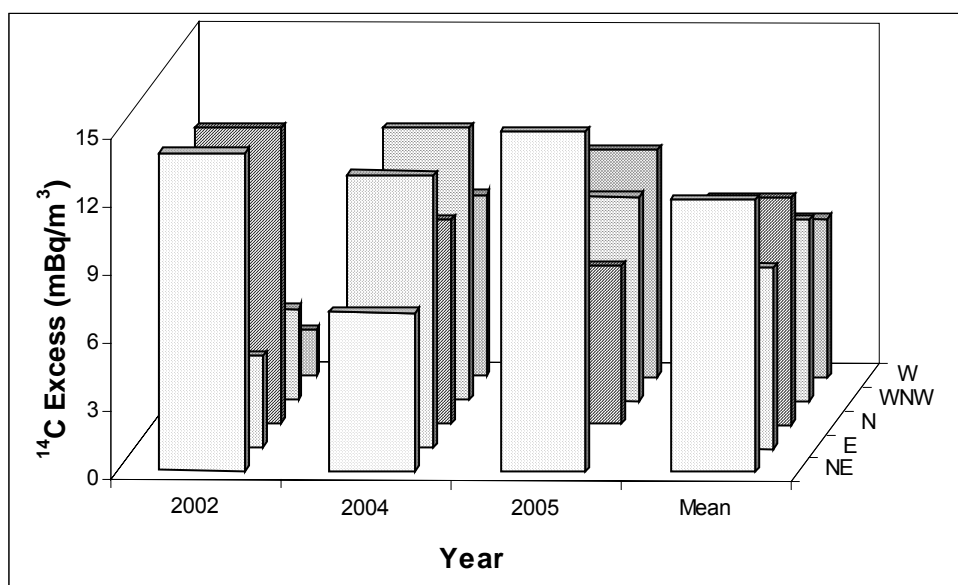


Figure 5 - ^{14}C excess during the three years of sampling and the means. The analytical errors were lower than 3% and the standard deviations (for the mean values) were of ± 4 , ± 3 , ± 4 and ± 4 mBq/m^3 for the NE, N, WNW and W sampling points, respectively.

TABLES

Table 1 - Final heights calculated based on the mean height of terrain where sampling points were located and the height of vent stacks of Angra I (55 m) and Angra II (126 m)

SAMPLING SITE	DISTANCE FROM POWER PLANTS (m)	MEAN HEIGHT OF TERRAIN (m)	FINAL HEIGHT OF VENT STACK ANGRA I (m)*	FINAL HEIGHT OF VENT STACK ANGRA II (m)
NE	398	60	0	70
E	420	60	0	70
N	800	130	0	0
WNW	1000	45	10	85
W	2900	25	30	105

*Zero values means that terrain is higher than vent stack

Table 2 - ^{14}C Calculated and measured ^{14}C excess activities for all sampling sites for each year

SAMPLING SITES		NE	E	N	WNW	W	
2002	Calculated values	mBq/m ³	16	0.3	65	60	2
	Measured values	mBq/m ³	14	4	13	4	2
2004	Calculated values	mBq/m ³	52	12	9	1	0.7
	Measured values	mBq/m ³	7	12	9	12	8
2005	Calculated values	mBq/m ³	54	-	2	0.5	0.2
	Measured values	mBq/m ³	15	-	7	9	10

Table 3 - Mean air ^{14}C concentration for each sampling site, related to 2003, 2004 and 2005 and ^{14}C concentration found in vegetation samples taken in 2004 and 2005

SAMPLING SITES	DISTANCES FROM POWER PLANT (m)	AIR 2003-2005 (Bq/kgC)	VEGETATION 2004 (Bq/kgC)	VEGETATION 2005 (Bq/kgC)
NE	390	298±2	299±2	296±1
E	420	278±1	264±1	285±1
N	800	288±2	261±1	284±2
WNW	1000	278±1	252±1	243±1
W	2900	272±1	255±2	246±1

ARTIGO III

^{14}C content in vegetation in the vicinities of Brazilian nuclear power reactors

Cíntia Melazo Dias¹, Roberto Ventura Santos², Kristina Stenström³, Iêda Gomes Nicoli¹,
Rosângela da Silveira Corrêa¹ and Göran Skog⁴

¹National Commission of Nuclear Energy (CNEN), Brasilia, Brazil

²Institute of Geology, University of Brasilia, Brasilia, Brazil

³Department of Physics, Division of Nuclear Physics, Lund University- Lund-Sweden

⁴Radiocarbon Dating Laboratory, GeoBiosphere Science Centre, Lund University- Lund - Sweden

Abstract

^{14}C specific activities were measured in terrestrial organisms collected in the influenced area around Brazilian nuclear power reactors. Grass samples were taken up to five km from reactors and at different wind directions in 2004 and 2005. The single stage accelerator mass spectrometry (SSAMS) at Lund University was employed for the measurements of the ^{14}C content of samples. The results varied between 227 and 299 Bq/kgC. Half of the samples showed background specific activities, and the other half of the samples had a ^{14}C excess of 1-18%, except for two samples that showed 22% higher ^{14}C specific activities than background. The greatest specific activities were found close to the plants and/or along the main wind directions (NE and NNE), decreasing with increasing distance from the reactors. It seems that there is a trend to a Gaussian plume dispersion in the studied area, but in order to confirm this pattern it is necessary to employ a long-term sampling and, simultaneously, determine the ^{14}C discharges of the source and the activity concentration of the ambient air. The unexpected higher ^{14}C excess found in two samples can be related to topography since it acts as a barrier to the dispersion of the plume, favoring the ^{14}C accumulation in the sampled area. In conclusion, there is a clear signal of anthropogenic ^{14}C in the environment of the influenced area, especially to the northeastwards sampling points of the power plants, in the main wind direction.

1 INTRODUCTION

The radioactive nuclide ^{14}C is naturally produced in the lower stratosphere and upper troposphere by interactions between neutrons (generated from cosmic rays) and nitrogen ($^{14}\text{N}(\text{n,p})^{14}\text{C}$). Nuclear power plants also emit this nuclide during routine operation, mainly *via* gaseous effluents, such as hydrocarbons, ^{14}CO and $^{14}\text{CO}_2$. While the main chemical form of release for BWRs is $^{14}\text{CO}_2$, PWRs predominantly release ^{14}C as

hydrocarbons (Kunz, 1985, Veres *et al.*, 1995 and Stenström, 1996a), which are mixed throughout the atmosphere, converted to $^{14}\text{CO}_2$ and incorporated into living organisms by photosynthesis. Because of the biological importance of carbon and the fact that ^{14}C is a long-lived radioactive nuclide, it is of great interest to determine environmental ^{14}C concentrations.

Assuming gas exchange equilibrium between atmospheric CO_2 and vegetation carbon reservoirs, the ^{14}C specific activity of plants may vary according to the atmospheric one. Therefore, many studies have investigated the ^{14}C environmental content in vicinities of nuclear power plants using vegetation as bioindicators (Obelic *et al.*, 1986, Levin *et al.*, 1988, Loosli and Oeschger, 1989, Buzinny *et al.*, 1995, Milton *et al.*, 1995, Stenström *et al.*, 1996b, Buzinny *et al.*, 1998, Milton and Kramer, 1998, Stenström *et al.*, 1998, Mikhajlov *et al.*, 1999 and Magnusson *et al.*, 2004).

Beside ^{14}C related to nuclear power plants, the concentration of ^{14}C in the atmosphere is also affected by Suess effect and the bomb effect, two opposing mechanisms that modulate the ^{14}C background levels. The Suess effect is the decrease of ^{14}C activity in the atmosphere because of the emission of ^{14}C -free CO_2 by the combustion of fossil fuels, thus diluting the atmospheric $^{14}\text{CO}_2$ concentration. On the other hand, the bomb effect - caused by the atmospheric testing of nuclear weapons in the past - doubled $^{14}\text{CO}_2$ atmospheric activity by the year of 1963. After the detonations have ceased, the ^{14}C activity has steadily decreased due to the CO_2 uptake by the oceans and by the biosphere, and also because of the Suess effect (Levin and Kromer, 1997 and Levin and Kromer, 2004).

Considering these modulation sources, the current $^{14}\text{CO}_2$ atmospheric background (2004) is, approximately, 241 Bq/kgC or $\sim 44 \text{ mBq/m}^3$. Compared to 226 Bq/kgC, or 34 mBq/m^3 , which is the “zero point” in ^{14}C scale registered before industrial revolution and nuclear explosions, this mean is still a little bit higher.

The present day atmospheric background reference value corresponds to measurements of plants and atmospheric air taken in “clean air stations” in the northern hemisphere (Levin and Kromer, 2004 and Magnusson *et al.*, 2004). There were some measurements in the tropics in the 90ies (Rozanski *et al.*, 1995) but, nowadays, only a few laboratories in the northern hemisphere monitor the ^{14}C background levels. Nevertheless, the differences in the concentrations between the hemispheres seem to be negligible and, therefore, the data from the northern hemisphere can be used as reference for the southern hemisphere (Levin and Heissheimer, 2000).

This study aims to investigate the $^{14}\text{CO}_2$ content around the nuclear complex in Brazil through vegetation analyses. Grass of the gender *Panicum* was selected as indicator

because of its availability regardless of place and season in the area. The Brazilian Admiral Álvaro Alberto (CNAEA) nuclear complex has two installed PWR's power reactors named Angra I and Angra II. A third power reactor named Angra III is being installed. This research presents the first data about the $^{14}\text{CO}_2$ specific activities in terrestrial organisms in the vicinities of Brazilian nuclear power plants.

2 METHODS

2.1 THE REACTORS

The production of ^{14}C in PWR reactors occurs in the coolant, fuel, structure material and cladding *via* neutron reactions with nitrogen ($^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$) and oxygen ($^{17}\text{O}(n,\alpha)^{14}\text{C}$) (Davis Jr., 1979, IAEA, 2004). However, only the ^{14}C produced in the coolant is usually released as airborne effluents to the environment. According to Unsear (2000), PWR's reactors emit an average of $0.22 \text{ TBq/GW year}^{-1}$. This value is based on data related to the 1990-1994 period.

Angra I is a Westinghouse PWR reactor operating since 1985 with a maximum electrical output of $657 \text{ MW}_{\text{el}}$. Angra II is a Siemens PWR reactor with $1350 \text{ MW}_{\text{el}}$ and it is in operation since 2001. The heights of their vent stack are 50 m and 126 m, respectively.

The nuclear central is located at Itaorna beach, in Angra dos Reis region (Rio de Janeiro state), 133 km of Rio de Janeiro city. It occupies an area of 1250 ha and is surrounded by Serra do Mar mountains in the north, east and west sides and by the Ilha Grande Bay in the south side (Figure 1) (Eletronuclear, 2005).

There are approximately 10 000, 54 000 and 657 000 (Eletronuclear, 2005) people living within 5 km, 15 km and 50 km of the nuclear central, respectively. The 5 and 15 km areas are directly influenced by the operation of power plants and are named "direct influenced areas" (AID-5 km and AIID-15 km, respectively) (Eletronuclear, 2005).

2.2 SAMPLING

Grass of the gender *Panicum* was collected within the AID-5 km region. Samples A04, B04, C04, D04, E04 and A05, B05, C05, D05, E05 were taken in November 2004 and June 2005, respectively, at the same sites, which are within less than 3 km (A = 500 m, B =

510 m, C= 800 m, D = 1000 m and C = 2900 m) from the complex, inside a zone that is considered as very impacted one (see Figure 2). For practical purposes, this group of samples will be referred as *impact zone samples*.

Another group of samples named *CNAAA perimeter zone samples* was collected up to 5 km from the complex in the directions of Angra dos Reis (samples AR1, AR2, AR3, AR4, AR5) and Parati (PA1, PA2, PA3, PA4, PA5) cities, with an interval of 1 km from each other, in June 2005 (Figure 2). These two groups of samples aim to investigate how vegetation records the atmospheric ^{14}C fluctuations, considering that detectable levels of dispersed ^{14}C are not expected at distances above 4 km from power plants (Kim *et al.*, 2000, Milton *et al.*, 1998, Magnusson *et al.*, 2004, Levin *et al.*, 1998).

2.3 MEASUREMENTS

The grass samples were washed with distilled water, dried (70 °C) and grinded in a mortar. The grinded material (15 mg) was mixed with approximately 200 mg of copper oxide, combusted to CO_2 in an evacuated graphitization line and reduced to elemental carbon (Stenström, 1995). A few milligrams of the elemental carbon were then pressed into aluminium sample holders and placed in the ion source of the single stage accelerator mass spectrometry system (SSAMS) (Synal *et al.*, 2000, Schroeder *et al.*, 2004), at the GeoBiosphere Science Centre, Lund University, Sweden (Skog, 2006). Finally, the ^{14}C activities of the samples were obtained from the SSAMS analysis. The precision of the SSAMS system is around 5‰ and the sensitivity is better than 0.05 dpm/gC (Schroeder *et al.*, 2004), corresponding to 0.8 $\mu\text{Bq/mgC}$.

2.4 METEOROLOGICAL DATA

Wind data were recorded by four meteorological towers spread around the complex and operated by the CNAAA. The main tower (Tower A), which is 150 m above ground, has 3 meteorological sensors placed at 60, 110 and 150 m. Since the samples were collected at elevations below 100 m, data gathered at level 60 were used for the interpretations in this study. Besides, according to the World Meteorological Organization, data taken at this level are the most representative with respect to wind conditions.

The wind roses for 2004 and 2005 can be seen in Figure 3 ((A) and (B), respectively). Two main dominant directions have been observed in the CNAAA region: 1) a dominant direction, N/NE and 2) the second dominant direction, SW/S (Eletronuclear, 2005).

Concerning atmospheric dispersion, according to Leão (1998), the dispersion factors, calculated based on a Gaussian plume model around CNAAA, showed that the most impacted sectors were indeed NE and NNE.

3 RESULTS AND DISCUSSION

3.1 GENERAL RESULTS

Measured ^{14}C specific activities in the grass taken around CNAAA varied between 227 and 299 Bq/kgC. Among the analyzed samples, ten showed no excess of ^{14}C , nine presented excess up to 18% and two samples (A04 and A05) showed excess of 22% above background (Table 1).

Except for the samples A04 and A05, similar results were reported for other LWR's facilities around the world (see Table 2). In Sweden, for example, an excess of 11% was measured in terrestrial organisms taken around three BWR facilities (Stenström *et al.*, 2000). Vokal and Kobal (1997) showed enhanced ^{14}C content in tree rings collected around a Westinghouse 632 MW_{el} PWR reactor, the Krsko Nuclear Power Plant (NPP), in Slovenia. Loosli and Oeschger (1989) measured ^{14}C excess in the vicinities of four PWR's reactors (Table 2).

The scenario is quite different for CANDU nuclear reactors, which are the most important ^{14}C emitters among nuclear facilities (Unsear, 2000, IAEA n° 421, 2004). Milton *et al.* (1995), for example, have reported, for vegetation samples, values up to 4 890 Bq/kgC (20 times higher than background, at the time). Kim *et al.* (2003) found results between 335 and 897 Bq/kgC for pine needle samples taken at 1 km of distance from CANDU reactors (Table 2). Efforts have been employed in order to decrease the ^{14}C emissions by these reactors (Unsear, 2000), but the measured activities are still higher comparing to LWRs.

3.2 IMPACT ZONE SAMPLES

All samples taken within less than 3 km from the power plants (impact zone) showed ^{14}C excess. The highest excesses values were found for samples placed near to the

reactors and the lower values were found for samples collected far from facilities. While samples from site A presented elevated values in both 2004 and 2005, samples of site B and C showed more elevated values in 2005 and moderated values in 2004. In contrast, samples from site D presented near background values in both 2004 and 2005. Figure 2 and 4 reveal that the ^{14}C excess varies according to sample location and wind direction

Samples collected along the main wind direction of Leão (1998) studies (sites A and C, to the northeast of the power plants) and samples of site B, that are very close to the nuclear central (510 m), presented the highest ^{14}C excess values. Beside wind direction and proximity to the power plants, the topography seems to play a major role on wind dispersion, considering that the Serra do Mar mountains are located at the north side of the power plant. The excess values observed in sampling site A is probably related to its elevation, i.e. it is about 80 m above sea level, and power plants are at sea level but the vent stacks are of 60 and 126 m high, for Angra I and II, respectively. Hence, at these sites the atmosphere can be more enriched in ^{14}C due to the concentration of the plume, which may favor the accumulation of greater ^{14}C amounts by vegetation. Similar conclusions were also reached by Otlet *et al.* (1983), who measured the highest activities in terrestrial organisms taken at more elevated sites around Sellafield, a reprocessing plant located in England.

3.3 CNAAA PERIMETER ZONE SAMPLES

Grass samples from CNAAA perimeter were taken in seven different sections of the 22.4° rose wind directions (Figure 2). The measured specific activities were very close to the background, except for samples AR3 and AR4, that showed higher excesses (7 and 4 Bq/kgC, respectively) (Figure 5). In general, samples placed to the northeast of the power plants present higher ^{14}C excess values.

Among samples taken between the power plants and Parati city, the PA1 and PA3 ones were collected near sampling sites D and E, which are placed, respectively, at WNW and W of power plants. However, sites PA1 and PA3 are located close to an important motorway that may have affected the results (lower than background) because of the emission of ^{14}C -free by fossil fuel combustion. Stenström *et al.* (1996b) also found a similar result for some vegetation samples taken at a motorway located 5 km from a nuclear power plant. Samples PA2, PA4 and PA5 were situated at WNW, WSW, WSW, respectively, out of the main impacted areas. Their location may explain the activity values close to background.

Among the samples collected between the reactor and Angra dos Reis city, AR1 and AR2, were in E and ENE direction, respectively, and samples AR3, AR4 and AR5 were in NE, NNE and NNE sector, respectively. While samples from sites AR1 and AR2 presented values close to background, the others had excess significantly above background levels. Considering the samples from sites A, C, AR3, AR4 and AR5 that are at increasing distances from the power plant and along the main wind direction, their decrease in ^{14}C excess values may be explained by a Gaussian plume model (Figure 6).

In order to validate this interpretation, long- term sampling must be employed, including source strength and atmospheric air, especially because CNAAA is situated in a topographically complex region and at seashore with maritime breeze regimes, factors that are known to influence dispersion patterns (Ottlet *et al*, 1983). Just as an example, Levin *et al* (1988) calculated the ^{14}C source strength based on Gaussian plume model using the measured activity of plants and atmospheric air taken around two German BWR power plants. Their theoretical and observed results compared well for plain terrains (within a factor of two), but revealed significant variations far from 1 km and for rough terrains.

4 CONCLUSION

The measured activities in this study support the atmospheric study performed in the same area which indicates that highest excess ^{14}C values are located at NE from the power plants.

Although the ^{14}C dispersion trend may be explained by a Gaussian plume dispersion model, long term monitoring is highly recommended.

Considering that nuclear power plants of PWR type emit ^{14}C in a lesser extent, and mainly in hydrocarbon form, than others facilities (Unsear, 2000), some unexpected ^{14}C excesses were found in samples taken at the “impact zone”.

Topography around power plants seems to have an important role in ^{14}C dispersion. The sampling points located at elevated terrains are almost as high as the vent stacks of the power plants (that are at sea level), enhancing the chances to measure ^{14}C due to the high concentration of the plume. Therefore, at these places, vegetation may incorporate more ^{14}C . It is also important to emphasize that the hilly terrains around CNAAA, acting as a barrier to the plume dispersion, favor the ^{14}C accumulation in the sampled region.

5 REFERENCES

- ATARASHI-ANDOH, M., AMANO, H., GUO, J. and ARA KHATOON, A. Measurement of C-14 distribution in forest around nuclear facilities. In: PROCEEDINGS OF THE INTERNATIONAL SYMPOSIUM: TRANSFER OF RADIONUCLIDES IN BIOSPHERE. PREDICTION AND ASSESSMENT, Sep, 2003, Japan .408 p. p. 282-287.
- BUZINNY, M.; KOVALYUKH, N.; LIKHTARJOV, I.; LOS, I.; NESVETAJLO, V.; PAZDUR, M. F.; SKRIPKIN, V.; SHKVORETS, O. and SOBOTOVICH, E. Ecological chronology of nuclear fuel cycle sites. **Radiocarbon**, vol.37, n. 2, p. 469-473, 1995.
- BUZINNY, M.; LIKHTAREV I.; LOS, I.; TALERKO, N. and TSIGANKOV, N. ^{14}C analyses of annual tree rings from the vicinity of the Chernobyl npp. **Radiocarbon**, vol. 40, n. 1, p. 373-379, 1998.
- ELETRONUCLEAR S.A (ELETRONUCLEAR). **Estudo de Impacto Ambiental – Unidade 3 da Central Nuclear Almirante Álvaro Alberto (CNAEA) (EIA)**. Rio de Janeiro, 2005. Technical Report with scientific annexes.
- INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY-IAEA. **Management of waste containing tritium and carbon-14**. Technical Reports Series n^o 421, Vien, 2004.
- Jr. DAVIS, W. Carbon-14 productions in nuclear reactors. In: CARTER, M.W., MOGHISSI, A. A. e KAHN, B.(Ed.). **Management of low-level radioactive waste**. vol. 1. Oxford Pergamon Press, 1979. p.151-191.
- KIM, C.-K., LEE, S.-K., RHO, B.-H. and LEE, Y.G. Environmental distribution and behavior of ^3H and ^{14}C around Wolsong nuclear power plants. **Health Physics**, vol. 78, n. 6, p.693-699, 2000.
- KIM, C.-K., LEE, S.-K, RHO, B.-H and KIM, H.-J. Tritium and ^{14}C in the environment around Wolsong power plant. In: INTERNATIONAL CONFERENCE ON THE PROTECTION OF THE ENVIRONMENT FROM THE EFFECTS OF IONIZING RADIATION, 2003, Stockholm (Sweden) p. 167-170.
- KUNZ, C. ^{14}C discharge at three light-water reactors. **Health Physics**, vol. 49, n. 1, p. 25-35, 1985.
- LEÃO, I., L., B. **Cenários ambientais em centrais nucleares: integração da meteorologia do local com outros fatores ambientais por meio do sistema de informações geográficas**. Rio de Janeiro, 1998. 102 p.Master Thesis. Instituto Militar de Engenharia (IME).
- LEVIN, I. and HESSHAIMER, V. Radiocarbon-a unique tracer of global carbon cycle dynamics. **Radiocarbon**, vol. 42, n 1, p. 69-80, 2000.
- LEVIN, I. and KROMER, B. The tropospheric $^{14}\text{CO}_2$ levels in mid latitudes of the northern hemisphere (1959-2003). **Radiocarbon**, vol. 46, nr. 3, p. 1261-1272, 2004.
- LEVIN, I. and KROMER, B. Twenty years of atmospheric $^{14}\text{CO}_2$ observations at Schauinsland Station, Germany. **Radiocarbon**, vol. 39, n. 2, p. 205-218, 1997.
- LEVIN, I., KROMER, B., BARABAS, M. and MÜNNICH, K. O. Environmental distribution and long-term dispersion of reactor $^{14}\text{CO}_2$ around two german nuclear power plants. **Health Physics**, vol. 54, n 2, p. 149-156, 1998.
- LOOSLI, E. H. and OESCHGER, H. ^{14}C in the environment of Swiss nuclear installations. **Radiocarbon**, vol. 31, n 3, p. 747-753, 1989.

MAGNUSSON, A.; STENSTRÖM, K.; SKOG, G.; ADLIENE, D., ADLYS, G.; HELLBORG, R.; OLARIU, A.; ZAKARIA, M.; RÄÄF, C. and MATTSSON, S. Levels of ^{14}C in the terrestrial environment in the vicinity of two European nuclear power plants. **Radiocarbon**, vol. 46, n 2, p. 863-868, 2004.

McNAMARA, N. e McCARTNEY, M. A new estimate of atmospheric discharges from Sellafield. **Journal Environmental Radioactivity**, v. 41, n. 1, p. 1-10, 1998.

MIKHAJLOV, N. D., KOLKOVSKY, V. and PAVLOVA, I. D. Radiocarbon distribution in northwest Belarus near the Ignalina nuclear power plant. **Radiocarbon**, vol. 41, n 1, p. 75-79, 1999.

MILTON, G. M. and KRAMER, S. J. Using ^{14}C as a tracer of carbon accumulation and turnover in soils. **Radiocarbon**, vol. 40, n.2, p. 999-1011, 1998.

MILTON, G. M.; KRAMER, S. J.; BROWN, R. M.; REPTA, C. J. W.; KING, K. J. and RAO, R. R. Radiocarbon dispersion around Canadian nuclear facilities. **Radiocarbon**, vol. 37, n. 2, p. 485-496, 1995.

OBELIC, B.; KRAJCAR-BRONIC, I.; SRDOC, D. and HORVATINIC, N. Environmental ^{14}C levels around the 632 Mw_e nuclear power plant KRSKO in Yougoslavia. **Radiocarbon**, vol. 28(2A), p.644-648, 1986.

OTLET, R. L., WALKER, A. J. and LONGLEY, H. The use of ^{14}C in natural materials to establish the average gaseous dispersion patterns of releases from nuclear installations. **Radiocarbon**, vol 25, n^o 2, p. 593-602, 1983.

ROUSSEL-DEBET, S.; GONTIER, G. and SICLET, F. Distribution of carbon-14 in the terrestrial environment close to French nuclear power plants. **Journal of Environmental Radioactivity**, in press, p. 1-14, 2006.

ROZANSKI, K., LEVIN, I., STOCK, J., FALCON, R. E. G. and RUBIO, F. Atmospheric $^{14}\text{CO}_2$ variations in the equatorial region. **Radiocarbon**, vol. 37, n^o 2, p. 509-515, 1995.

SCHROEDER, J. B.; HAUSER, T. M.; KLODY, G. M. and NORTON, G. A. Initial results with low energy single stage AMS. **Radiocarbon**, vol. 46, n 1, p. 1-4, 2004.

SKOG, G. The single stage AMS machine at Lund University: Status Report. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, in press, 2006.

STENSTRÖM, K. **New applications of ^{14}C measurements at the Lund AMS facility.** Lund, 1995. 100 p. PhD Dissertation. Lund University.

STENSTRÖM, K., ERLANDSON, B., MATTSSON, S. THORNBERG, C., HELLBORG, R., KIISK, M., PERSSON, P. and SKOG, G. **^{14}C emission from swedish nuclear power plant and its effect on the ^{14}C levels in the environment.** Sweden, 2000. 50p. Report SSI-P 928.95.

STENSTRÖM, K.; ERLANDSON, B.; HELLBORG, R.; WIEBERT, A. and SKOG, G. Determination of the $^{14}\text{CO}_2$ and the total airborne ^{14}C releases from two Swedish light-water reactors using accelerator mass spectrometry. **Radioactivity and Radiochemistry**, vol.7, n. 1, p.32-36, 1996a.

STENSTRÖM, K.; ERLANDSON, B.; HELLBORG, R.; WIEBERT, A. and SKOG, G. Environmental levels of ^{14}C around a Swedish nuclear power plant measured with accelerator mass spectrometry. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**. 113, p. 474-476, 1996b.

STENSTRÖM, K.; GORAN, S.; THORNBERG, C.; ERLANDSON, B.; HELLBORG, R.; MATTSSON, S. and PERSSON, P. ^{14}C levels in the vicinity of two Swedish nuclear power plants and at two “clean-air” sites in southernmost Sweden. **Radiocarbon**, vol. 40, n. 1, p. 433-438, 1998.

SYNAL, H. A., SAW, J. and SUTER, M. New concepts for radiocarbon detection systems. **Nuclear Instruments and Methods in Physisc Research B** 161-163, p.29-36, 2000.

UCHRIN, G.; HERTELEND, E.; VOLENT, G.; SLAVIK, O.; MORÁVEK, J.; KOBAL, I. and VOKAL, B. ^{14}C measurements at *PWR*-type nuclear power plants in three middle European countries. **Radiocarbon**, vol. 40, n. 1, p. 439-446, 1998.

UNITED NATIONS. **Sources and Effects of Ionizing Radiation. Scientific Committe on the Effects of Atomic Radiation – UNSCEAR**. New York, 2000. Report to the General Assembly, with scientific annexes.

VERES, M.; HERTELEND, E.; UCHRIN, G.; CSABA, E.; BARNABÁS, I.; ORMAI, P.; VOLENT, G. e FUTÓ, I. Concentration of radiocarbon and its chemical forms in gaseous effluents, environmental air, nuclear waste and primary water of a pressurized water reactor power plant in Hungary. **Radiocarbon**, vol. 37, n. 2, p. 497-473, 1995.

VOKAL, B. and KOBAL, I. Radiocarbon releases at the KRSKO nuclear power plant. **Radiocarbon**, vol. 39, n. 3, p. 285-292, 1997..

FIGURES

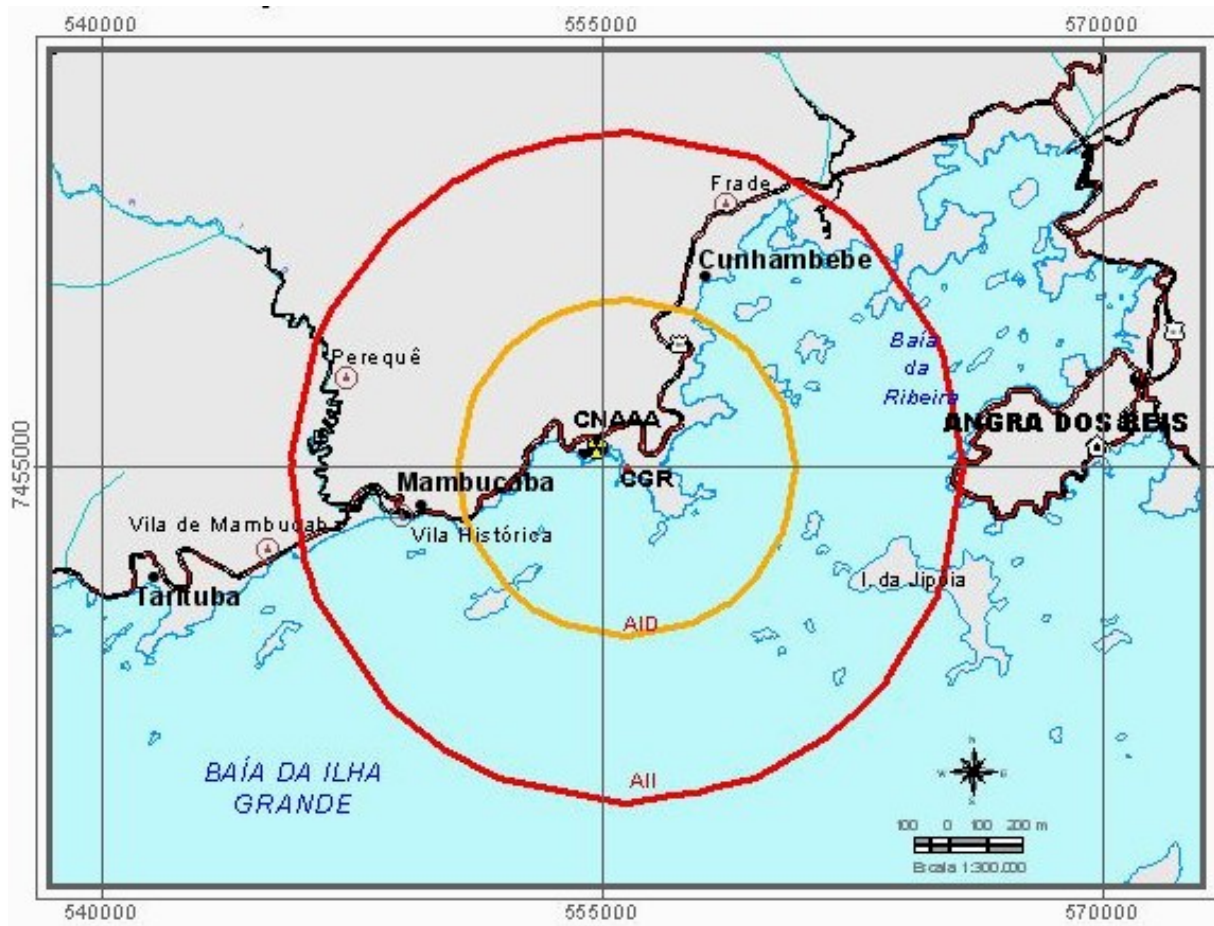


Figure 1 - Location map of Central Nuclear Almirante Álvaro Alberto (CNAAA) (map provided by Eletronuclear (2005) (AID = 5 km from power plant and AII = 15 km from power plant).

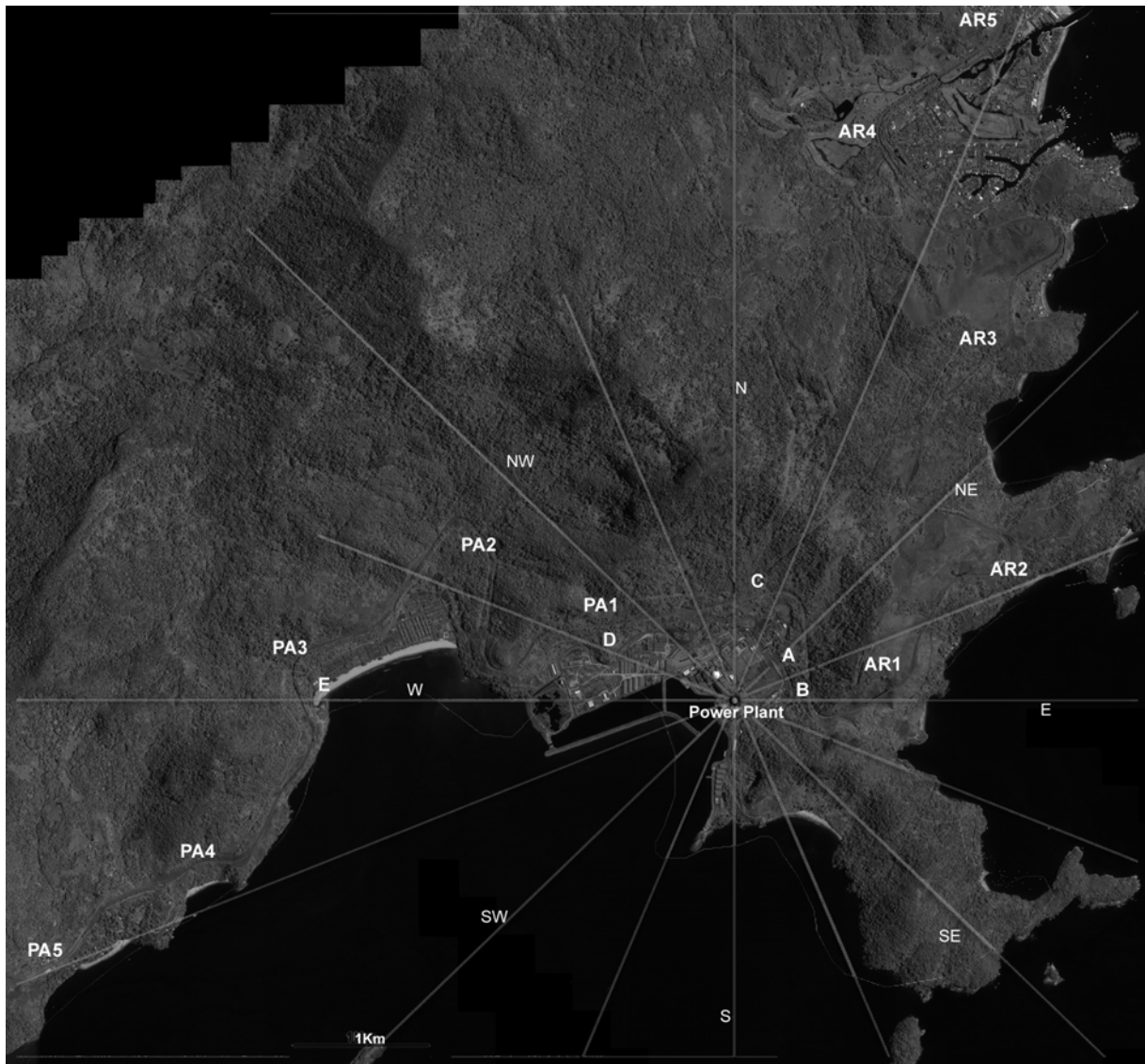


Figure 2 - Figure showing the location of the sampling sites where grass was collected (provided by Eletronuclear). The *impact zone* group of samples corresponds to the sites A, B, C, D and E. These samples were collected in 2004 (A (04), B (04), C (04), D (04) and E (04)) and 2005 ((A (05), B (05), C (05), D (05) and E (05))). The *perimeter zone* group (collected in June 2005) corresponds to the sites AR1, AR2, AR3, AR4 and AR5 (Angra dos Reis city direction) and PA1, PA2, PA3, PA4 and PA5 (Paraty city direction).

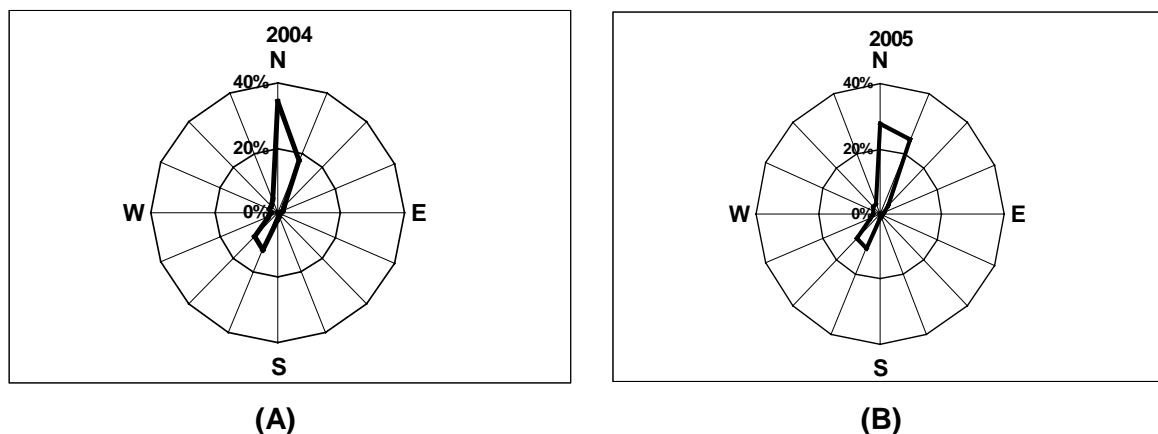


Figure 3 - Preferable wind directions in 2004 (A) and 2005 (B) (data provided by nuclear power plants' operators)

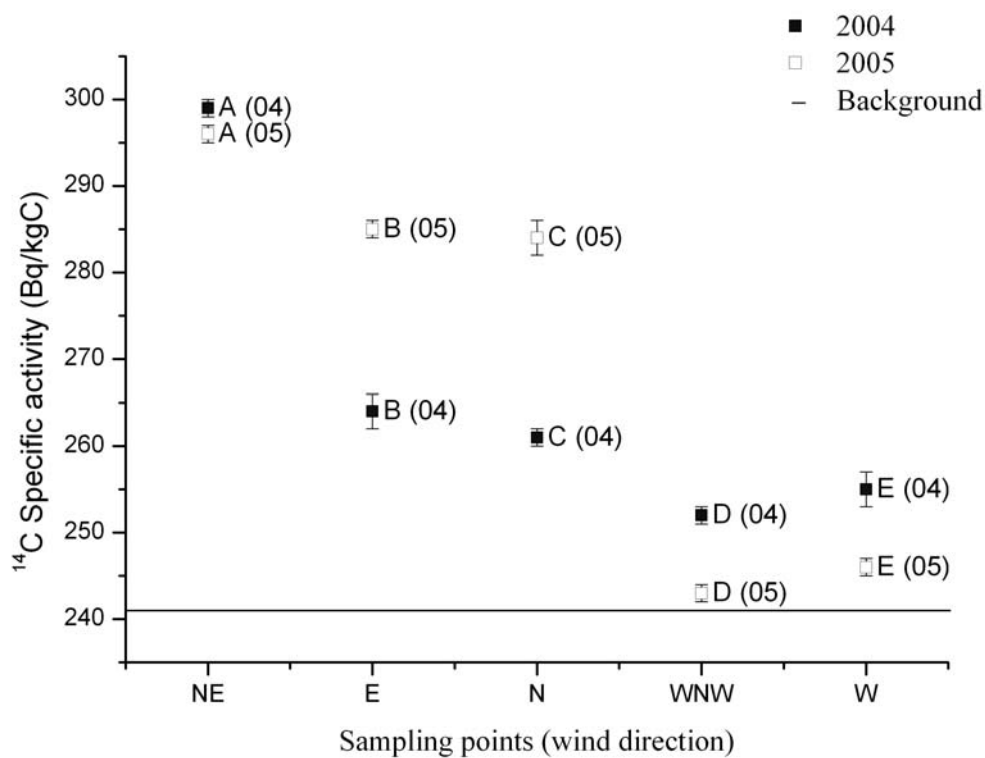


Figure 4 - ^{14}C specific activity found in grass samples collected in 2004 and 2005, at the same sites, within 3 km of power plant (*impact zone* samples). This region is inside the 5 km “direct influenced area” (AID - 5 km). The sampling sites are the same sites used for CNAEA’s environmental monitoring control programs.

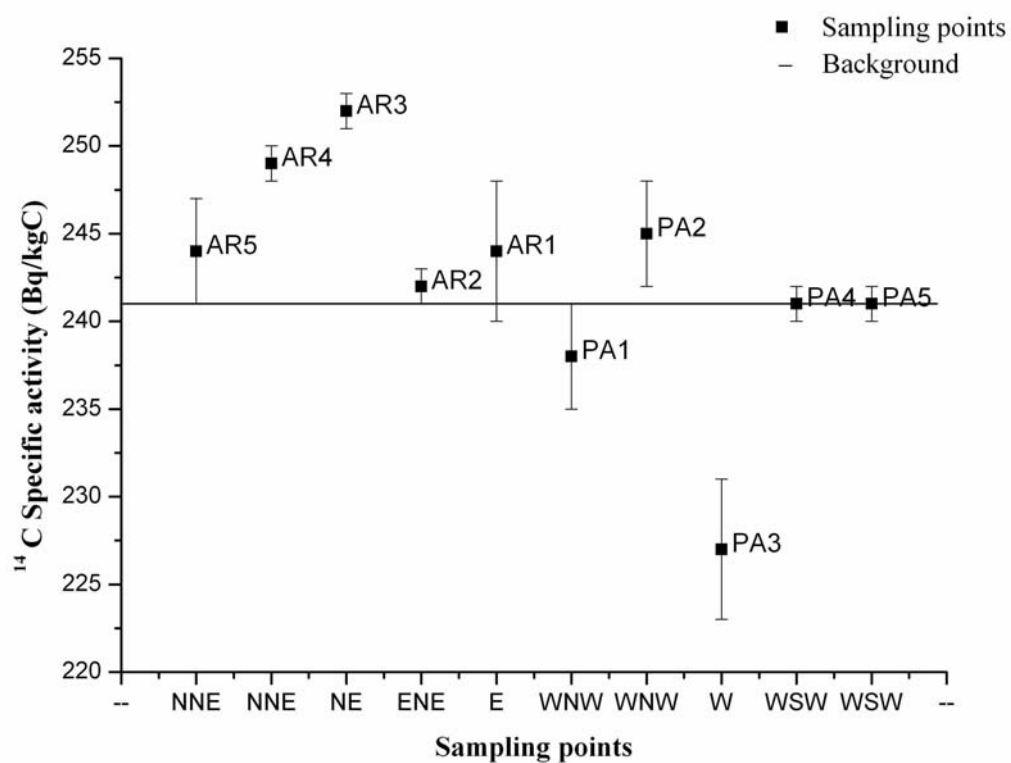


Figure 5 - ^{14}C specific activity in grass samples taken in 2005 along the perimeter of CNAAA. The AR1, AR2, AR3, AR4 and AR5 are the sampling sites at Angra dos Reis city direction (the most impacted region). The PA1, PA2, PA3, PA4 and PA5 sampling sites are at Parati city direction (*CNAAA perimeter zone* samples).

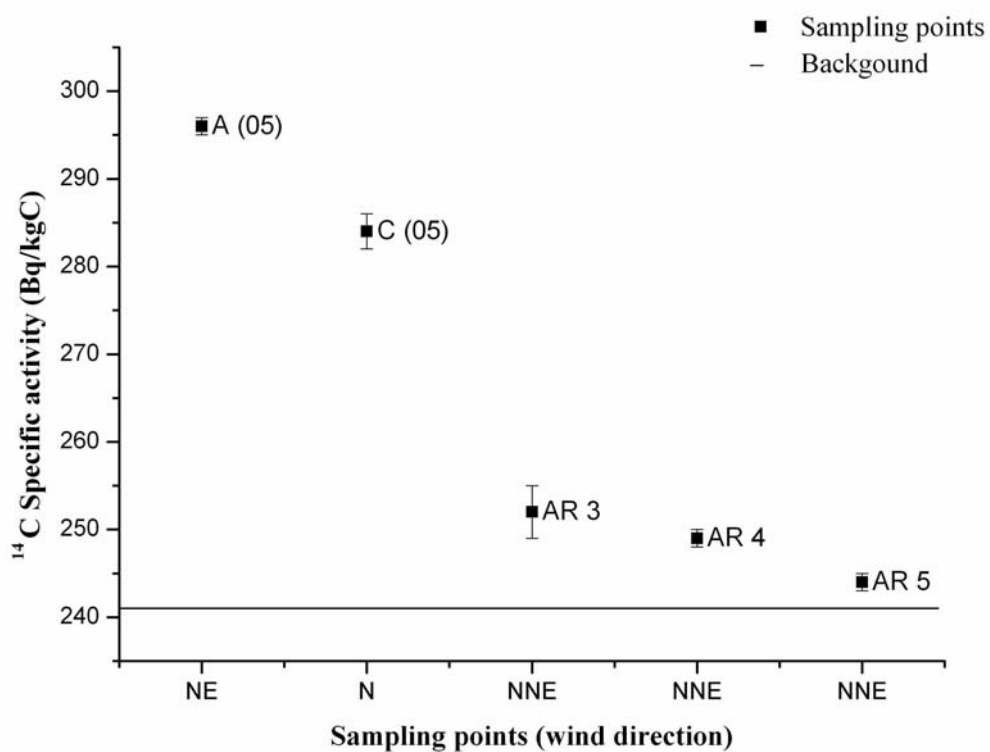


Figure 6 - ^{14}C specific activity in grass collected in 2005 in the *impact zone*, at sampling points A and C (within 3 km of reactors), and within 5 km, in *CNAAA perimeter zone* (AR3, AR4 and AR5). All points are at main wind directions (NE and NNE).

TABLES

Table 1 - General results of ^{14}C specific activity in vegetation samples taken in 2004 and 2005 within maximum distance of 5 km from nuclear reactors.

Sample	^{14}C specific activity (Bq/kgC)	Excess (Bq/kgC)	Excess (%)
Background*	241±2	-	-
A (04)	299±2	58±3	24±1
B (04)	264±1	23±2	10±1
C (04)	261±1	20±2	8±1
D (04)	252±1	11±2	5±1
E (04)	255±2	14±3	6±1
AR1	244±3	3±4	-
AR2	242±1	1±2	-
AR3	252±1	11±2	5±1
AR4	249±1	8±2	3±1
AR5	244±4	3±5	-
PA1	238±3	-3±4	-
PA2	245±3	1±4	-
PA3	227±4	-14±5	-
PA4	241±1	0±2	-
PA5	241±1	0±2	-
A (05)	296±1	55±2	23±1
B (05)	285±1	44±2	18±1
C (05)	284±2	43±3	18±1
D (05)	243±1	2±2	-
E (05)	246±1	5±2	-

*(Magnusson *et al* 2004, Levin and Kromer, 2004)

Table 2 - ^{14}C specific activity in terrestrial organisms taken around different types of nuclear power plants in the world.

Type of reactor	Type of sample	Distance from reactor (km)	^{14}C background (Bq/kgC)	^{14}C measured (Bq/kgC)	Excess (Bq/kgC)	Excess (%)	References
PWR	Leaves		292	326	34	12	Loosli and Oeschger, 1989
PWR	Tree rings	1,5	252	271	19	8	Vokal and Kobal, 1997
PWR	Tree rings	1	256	276	20	9	Uchirin <i>et al.</i> , 1998
PWR	Terrestrial organisms	Up to 5	242	268	26	11	Roussel-Debet <i>et al.</i> , 2006
BWR	Leaves	1,5	254	282	28	11	Stenström <i>et al.</i> , 2000
CANDU	Leaves	1	260	4890	4630	1780	Milton <i>et al.</i> , 1995
CANDU	Pine needle	1	250	897	647	859	Kim <i>et al.</i> , 2003
REPROC. FACILITY	Tree rings	1	251	480	229	91	Mc Namara and McCartney, 1998
REPROC. FACILITY	Cedar leaves		247	278	31	12	Atarashi-Andoh <i>et al.</i> , 2003

ARTIGO IV

^{14}C , $\delta^{13}\text{C}$ and total C content in soils around two Brazilian PWR nuclear power plants and in a reference area, 50 km far from reactors site

Cíntia Melazo Dias¹, Everaldo C. Telles², Roberto Ventura Santos³, Kristina Stenström⁴, Iêda Gomes Nícoli¹, Rosângela da Silveira Corrêa² and Göran Skog⁵

¹National Commission of Nuclear Energy (CNEN), Brasília, Brazil

²National Commission of Nuclear Energy (CNEN), Goiânia, Brazil

³Institute of Geology, University of Brasília, Brasília, Brazil

⁴Department of Physics, Division of Nuclear Physics, Lund University, Lund, Sweden

⁵Radiocarbon Dating Laboratory, GeoBiosphere Science Centre, Lund University, Lund, Sweden

Abstract

Nuclear power plants release ^{14}C during operation mainly as airborne in gaseous effluents. Because of the long half-life (5730 years) and biological importance of this radionuclide, which is incorporated in plant tissue by photosynthesis, several countries have monitoring programs in order to quantify and control the emissions. This paper presents results about the ^{14}C content of soils taken within one km from power plants and in a reference area, located at 50 km far from reactor site. Analyses of total carbon, $\delta^{13}\text{C}$ and ^{137}Cs were also made. An accelerator mass spectrometry (SSAMS) was employed in the ^{14}C measurements. Data reveals that the total carbon followed a typical profile of decreasing with increasing depth. The isotopic composition of the soils reflected the present vegetation (forest) of both areas and the results have indicated a transition from C4 to C3 plants in a specific sampled region. The ^{137}Cs and ^{14}C data showed that the middle of the hill 50 km far from reactor site is a preserved area. The ^{14}C measurements showed that there is not an accumulation due to the operation of the power plants, although it was found ^{14}C excesses in the litter taken in the area close to nuclear power plants. This study is part of an extensive research in which other samples such as atmospheric air, vegetation and gaseous effluents (taken in the vent stack of the Brazilian nuclear power plants Angra I and II) were also analyzed. The main objective was to quantify the emissions and to verify how the radiocarbon is dispersed in the surroundings of the reactor site. This is the first data concerning anthropogenic ^{14}C in soils in Brazil.

1 INTRODUCTION

Nuclear power plants release ^{14}C during normal operation. The amounts and chemical forms released, such as hydrocarbons, CO and CO_2 , depend on reactors design as well as operational parameters. CANDU reactors, for example, are known to be the biggest emitters (Unsear, 2000) and the PWR types, like those of this study, release the lowest amounts mainly, in hydrocarbon form (Stenström *et al.*, 1996, IAEA n^o, 2004).

Although to a lesser extent than natural production (1,500 TBq, per year) and nuclear weapons testing (that had doubled the atmospheric ^{14}C concentration in the 60's), this chronic pulse contributes to increase the ^{14}C atmospheric content. Because of the long half-life of ^{14}C and its incorporation into food chain *via* photosynthesis, a lot of effort, in the last years, has been employed by many countries in the world to quantify and control the emissions.

Different kinds of samples such as atmospheric air, vegetation and food have been used to investigate the anthropogenic ^{14}C signal in the surrounds of nuclear power plants (*e.g.* Uchirin *et al.*, 1998, Stenström *et al.*, 1998, Stenström *et al.*, 2000, Molnár *et al.*, 2002, Kim *et al.*, 2003, Magnusson *et al.*, 2004, Roussel-Debet *et al.*, 2006). However, at a reactor site, very few studies had been reported concerning soil samples (Milton *et al.*, 1995, Milton and Kramer, 2001).

The Brazilian nuclear central is named Admiral Álvaro Alberto (CNAAA) and it has three nuclear power reactors of the PWR type. So far, two units are in operation, Angra I (657 MW_{el}) and Angra II (1350 MW_{el}). Angra III (1309 MW_{el}), the third unit, is under construction. The aim of this work was to investigate if reactor emissions of ^{14}C are being accumulated in the soils near nuclear power plants. For this purpose, soils were taken in a hill very close to the facilities and in a reference area, located almost 50 km far from reactors.

Since the soil carbon reservoir far exceeds the above-ground biomass and soil organic matter can be a sink or net source of atmospheric CO_2 , it is of great interest to gain information, as much as possible, about soil dynamics. For this reason, other measurements like total carbon and stable carbon isotope composition ($\delta^{13}\text{C}$) were also made. Recently, data about $\delta^{13}\text{C}$ has been used to estimate turnover rates and infer climate and vegetation changes (Trumbore *et al.*, 1996, Martinelli *et al.*, 1996, Melo *et al.*, 2003, Pessenda *et al.*, 2005). Moreover, in order to assess soil perturbation (Milton *et al.*, 2001, Guo *et al.*, 2003, Correchel, 2003) the samples were checked for ^{137}Cs concentrations.

This study is part of an extensive research involving ^{14}C released by nuclear power plants, in which other samples like atmospheric air and vegetation, as well as gaseous effluents (source), were also analyzed.

2 METHODS

2.1 STUDIED AREAS

Since the region where CNAAA is situated is very hilly (with mountains in a range of 0-1640 m high¹), two hills, with maximal heights of 80 m relative to sea level, were chosen for this investigation. One just close to reactors site (within 1 km) and in downwind direction and the other, used as reference area, located at 50 km far from reactors in a city named Paraty Mirim (Figure 1). The soils of the slope and middle of both hills are clayey soils (Utiisol, according to the Soil Taxonomy) and on the basin lines, they seemed to be more sandy, but still with high clay contents (mean texture). For practical purposes, the following codes will be used to identify the sampled soils:

SNPP: Soils of the **S**lope of the hill, close to **N**uclear **P**ower **P**lants (Utisols)

MNPP: Soils of the **M**iddle of the hill, close to **N**uclear **P**ower **P**lants (Utisols)

BNPP: Soils of the **B**ase of the hill, close to **N**uclear **P**ower **P**lants (Utisols with less clay content)

MRA: Soils of the **M**iddle of the hill, **R**eference **A**rea (Utisols)

BRA: Soils of the **B**ase of the hill, **R**eference **A**rea (Utisols with less clay content)

The vegetation is the tropical forest Mata Atlântica and it didn't change very much along both profiles except for the basin level near to the nuclear power plants that showed denser vegetation with great amount of roots and litter on the ground. The areas lie on Precambrian granites and gneisses². The climate is humid tropical with maximum and minimum average temperatures of 27 °C and 19.9 °C, respectively, and the relative air humidity is 82 %³.

¹ Source: Soils Department of the Rural University of Rio de Janeiro.

² Source: Final Security Analyses Report of Angra II (FSAR), 2^a revision, 1999, National Commission of Nuclear Energy (CNEN)

³ Source: http://www.angra-dos-reis.com/instrumentos_de_navegacao/dados_do_municipio.htm. Accessed in 01/04/2006.

2.2 SAMPLING

Samples were taken in September and November, 2004. Mini trenches (20 X 20 X 20 cm) were opened on the slope, middle and basin levels of the hills (Figure 2). Approximately 300 g of soils were taken at depths of 0-5, 5-10 and 10-20 cm from the soil surface, after removal of litter residue. For each level, three trenches were opened, except for the slope of “nuclear power plants’s hill” that had just one (it was not possible to dig more trenches because of the proximity of the mother rock) and no trench at all for the slope of the reference area (there was no important differences between soils of the slope and middle levels).

The soils were dried (open air) for 24 hours, then sieved to remove components > 2 mm and quartered many times. The roots were extract by hand-picking from the remaining subsamples (~15 g) that were pulverized in a mortar, thereafter. Then, the resulting fine sand was oven-dried at 60 °C for 24 hours. Samples of litter in all levels of both hills were also taken. For the litter samples, no pre treatment was necessary. They were only pulverized in mortar.

2.3 MEASUREMENTS OF TOTAL CARBON AND $\delta^{13}\text{C}$

The total carbon and $\delta^{13}\text{C}$ analysis were made by Iso-Analytical Laboratory in Cheshire, England.

Prior to analysis, each sample was treated to remove carbonate carbon. For this treatment, ~200 mg of soil was transferred to 30 ml universal tubes to which ~10 ml of 10 % HCl solution was added. The HCl solution was decanted away and the procedure repeated until there were no visible signs of effervescence.

Thereafter, each sample was washed to remove the HCl solution. For this process, the soil was first settled by centrifugation and the HCl solution decanted from each tube. Purified water was then added and the contents were vortex mixed. The soil was again settled by centrifugation. The water was then decanted from the sediment and the washing process repeated until the wash water achieved a pH of 6 to 7.

The tubes with the soils were then transferred to an oven and left until completely dry at a temperature of 60°C. After drying, the soils were ground to a homogeneous powder in-situ.

The reference material used during analysis of the samples was Iso-Analytical Ltd. working reference standard IA-R001, wheat flour, with a $\delta^{13}\text{C}$ value of -26.43 ‰ vs. V-PDB.

IA-R001 is traceable to IAEA-CH-6 (sucrose) with an accepted $\delta^{13}\text{C}$ value of -10.43‰ vs. V-PDB. IA-R001 was chosen as reference material as it has a similar organic and isotopic matrix to the samples.

Reference standards IA-R001, IAEA-CH-6, and IA-R005 (Iso-Analytical working standard, beet sugar, $\delta^{13}\text{C} = -26.03\text{‰}$ vs. V-PDB) were measured for quality control during analysis of the samples. The International Atomic Energy Agency, Vienna, distributes IAEA-CH-6 as an isotope reference standard. The samples were measured with 20 % replication. The equipment was an elemental analyzer connected to a mass spectrometer (EA-IMRS).

2.4 MEASUREMENTS OF ^{14}C

The single stage accelerator mass spectrometer (SSAMS), located at Geology Department of Lund University, in Sweden (Skog, 2006), was used to measure the ^{14}C concentration of the soil samples.

This system requires elemental carbon as a target and therefore, all samples had to be transformed. About 250 mg of soils (or less, in the case of surface soils that have higher total carbon content) were mixed with few hundred milligrams of copper oxide to be burned in order to release the CO_2 . The CO_2 released is mixed with hydrogen gas over an iron catalyst at $650\text{ }^\circ\text{C}$ and reduced to elemental carbon. The reduction reaction takes 3-4 hours per sample. This graphitization process is described in details in Stenström (1995).

Thereafter, the transformed samples were pressed into an aluminum holder and placed in the ion source of the accelerator. The typical measuring time is 20 minutes, for each sample. Samples of NBS oxalic acid were used as reference for the measurements and also samples of anthracite, free of ^{14}C , were prepared in order to provide the background values of the sample preparation and accelerator system. The precision is better than 5 ‰ and the sensitivity better than 0.05 dpm/gC (Schroeder *et al.*, 2004), corresponding to 0.8 Bq/mgC. The errors in this study were not greater than 2%.

For the litter samples, only about 15 mg of the ground material was burned in the graphitization line in order to obtain the elemental carbon.

2.5 MEASUREMENTS OF ^{137}Cs

For the ^{137}Cs measurements, the soils were collected in the same way as described previously. About 250 g of soils, of each depth profile, were sealed in a plastic container with

13 cm in diameter and counted on a germanium-gamma detector (Camberra, GX2518 type) for 15 hours each. The counting geometry was the same for all samples. Data is expressed in Bq/kg.

3 RESULTS AND DISCUSSION

3.1 TOTAL CARBON CONTENT AND $\delta^{13}\text{C}$ VALUES

The carbon content was higher in the upper soils decreasing with increasing depth for all soils analyzed, following a typical soil profile of decreasing carbon content with depth (Milton and Kramer, 2001, Telles, 2002, Guo *et al.*, 2003) (Figure 3).

No great difference was observed in total carbon content between soils collected close to reactors and those from reference area, except for the Utisol (mean texture) taken in the base line of the toposequence near power plants (BNPP), that showed much higher percentages in all depths analyzed.

According to data previously reported (Schimel *et al.*, 1994, Baldock and Skjemstad, 2000, Telles, 2002) carbon content in soils is linearly related to soil texture and it increases with increasing clay content, resulting in carbon stabilization. Clay particles can form aggregates that physically protect the soil carbon from decomposing and also provide reactive surface for the transformation of soil carbon into organomineral (Schimel *et al.*, 1994). However, the higher carbon content was found in the Utisol with less clay content (BNPP), compared to other studied soils. Perhaps, this has to do with the sampled area's position in the relief, which is in the base of the declivity. This topographic condition favors the lateral carbon, sediments and nutrients apportion providing conditions for the development of denser vegetation with higher microbiological activity and hence, higher soil carbon content.

For the $\delta^{13}\text{C}$ values, there was a trend to a ^{13}C enrichment with increasing depth for all soils sampled with a more distinct pattern for the Utisols soils taken in the middle of the hill, close to the nuclear central (MNPP), that varied from -26.3 to -21.4 ‰ (Figure 4).

Because plants discriminate between carbon isotopes during photosynthesis, the stable carbon composition of soil organic matter ($^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$) tells about plants species composition in past plant communities. Species that discriminate more the ^{13}C isotope are named C3 and those that discriminate less are the C4 (Lloyd and Farquhar, 1994). Therefore,

the $\delta^{13}\text{C}$ values for C3 species are very negative (less enriched in ^{13}C) and are in a range of -32 ‰ to -20 ‰ with a mean of -27 ‰. For C4, this range is from -17 to -9 ‰ with a mean of -13 ‰ and the $\delta^{13}\text{C}$ difference between them is 14 ‰ (Boutton, 1991). It is this difference that can be used as a tool to investigate vegetation changes that occurred in recent or ancient past (Gomes, 1995, Pessenda *et al.*, 1996a, b, Martinelli *et al.*, 1996, Mello *et al.*, 2003, Pessenda *et al.*, 2005).

Data of the studied soils have indicated the predominance of C3 species in all sampled areas, which reflects the current forest vegetation. However, comparing $\delta^{13}\text{C}$ values of the area situated in the middle of the hill, close to power plants (MNPP), to the others, it seems that vegetation has changed from C4 to C3 species in that particularly area. Indeed, according to the land use history of the area, the original vegetation (Atlantic forest) was replaced, in many parts of the relief, by pasture and some cultures such as coffee and bananas that, in a recent past, were abandoned and then replaced by secondary vegetation (Eletronuclear, 2005). In a recent environmental survey, within 15 km of the CNAAA, the secondary vegetation is predominant both in the middle and basin levels of the hills of Serra do Mar complex, mainly in the intermediate and advanced succession stages (Eletronuclear, 2005).

3.2 ^{137}Cs AND ^{14}C MEASUREMENTS

The distribution of ^{137}Cs in the studied profiles is shown in Table 1. Unless some perturbation has occurred (such as erosion or physical mixing processes), this nuclide is mostly contained in the top 10 cm of the soil profile (for clayey soils for example, the clay and organic particles tend to adsorb the ^{137}Cs). Therefore, undisturbed soils show an exponential decrease concentration with depth (Rutberg *et al.*, 1996, Milton *et al.*, 2001, Guo *et al.*, 2003, Correchel, 2003).

A trend to this decrease was observed only in the soils taken in the middle of reference hill (MRA). Indeed, according to local population, this area remains intact for several years (50, at least) and nowadays it is part of an indigenous protected area.

For the soils of base line, close to power plant (BNPP), there was an inversion and an increase in ^{137}Cs concentration with depth was registered. Possibly this is related to the presence of a more sandy soil with intense biological activity, which can favor the downward movement of the nuclide in the profile.

The ^{14}C distribution in soil profiles is shown in Figure 5. Although the concentrations mostly decrease with increasing depth, the gradient was not a typical one and the signal of “bomb carbon” was observed in all depth profiles analyzed.

For some areas, as for the base of hill close to power plants (BNPP), the “bomb ^{14}C ” downward movement was followed by the ^{137}Cs , perhaps indicating the influence of the soil texture and high microbiological activity in the radioisotope distribution along the profile. Other authors like Guo *et al.* (2003) and Becker-Heidmann and Scharpenseel (1986) that found “bomb ^{14}C ” in increased depths, also pointed out the influence of microbiological activity (such as bioturbation) in ^{14}C distribution pattern as a possibility to the ^{14}C downward movement. Milton and Kramer (1998) have postulated, as a hypotheses, the root action in order to explain the increased ^{14}C levels found in increased depths. However, additional work is required in order to validate the possibilities.

There was a marked inversion with an increase in ^{14}C in the 10-20 cm layer after a low value registered in the 5-10 cm layer (89.56 to 107.29 pMC) for the soils taken in the slope of the hill close to power plant (SNPP). Maybe the presence of mother rock very close to the surface can be a reason to this result. In fact, during the sampling period, it was not possible to dig more trenches in this area because, several times, the mother rock was reached at 5-10 cm layer.

Considering all measurements, the steepest ^{14}C gradient was found for the soils taken in the middle of the hill of reference area (MRA). According to Rutberg *et al.* (1996) this gradient tends to be steeper for undisturbed soils. This result, followed by those of ^{137}Cs and by the history of land usage recorded by local people, support the trend that indicates the presence of more intact soils in that specific area.

The ^{14}C enters into the soil predominantly by litter fall. Although it was possible to observe the anthropogenic ^{14}C in the litter taken in the hill next to power plants (Table 2), it seems that there wasn't an accumulation in the soils. The ^{14}C activities, in all depth profiles, were in a similar range, with maximum value of 110 pMC, for both reference and power plant samples (Figure 5) (a background of 106 pMC can be considered). Just as a comparison, Atarashi-Andoh *et al.* (2003) found a peak concentration of 130 pMC (300 Bq/kgC) in soils taken near nuclear facilities (power plants and spent fuel reprocessing plant). Milton *et al.* (1995) measured ^{14}C concentrations up to 3500 pMC in soils near CANDU reactors stack (0,9 km), showing an accumulation of ^{14}C released by power plants. And, as a last example, Milton and Kramer (1998) showed estimated total ^{14}C values of 7.6 kBqm^{-2} (compared to 1.4

kBqm⁻² for a background soil sample) near Pickering Nuclear Generating Station (PNGS), a Candu reactor site, in Canada.

In conclusion, there was a typical total carbon profile in soils at both hills sampled, with decreasing concentration with increasing depth. Considering the isotopic composition ($\delta^{13}\text{C}$), there was a trend to an enrichment in ^{13}C with depth and data reflected the present day vegetation. Furthermore, soils of MNPP had indicated a transition of vegetation from C4 to C3 in a recent past. The depth of incursion of ^{14}C and ^{137}Cs can indicate the action on carbon of processes other than superficial deposition such as bioturbation, root action, remobilization, *etc*, however, more research is needed in order to confirm any of these hypothesis. The ^{14}C measurements indicated that there wasn't an accumulation of ^{14}C due to operation of reactors, as it was already observed in literature, although the litter taken in all levels of the hill close to nuclear power plants showed slight, but clear, signal of the anthropogenic ^{14}C .

4 REFERENCES

- ATARASHI-ANDOH, M., AMANO, H., GUO, J. and ARA KHATOON, A. Measurement of C-14 distribution in forest around nuclear facilities. Conference
- BALDOCK, J. A. and SKJEMSTAD, J. O. Role of soil matrix and minerals in protecting natural organic materials against biological attack. **Organic Geochemistry**, 31, p. 697-710, 2000.
- BECKER-HERDMANN, P. and SCHARPENSEEL, H. W. **Radiocarbon**, vol 28, p. 383-390, 1986.
- BOUTTON, T. W. Stable carbon isotope ratios of natural material: II. Atmospheric, terrestrial, marine and freshwater environments. In: Coleman, D.C. and Fry B., eds., Carbon Isotopes Technique, San Diego Academic Press:173-185. In: PESSENDA, L. C. R., ARAVENA, R., MELFI, A. J., TELLES, E. C. C., BOULET, R. VALENCIA, E. P. E. and TOMAZELLO, M. The use of carbon isotopes (^{13}C , ^{14}C) in soil to evaluate vegetation changes during the Holocene in Central Brazil. **Radiocarbon**, vol.38, n^o 2, p.191-201, 1996.
- CORRECHEL, V. **Avaliação dos índices de erodibilidade do solo através da técnica de análise de redistribuição do "fallout" do ^{137}Cs** . Piracicaba, 2003. 99p. PhD Dissertation. Centro de Energia Nuclear na Agricultura (CENA), Universidade de São Paulo.
- ELETRONUCLEAR S.A (ELETRONUCLEAR). **Estudo de Impacto Ambiental – Unidade 3 da Central Nuclear Almirante Álvaro Alberto (CNAEA) (EIA)**. Rio de Janeiro, 2005. Technical Report with scientific annexes.
- GOMES, B. M. **Estudo paleoambiental no estado de Rondônia utilizando datação por ^{14}C e razão $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ da matéria orgânica do solo**. Piracicaba, 1995. 106p. Master Dissertation. Centro de Energia Nuclear na Agricultura (CENA), Universidade de São Paulo.

GUO, J.; HATARASHI-ANDOH, M. and AMANO, H. Variation of ^{14}C , ^{137}Cs and stable carbon composition in forest soil and its implication. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, vol. 255, n. 1, p. 223-229, 2003.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY-IAEA. **Management of waste containing tritium and carbon-14**. Technical Reports Series n° 421, Vien, 2004.

LLOYD, J. and FARQUHAR, G. D. ^{13}C discrimination during CO_2 assimilation by the terrestrial biosphere. **Oecologia**, vol.99, p.201-215, 1994.

MAGNUSSON, A.; STENSTRÖM, K.; SKOG, G.; ADLIENE, D., ADLYS, G.; HELLBORG, R.; OLARIU, A.; ZAKARIA, M.; RÄÄF, C. and MATTSSON, S. Levels of ^{14}C in the terrestrial environment in the vicinity of two European nuclear power plants. **Radiocarbon**, vol. 46, n° 2, p. 863-868, 2004.

MARTINELLI, L. A., PESSEDA, L. C. R., VALENCIA, E. P. E., CAMARGO, P. B., TELLES, E. C. C., CERRI, C. C., VICTÓRIA, R. L. ARAVENA, R., RICHEY, J. E. and TRUMBORE, S. Carbon-13 variation with depth in soils of Brazil and climate change during the Quaternary. **Oecologia** 106, p. 376-381, 1996.

MELO, M. S., GIANNINI, P. C. G., PESSEDA, L. C. R. and BRANDT NETO, M. Holocene Paleoclimatic reconstruction based on the Lagoa Dourada deposits, southern Brazil. **Geologica Acta**, vol 1, n° 3, p. 289-302, 2003.

MILTON, G. M.; KRAMER, S. J.; BROWN, R. M.; REPTA, C. J. W.; KING, K. J. e RAO, R. R. Radiocarbon dispersion around Canadian nuclear facilities. **Radiocarbon**, vol. 37, n. 2, p. 485-496, 1995.

MILTON, G. M. and KRAMER, S. J. Using ^{14}C as a tracer of carbon accumulation and turnover in soils. **Radiocarbon**, vol. 40, n.2, p. 999-1011, 1998.

MILTON, G.M.; KRAMER, S. J.; WATSON, W. L. e KOTZER, T. G. Qualitative estimates of soil disturbance in the vicinity of CANDU stations, utilizing measurements of ^{137}Cs and ^{210}Pb in soils cores. **Journal of Environmental Radioactivity**, 55, p. 195-205, 2001.

MOLNÁR, M., SZÁNTÓ, Zs., ESVINGOR, E., PALCSU, L., FUTÓ, I. and ELEKES, Z. Measurements of beta emitters in the air around the Paks NPP, Hungary. In: PROCEEDINGS OF THE INTERNATIONAL CONFERENCE OF APPLICATIONS OF HIGH PRECISION ATOMIC AND NUCLEAR METHODS Neptun, Romania, Sept. 2002.

PESSEDA, L. C. R., ARAVENA, R., MELFI, A. J., TELLES, E. C. C., BOULET, R. VALENCIA, E. P. E. and TOMAZELLO, M. The use of carbon isotopes (^{13}C , ^{14}C) in soil to evaluate vegetation changes during the Holocene in Central Brazil. **Radiocarbon**, vol.38, n° 2, p.191-201, 1996.

PESSEDA, L. C. R., LEDRU, M. P., GOUVEIA, S. E. M., ARAVENA, R., RIBEIRO, A. S. BENDASSOLLI, J. A. and BOULET, R. Holocene paleoenvironmental reconstruction in northeastern Brazil inferred from pollen, charcoal and carbon isotopes records. **The Holocene**, 15, 6, p. 814-822, 2005.

PESSEDA, L. C. R., VALENCIA, E. P. E., CAMARGO, P. B., TELLES, E. C. C., MARTINELLI, L. A., CERRI, C. C., ARAVENA, R. and ROZANSKI, K. Natural radiocarbon measurements in Brazilian soils developed on basic rocks. **Radiocarbon**, vol 38, n° 2, p.203-208, 1996.

ROUSSEL-DEBET, S.; GONTIER, G. and SICLET, F. Distribution of carbon-14 in the terrestrial environment close to French nuclear power plants. **Journal of Environmental Radioactivity**, in press, p. 1-14, 2006.

RUTBERG, R. L., SCHIMEL, D. S., HAJDAS, I. and BROECKER, W. S. The effect of tillage on soil organic matter using ^{14}C : a case study. **Radiocarbon**, vol 38, n^o 2, p. 209-217, 1996.

SCHIMEL, D. S., BRASWELL, B. H., HOLLAND, E. A., McKEON, R., OJIMA, D. S., PAINTER, T. H., PARTON, J. W. and TOWNSEND A. R. Climatic, edaphic, and biotic controls over storage and turnover of carbon in soils. **Global Biogeochemical Cycles**, vol.8, n^o 3, p. 279-293, 1994.

SCHROEDER, J. B., HAUSER, T. M., CLODY, G. M and NORTON, G. A. Initial results with low energy single stage AMS. **Radiocarbon**, vol. 46, n^o 1, p.1-4, 2004.

STENSTRÖM, K. **New applications of ^{14}C measurements at the Lund AMS facility.** Lund, 1995. 100 p. PhD Dissertation. Lund University.

STENSTRÖM, K.; GORAN, S.; THORNBERG, C.; ERLANDSON, B.; HELLBORG, R.; MATTSSON, S. and PERSSON, P. ^{14}C levels in the vicinity of two Swedish nuclear power plants and at two “clean-air” sites in southernmost Sweden. **Radiocarbon**, vol. 40, n. 1, p. 433-438, 1998.

STENSTRÖM, K.; ERLANDSON, B.; HELLBORG, R.; WIEBERT, A. and SKOG, G. Determination of the $^{14}\text{CO}_2$ and the total airborne ^{14}C releases from two Swedish light-water reactors using accelerator mass spectrometry. **Radioactivity and Radiochemistry**, vol.7, n. 1, p.32-36, 1996.

SKOG, G. The single stage AMS machine at Lund University: Status Report. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, in press, 2006.

SYNAL, H. A., JACOB, S. and SUTER, M. New concepts of radiocarbon detection systems. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B** 161-163, p. 29-36, 2000.

TELLES, E. C. C. **Dinâmica do carbono no solo influenciada pela textura, drenagem, mineralogia e carvões em florestas primárias na região centro-oriental da Amazônia.** São Paulo, 2002. 130 p. PhD Dissertation. Centro de Energia Nuclear na Agricultura (CENA), Universidade de São Paulo.

UCHRIN, G.; HERTELEND, E.; VOLENT, G.; SLAVIK, O.; MORÁVEK, J.; KOBAL, I. e VOKAL, B. ^{14}C measurements at *PWR*-type nuclear power plants in three middle European countries. **Radiocarbon**, vol. 40, n. 1, p. 439-446, 1998.

FIGURES

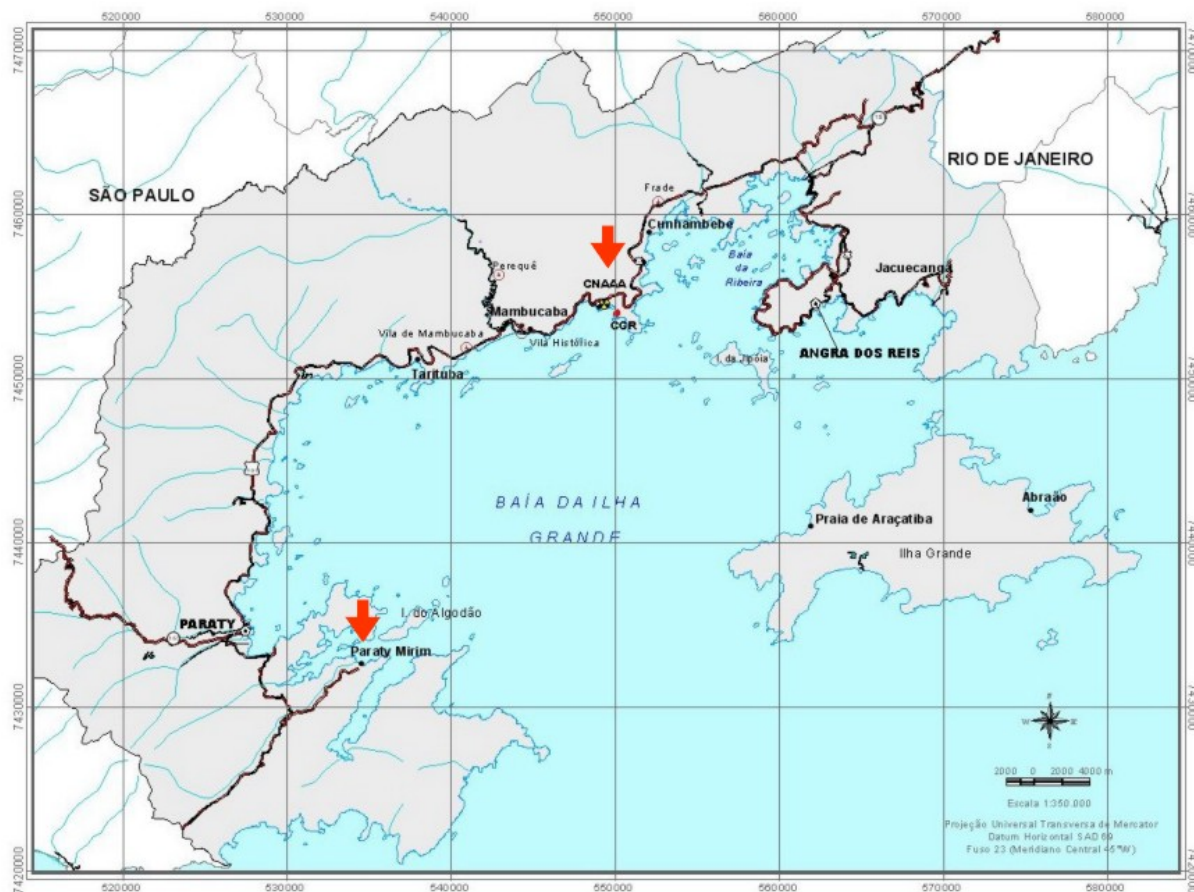


Figure 1 - Location map of CNAAA with the soil sampling points (indicated with red arrows) (the map was provided by Eletronuclear (2005))

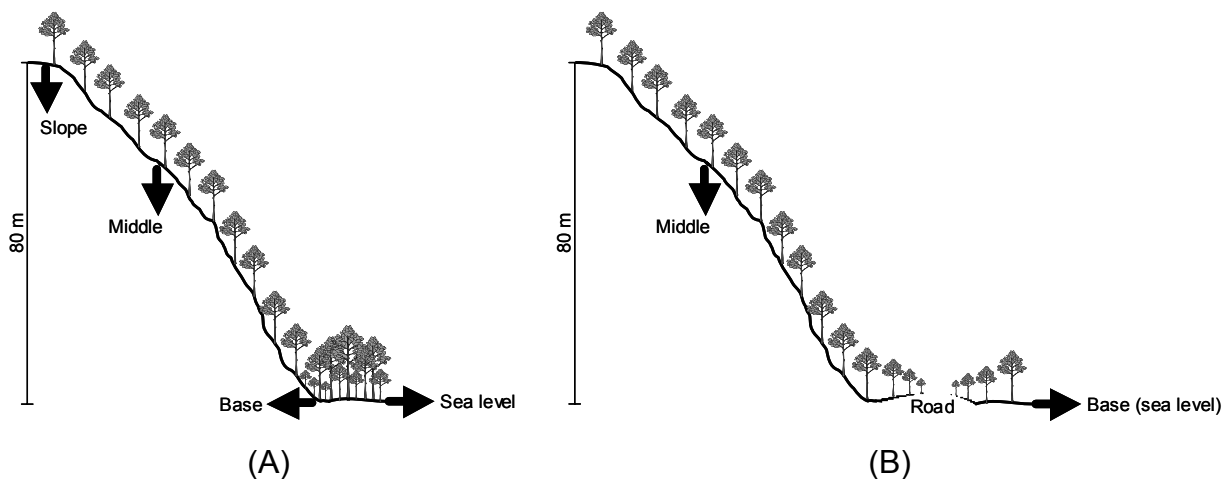


Figure 2 - Schematic drawing of the hills ((A) close to power plant and (B) reference area) where soil samples were taken.

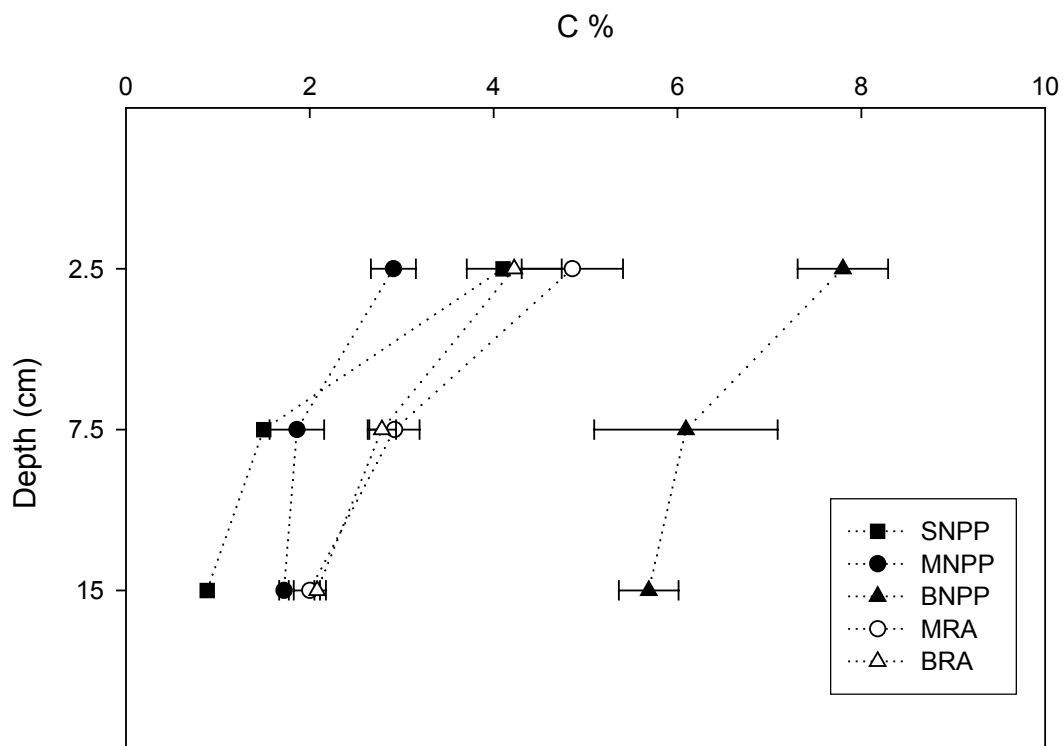


Figure 3 - Total carbon values measured in soils sampled close to power plant (SNPP, MNPP, BNPP- slope, middle and base of the hill, respectively) and at reference area (MRA and BRA- middle and base of the hill, respectively), far 50 km from reactors site.

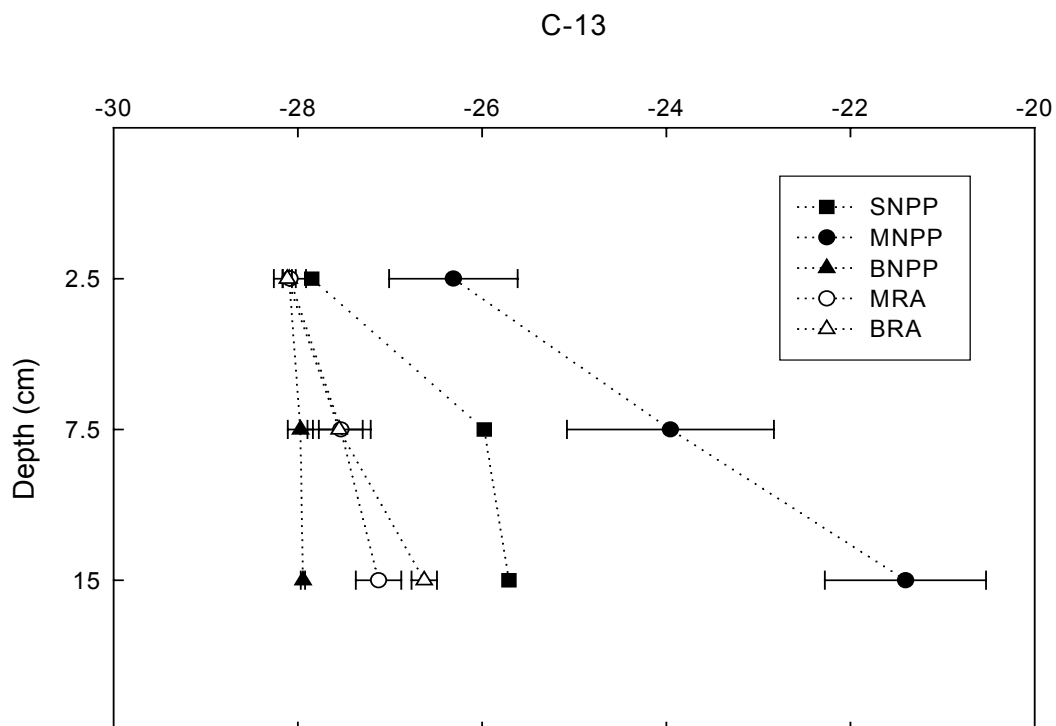


Figure 4 $\delta^{13}\text{C}$ values measured in soils sampled close to power plant (SNPP, MNPP, BNPP- slope, middle and base of the hill, respectively) and at reference area (MRA and BRA- middle and base of the hill, respectively), far 50 km from reactors site.

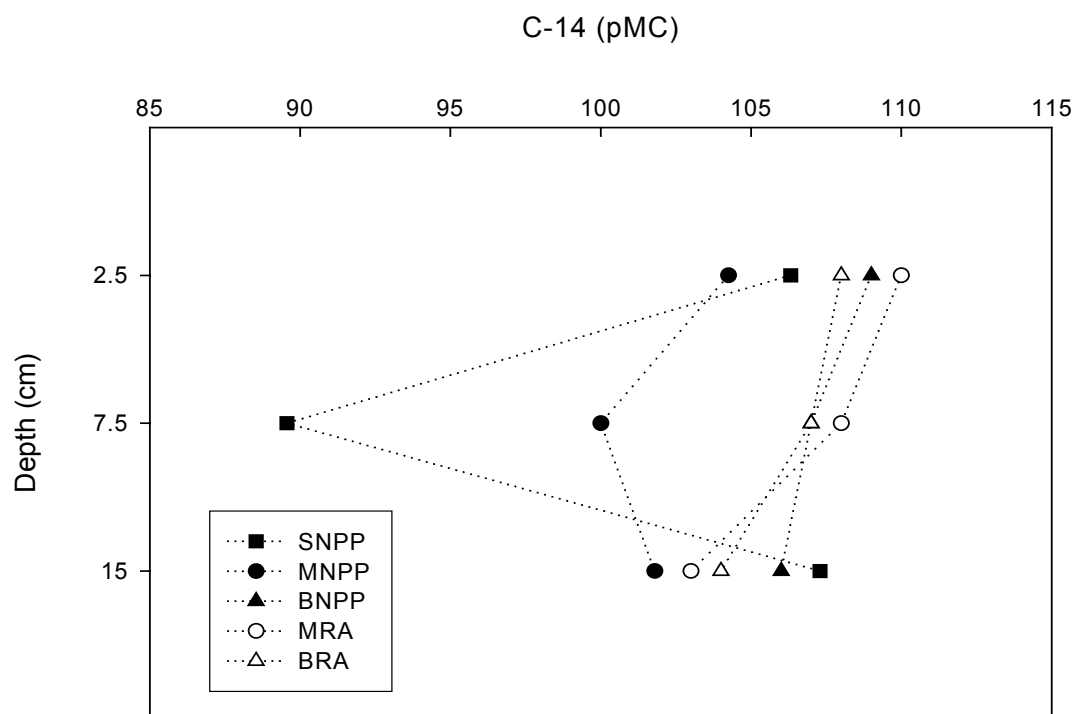


Figure 5 - ^{14}C activities (pMC) measured in soils sampled close to power plant (SNPP, MNPP, BNPP- slope, middle and base of the hill, respectively) and at reference area (MRA and BRA- middle and base of the hill, respectively), far 50 km from reactors site.

TABLES

Table 1 - ^{137}Cs specific activity (Bq/kg) for soils sampled close to the nuclear power plant (MNPP and BNPP- middle and base of the hill, respectively) and at reference area (MRA and BRA- middle and base of the hill, respectively), far 50 km from reactors site.

DEPTH (cm)	MNPP	BNPP	MRA	BRA
2,5	< LD	< LD	1,18	1,14
7,5	< LD	1,52	0,9	1,38
15	< LD	1,67	< LD	1,36

Table 2 - ^{14}C specific activity measured in litter samples collected at reference and power plant area, in the same hills (and position) where soil samples were taken (for a background value of 106 pMC (Magnunson *et al.*, 2004)).

POSITION IN THE HILL	REFERENCE AREA (pMC)	POWER PLANT AREA (pMC)
Slope	107±0,5	114±0,5
Middle	108±0,6	118±0,5
Base	109±0,5	121±0,5

ARTIGO V

Carbon-14 levels in the vicinity of the Lithuanian nuclear power plant Ignalina

Å. Magnusson^{a,*}, K. Stenström^a, D. Adliene^b, G. Adlys^b, C. Dias^c, C. Rääf^d, G. Skog^e, M. Zakaria^d, S. Mattsson^d

^aDepartment of Physics, Division of Nuclear Physics, Lund University, P.O. Box 118, 221 00 Lund, Sweden

^bDepartment of Physics, Kaunas Technological University, 3031 Kaunas, Lithuania

^cNational Commission of Nuclear Energy, CEP 70710-500, Brasilia, Brazil

^dDepartment of Medical Radiation Physics, Lund University, Malmö University Hospital, 205 02 Malmö, Sweden

^eGeoBiosphere Science Centre, Quaternary Sciences, Geocentrum II, Lund University, Sölvegatan 12, 223 63 Lund, Sweden

* Corresponding author. Tel.: +46 46 222 7733; fax: +46 46 222 4709

E-mail address: asa.magnusson@nuclear.lu.se (Å. Magnusson)

Abstract

Carbon-14 levels in the vicinity of the Lithuanian nuclear power plant Ignalina have been investigated. During 2001–2004, approximately 70 samples were collected and analysed using accelerator mass spectrometry. The study included samples of leaves, grass, moss, soil and aquatic plants, covering a distance up to 32 kilometres from the power plant. The highest ¹⁴C specific activities were found in soil samples from moss-covered sites close to the power plant, probably indicating the release of particulate material. The results are compared with those from studies around other types of reactors also investigated within the project.

PACS: 28.41.Kw; 89.60.-k; 89.60.Ec

Keywords: Carbon-14, Ignalina nuclear power plant, Moss, Soil, Aquatic plants, AMS

1 INTRODUCTION

Carbon-14 (half-life 5730 years) is produced in all types of nuclear reactors mainly through neutron-induced reactions with isotopes of carbon, nitrogen and oxygen present in the fuel, cladding, coolant, moderator and structural materials of the reactor [1]. As a result, ¹⁴C will be present in gaseous, solid and liquid waste generated during the reactor operation. The influence on the ¹⁴C levels in the close vicinity of the power plants is normally dominated by

gaseous ^{14}C releases, whereas the liquid effluents normally contain only small quantities of ^{14}C . Generally, the annual gaseous release rates of ^{14}C from various types of nuclear power reactors are in the following order (average-normalized release rates from 1990 to 1994 in TBq/GW_e·year in brackets): CANDU¹ (1.6) > RBMK² (1.3) > BWR³ (0.51) > PWR⁴ (0.22) [2]. For all types of reactors except PWRs, most of the gaseous releases of ^{14}C are in the form of $^{14}\text{CO}_2$ [1], which is easily assimilated by plants through photosynthesis. As a consequence, increased ^{14}C levels may be found in surrounding plants and all other types of biota (including man), as reported in several publications, e.g. [3,4,5]. Studies of the ^{14}C levels in the vicinity of various kinds of reactors are therefore important from a radiation protection, technological and environmental point of view. It may also be of relevance during the decommissioning of reactors.

The different types of samples collected from the surroundings of Ignalina were chosen to represent both airborne and liquid effluents and to cover both short and long distances (up to 32 km radius) from the power plant. The samples included tree leaves and grass, collected at short distances; aquatic plants from Lake Drūkšiai; and moss and soil collected at both short and long distances from the power plant. Sampling was carried out from 2001 to 2004. The results from the initial analysis of samples (moss, soil and trees within 500 m) have been published elsewhere [6] as well as the preliminary data for the ^{14}C analysis of aquatic plants [7]. The ^{14}C activities previously reported [6] were generally moderate (130 – 150 pMC; 1 pMC = 2.27 Bq/kgC) with a few exceptions for moss and soil, showing ^{14}C levels of up to 2100 pMC. These findings led to a significantly extended analysis including new sampling points and objects. The results and a detailed interpretation of these are presented in this paper.

The study conducted around the Ignalina RBMK reactor is part of a larger investigation that includes ^{14}C measurements of mainly terrestrial samples from the surroundings of CANDU, PWR and BWR reactors. The aim of the present investigation was to study the ^{14}C concentrations in various species and materials in the environment of the Ignalina nuclear power plant and to compare the results with those from studies around other types of reactors. The results obtained will also be important for calculations of the effective dose to various population groups.

¹ CANadian Deuterium Uranium

² Channelized Large Power Reactor

³ Boiling Water Reactor

2 SITE AND POWER PLANT DESCRIPTION

The Ignalina nuclear power plant consists of two RBMK-1500 reactors. “RBMK” is a Russian acronym for “Channelized Large Power Reactor” and “1500” refers to the designed electrical power in units of MW. The RBMK is a graphite-moderated boiling water channel-type reactor. This means that each fuel assembly is located in separately cooled fuel channels, all surrounded by graphite. The two reactor units, Unit 1 and 2, were put into operation in 1983 and 1987, respectively. In the end of 2004 Unit 1 was shut down and is now under decommissioning. The cooling water is taken from Lake Drūkšiai; inlet and outlet sites are shown in Figs. 1 and 2. Apart from the outlet of heated cooling water there is also a small outlet channel, into which wastewater, also containing some radioactive effluents, is discharged (indicated in Fig. 1). The only out-flowing river from Lake Drūkšiai is the Prorva, located in the southern part of the lake.

The airborne releases are discharged via the main stacks at an altitude of 150 m. More than 70% of the gaseous ^{14}C releases are in the form of $^{14}\text{CO}_2$ [8]. The dominating wind direction is from the west or southwest. About 140,000 inhabitants live within a radius of 30 km of the power plant, but none within a radius of 3 km.

3 SAMPLING AND ANALYSIS

3.1 TERRESTRIAL SAMPLES

In 2001 (10 July), moss samples were collected at distances of 4 – 32 km from the power plant. In 2003 (12 December), the sampling at long distance was completed by the collection of moss, and in most cases also litter and soil from layers beneath the moss vegetation, at distances of 1 – 32 km southwest from the power plant. Due to the location of Lake Drūkšiai (see Fig. 2), the possible sampling directions for terrestrial material were limited. In 2004 (11 May), samples of tree leaves and grass, as well as a large number of moss and soil samples, were collected within a distance of approximately 500 m of the power plant (referred to here as short distance). The sampling locations are shown in Fig. 1. Generally, several different types of samples were collected at the same sampling location. Some of these samples represent a depth profile (see Table 1). The moss and deeper layers collected at distances of 1–32 km were partitioned into sections of 3 cm in the laboratory. After drying,

⁴ Pressurized Water Reactor

any foreign material was removed from the moss samples by hand. The soil samples were sieved through a 2 mm mesh and any roots and plant material removed by hand. Litter samples were analysed without any pre-treatment.

3.2 AQUATIC PLANTS

Different species of aquatic macrophytes were collected in 2002 (3 July) along the shoreline of Lake Drūkšiai. The sampling locations are shown in Fig. 2. Sample no.5 was collected close to the small wastewater channel (indicated in Fig. 1); no.6 was collected close to the inlet channel, and no.3 was collected from the outlet channel.

The terrestrial and aquatic samples were after drying and grounding, combusted and graphitized according to standard procedures [9]. The ^{14}C analysis was performed at the 3 MV AMS facility or at the 250 kV Single State AMS facility both located in Lund [10,11].

4 RESULTS AND DISCUSSION

4.1 SHORT DISTANCE

The results of the ^{14}C analysis of samples collected at short distances in 2004 are presented in Table 1. The highest concentration of ^{14}C observed in seasonal vegetation samples (tree leaves and grass) in terms of excess pMC was 33 pMC relative the contemporary background level (106 pMC) measured in rushes, *Juncus L.*, from Måryd in southern Sweden. The average ^{14}C excess for all seasonal vegetation samples collected was 19 pMC. Tree leaves collected the year before showed a maximum excess of 45 pMC (average value 33 pMC) [6]. According to rough (a few unknown parameters of minor importance had to be estimated) Gaussian plume dispersion modelling [12], the maximum ground level activity due to gaseous releases from a 150 m high venting stack would occur at a distance of approximately 3 km from the power plant (east to north east direction). Since this distance considerably exceeds the sampling performed at short distance, the maximum ground level activity due to $^{14}\text{CO}_2$ releases could not be expected to be found in this set of data. The lower ^{14}C activities recorded in 2004 may be a result of a decrease in the release of $^{14}\text{CO}_2$ from 2003 to 2004, but could also be the result of changes in weather conditions, influencing the plume dispersion.

The moss samples all showed higher ^{14}C levels than the seasonal vegetation samples. The top layers (a few mm) showed a ^{14}C excess of 30 pMC relative the contemporary background, whereas the ^{14}C levels in the total moss layers were enhanced by 25–79 pMC. Mikhajlov et al. [13] found similar activities (corresponding to excess values of 2–80 pMC relative the Måryd background) in moss samples collected within 6 km of the power plant in 1997 and 1998.

The ^{14}C levels in the soil samples were generally found to be several orders of magnitude higher than in any of the vegetation samples, with ^{14}C specific activities up to 2310 pMC (sample ID 10c). The highest ^{14}C excess was observed in the samples from the pier (made of large concrete blocks) (sample sites no.8–10), whereas the soil collected at sample site no.4, below referred to as the “reference site”, only showed moderate specific activities (123–174 pMC). It seems unlikely that the high ^{14}C excess in the pier samples would be caused by high release rates of $^{14}\text{CO}_2$ in the past. An analysis by Mazeika [14] of a tree-ring sequence from a tree (*Pinus Sylvestris L.*) located at a distance of 500 m covering the period 1988–1994, do not indicate significant releases of $^{14}\text{CO}_2$ in the past. However, to cover the whole period of reactor operation, ^{14}C analysis of a complete tree-ring sequence from a tree within 500 m of the power plant will be done. Waterborne ^{14}C -releases have not been considered here as a plausible source of contamination. This because of the distance from the pier samples to the water level (> 1.5 m) and the intermediate ^{14}C levels seen in aquatic plants (see Table 4).

In a previous study [6], where we found ^{14}C activities of up to 2100 pMC in soil samples from the concrete pier, it was suggested that airborne ^{14}C particulates released from the power plant, might be the origin to the extreme activities observed. According to Wickham et al. [15] and Bush et al. [16] graphite particles contaminated with ^{14}C may be released from the graphite moderator through corrosion. In Magnox and advanced gas-cooled reactors (AGRs), Bush et al. [16] further states that some of the ^{14}C in the graphite moderator will pass into the coolant via this corrosion mechanism and finally be discharged to the atmosphere. If this is the case also for RBMKs, the high ^{14}C activities found at 1 km in the moss and litter samples collected at long distances (see Fig. 3) might be explained. The fact that the maximum ^{14}C excess seems to be concentrated to the close vicinity of the stacks, as seen in Fig. 3, implies a particulate source rather than a gaseous source.

If the ^{14}C excess found in the soil originates from particulate material, at least two factors will influence the results when expressed as ^{14}C specific activity; 1) the amount of material in which the particulates are deposited and distributed; and 2) the carbon content of

this material. The first factor might explain the considerable difference in the results obtained from the soil samples from the pier and from the reference site. As the moss samples on the pier were growing on a solid concrete surface, the soil layer was very thin. This means that any particulate material distributed over the surface would be concentrated in a small amount of material, resulting in a high ^{14}C specific activity. However, at the reference site, characterized by a deep soil layer, the particulates would be distributed throughout a large amount of material, resulting in a comparatively low ^{14}C specific activity. The result of the second factor is that the specific activities ($\text{pMC} \Leftrightarrow \text{Bq/kgC}$) obtained from the different soil samples may no longer be intercomparable. This is because the carbon content may vary considerably between different soil samples. However, a rough estimate (based on the graphitization protocols) showed that all soil samples had equal or higher carbon content than the reference site, which means that ^{14}C specific activities found in the pier samples show a true excess relative to the reference site.

Since most soil samples taken under the vegetation layer were collected from concrete surfaces, a fraction of a concrete block from the pier was also sampled in order to investigate whether the material could be a source of contamination. Since the ^{14}C specific activity, as well as the carbon content, in the concrete was lower (see sample ID 10e) than the maximum values found in the soil, this could not be the case. However, a sample which appeared to be a piece of partially decomposed concrete surrounded by clay (found within the soil fraction) proved to contain a high excess of ^{14}C (see sample ID 9a). The specific activity was also significantly higher (regardless of carbon content) than in the soil from which the sample was collected. The reason for this might be that the clay more effectively absorbs the ^{14}C contaminant.

The ^{14}C levels in terrestrial seasonal vegetation (i.e. tree leaves and grass) in the immediate vicinity of the Ignalina power plant are similar to those found close to the modern CANDU-6 reactor Cernavoda in Romania [6]. However, apart from the reactor-specific differences in basic design and construction, the production rate of ^{14}C in nuclear reactors is also directly related to the reactor power. Therefore, to be able to compare the results from different types of reactors, the maximum ^{14}C excess per unit installed electric power capacity has been calculated to enable a rough comparison. The results are presented in Table 2. The normalized data indicate that CANDU reactors affect the ^{14}C levels in their vicinity to a higher degree than the RBMK reactor investigated. As expected from the relationship between reactor power and gaseous releases of ^{14}C given previously, the ^{14}C levels around the RBMK reactor were higher than those detected in the vicinity of Swedish BWRs [17]. The

maximum ^{14}C concentration recorded in terrestrial seasonal vegetation during the reactor study was found at Pickering Nuclear Generating Station in Canada [17], which employs an early type of CANDU reactors.

4.2 LONG DISTANCE

The results of the analysis of moss, litter and soil samples collected at distances of 1–32 km in 2001 and 2003 are presented in Table 3 and Fig. 3. In the moss samples, excess ^{14}C specific activity is observed up to a distance of about 4 km (see Fig. 3). According to Gaussian plume modelling of gaseous releases from a 150 m venting stack, the maximum ground level activity would be found at a distance of approximately 3 km from the stacks as previously mentioned, i.e. not concentrated to the close vicinity of the stacks as in Fig. 3. The distance dependence seen in Fig. 3 can therefore probably not be explained by the distribution of $^{14}\text{CO}_2$ releases.

For the litter samples, elevated ^{14}C levels were found at all sampling sites, which mainly is supposed to be associated with the nuclear weapons fallout of ^{14}C (the bomb pulse) and possibly also to earlier ^{14}C -releases from the power plant at the closest sampling site.

The ^{14}C levels in the soil samples indicate a mixture of a young (influenced by bomb ^{14}C) and an older (^{14}C depletion by radioactive decay) component. The levels do not seem to be affected by ^{14}C releases from the power plant.

The results may be compared with those from the study conducted at the Romanian power plant Cernavoda (CANDU), where grass samples were collected at distances of 0.2 km–4.3 km in 1999 and 2001. Excess levels were found up to a distance of about 1 km from this reactor [6].

The results of the analysis of aquatic plants are presented in Table 4. The lowest ^{14}C specific activity (131 pMC) was detected at the greatest distance from the power plant. The highest ^{14}C levels were found close to the inlet channel (155 pMC) and in the outlet channel (153 pMC), clearly influenced by the liquid effluents from Ignalina power plant. Since the contemporary background level in water reservoirs is different from that in the atmosphere, the excess ^{14}C specific activity should be determined using background data from Lake Drūkšiai. However, analyses of ^{14}C in the dissolved inorganic carbon fraction of water from the northern part of the lake [14,19] indicated elevated values that could be related to the liquid effluents from Ignalina power plant. Therefore, reference data from Lake Dysnos [14,19], a similar lake located nearby, would probably serve as a more valid reference site.

Depending on the choice of reference lake, the maximum ^{14}C excess found in the aquatic plants was 35–50 pMC. Mazeika [14] reports a ^{14}C concentration of 133 pMC, measured in *Myriophyllum spicatum* collected in 1996 from approximately the same site as no.4 in this study.

A similar study was conducted at the Swedish nuclear power plant Barsebäck (BWR), where marine plants (mainly *Fucus vesiculosus*) were collected in 2002 and 2003. The maximum ^{14}C excess found was 15 pMC, which is believed to originate from the power plant [20].

5 CONCLUSIONS

The ^{14}C levels in the surroundings of the Ignalina nuclear power plant have been studied by analysing various types of terrestrial and aquatic samples using AMS. A ^{14}C excess of 10–80 pMC relative the contemporary background was found in the vegetation samples within a distance of 32 km of the power plant. The excess ^{14}C specific activities measured in moss samples collected at distances of 1–32 km indicate a distance dependence which probably cannot be explained by the distribution of $^{14}\text{CO}_2$ releases from the venting stack of the power plant. Soil samples from moss-covered sites within 500 m of the power plant showed highly elevated ^{14}C levels, probably indicating releases of particulate material.

6 REFERENCES

- [1] IAEA, Management of waste containing tritium and carbon-14, Technical Report Series no.421, International Atomic Energy Agency, Vienna, 2004.
- [2] UNSCEAR, Sources and effects of ionizing radiation, Report to the General Assembly with scientific annexes, Vol.I: Sources, UN Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, United Nations, New York, 2000.
- [3] I. Levin, B. Kromer, M. Barabas, K.O. Munnich, Health Physics 54 (1988) 149.
- [4] H.H. Loosli, H. Oeschger, Radiocarbon 31 (1989) 747.
- [5] G.M. Milton, S.J. Kramer, R.M. Brown, C.J.W. Repta, K.J. King, R.R. Rao, Radiocarbon 37 (1995) 485.
- [6] Å. Magnusson, K. Stenström, G. Skog, D. Adliene, G. Adlys, R. Hellborg, A. Olariu, M. Zakaria, C. Rääf, S. Mattsson, Radiocarbon 46 (2004) 863.
- [7] D. Adliene, R. Adlyte, Environmental research, engineering and management, 33 (2005) 32.

- [8] E.A. Konstantinov, N.A. Korablev, E.N. Solovev, V.P. Shamov, V.L. Fedorov, A.M. Litvinov, *Soviet Atomic Energy* 66 (1989) 77.
- [9] K. Stenström, *New applications of ^{14}C measurements at the Lund AMS facility*, PhD dissertation, Lund University press, 1995.
- [10] G. Skog, R. Hellborg, K. Stenström, P. Persson, B. Erlandsson, M. Faarinen, M. Kiisk, in: *Symposium of North Eastern Accelerator Personnel, SNEAP XXXIV*, 2002, p. 48.
- [11] G. Skog, *Nucl. Instr. and Meth. B*, this issue.
- [12] F.A. Gifford, in: D.H. Slade (Ed.), *Meteorology and Atomic Energy*, U.S. Atomic Energy Commission, National Technical Information Service, Report TID-24190, 1968.
- [13] N. Mikhajlov, V. Kolkovskij, I. Pavlova, G. Luchina, *Geochronometria* 23 (2004) 59.
- [14] J. Mazeika, *Radionuclides in Geoenvironment of Lithuania*, Monograph, Vilnius, Institute of Geology, 2002.
- [15] A.J. Wickham, B.J. Marsden, in: *Technologies for Gas Cooled Reactor Decommissioning, Fuel Storage and Waste Disposal*, IAEA TECDOC Series no. 1043, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1997.
- [16] R.P. Bush, G.M. Smith, I.F. Smith, *Carbon-14 waste management*, EUR 8749 EN, Luxembourg, Commission of the European Communities, 1984.
- [17] K. Stenström, B. Erlandsson, S. Mattsson, C. Thornborg, R. Hellborg, M. Kiisk, P. Persson, G. Skog, ^{14}C emission from Swedish nuclear power plants and its effect on the ^{14}C levels in the environment, Internal report LUNDFD6/(NFFR-3079), Lund University, 2000.
- [18] PRIS, Power Reactor Information System, International Atomic Energy Agency, <http://www.iaea.org/>.
- [19] J. Mazeika, personal communication, 2005.
- [20] K. Stenström, S. Leide Svegborn, Å. Magnusson, G. Skog, M. Zakaria, S. Mattsson, *Analysis of ^{14}C at nuclear facilities, industries and laboratories*, Swedish Radiation Protection Authority, Report SSI P 1378 [to be published]

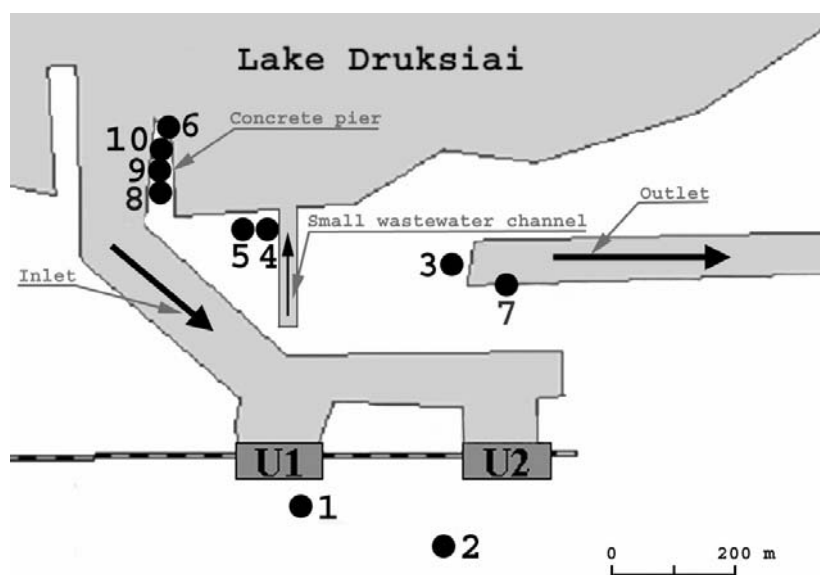


Fig. 1. - Sites of collection of terrestrial samples (no. 1–10) at short distance in 2004 (11 May) in the vicinity of the Ignalina nuclear power plant. U1 and U2 = Unit 1 and 2.

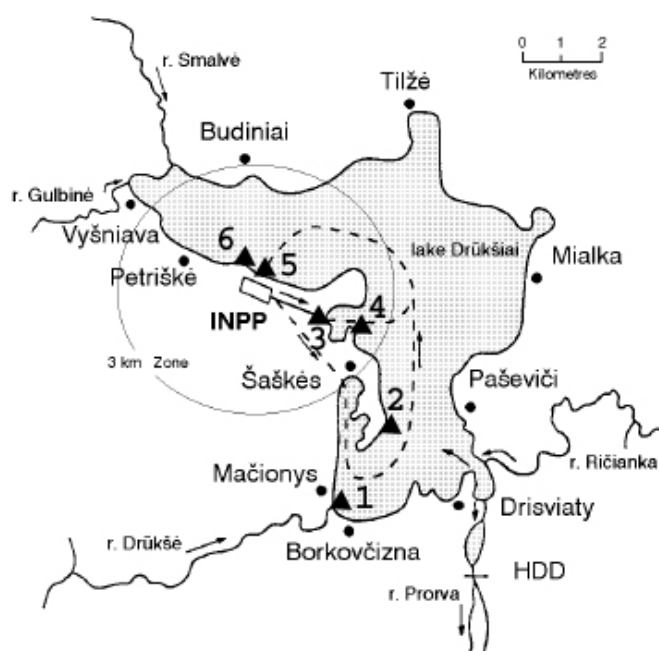


Fig. 2. - Locations for the collection of aquatic plants (no. 1–6) in Lake Drūkšiai and the outlet channel in 2002 (3 July).

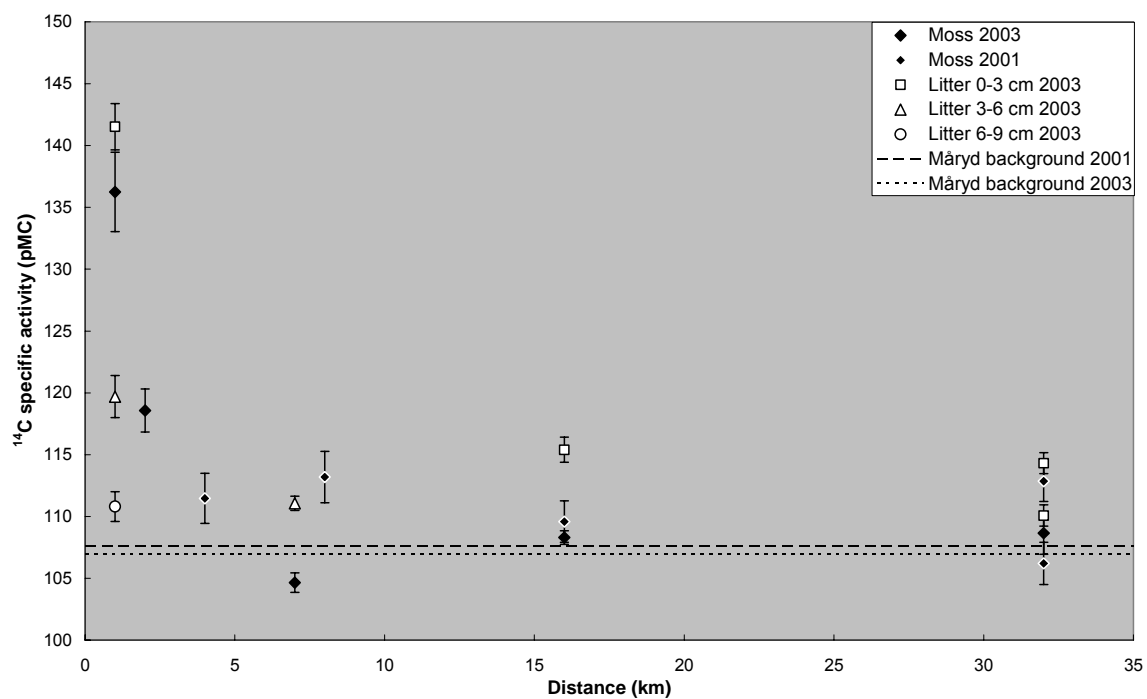


Fig. 3. - ^{14}C specific activity (pMC) found in moss and litter underneath the moss vegetation collected at distances of 1–32 km from the Ignalina power plant in 2003 and 2001. The contemporary atmospheric background in 2003 and 2001, measured in rushes (*Juncus L.*) from Måryd in southern Sweden, was 107 pMC and 108 pMC, respectively.

Table 1 - ^{14}C specific activity (pMC) found in vegetation samples and soil collected within 500 m of the Ignalina nuclear power plant in 2004. Sampling sites are shown in Fig. 1 and the grouped samples in column three refer to the same depth profile. The contemporary background from 2004, 106 pMC, was measured in rushes (*Juncus L.*) from Måryd, southern Sweden.

Sample site and ID	Approximate distance from reactor (m)	Sample type	^{14}C specific activity (pMC)	^{14}C excess (pMC)
1	50	Pine, needles	139 ± 1	33 ± 1
2	150	Goat willow, leaves	127 ± 1	21 ± 1
3	300	White willow, leaves	118 ± 1	12 ± 1
4a		Grass	126 ± 1	20 ± 1
4	400	Soil, depth 0–1 cm	125 ± 1	19 ± 1
		Soil, depth 1–2 cm	123 ± 1	17 ± 1
		Soil, depth >2 cm	174 ± 1	68 ± 1
5	400	Goat willow, leaves	117 ± 1	11 ± 1
6	500	Goat willow, leaves	124 ± 1	18 ± 1
7	300	Moss, total layer	131 ± 2	25 ± 2
		Soil	280 ± 3	174 ± 3
8	450	8a Moss, top layer	136 ± 1	30 ± 1
		8b Moss, top layer	137 ± 1	31 ± 1
		8c Moss, total layer	161 ± 1	55 ± 2
9	460	Soil	370 ± 3	264 ± 3
		Moss, total layer	185 ± 1	79 ± 1
		Soil, upper layer	931 ± 6	825 ± 6
		Soil, lower layer	599 ± 3	493 ± 4
9b		Decomposed concrete + clay	1610 ± 60	1500 ± 60
		Soil, upper layer	1090 ± 10	980 ± 10
10a		Moss, top layer	135 ± 2	29 ± 2
10b		Moss, total layer	143 ± 1	37 ± 1
10	480	10c Moss, total layer	179 ± 1	73 ± 1
		Soil	2310 ± 30	2200 ± 30
		Moss, total layer	150 ± 1	44 ± 1
10d		Soil	508 ± 8	402 ± 8
10e		Solid concrete	459 ± 5	353 ± 5

Table 2 - A rough comparison of the maximum ^{14}C excess found in terrestrial seasonal vegetation samples in the vicinity of different types of reactors. The total generated electricity [18] is related to the year of sampling.

Reactor type	Power plant (height of venting stack)	Total generated electricity ($\text{GW}_e \cdot \text{year}$)	Maximum ^{14}C excess (pMC) (sampling distance)	^{14}C excess / Generated electricity (pMC/ $\text{GW}_e \cdot \text{year}$)
CANDU	Pickering (h < 20 m)	1.51	1940 (d=0.9 km)	1300
	Cernavoda (h=50 m)	0.58	31 (d=0.2 km)	54
RBMK	Ignalina (h=150 m)	1.63	45 (d=0.3 km)	28
BWR	Forsmark (h=100 m)	2.77	12 (d=1.5 km)	4
	Barsebäck (h=110 m)	0.90	3 (d=0.9 km)	3

Table 3 - ^{14}C specific activity (pMC) found in moss and underlying layers, collected at distances of 1–32 km from the Ignalina power plant in 2003 and 2001.

Sampling distance (km)	Depth (cm)	Material	Sampling year	^{14}C specific activity (pMC)
1	-	Moss	2003	136 ± 3
	0–3	Litter	2003	142 ± 2
	3–6	Litter	2003	120 ± 2
	6–9	Litter	2003	111 ± 1
2	-	Moss	2003	119 ± 2
	0–3	Soil	2003	103 ± 2
	3–6	Soil	2003	89 ± 1
	6–9	Soil	2003	84 ± 1
4	-	Moss	2001	111 ± 2
	0–3	Soil	2003	98 ± 1
	3–6	Soil	2003	98 ± 1
	6–9	Soil	2003	74 ± 1
7	-	Moss	2003	105 ± 1
	3–6	Litter	2003	111 ± 1
	3–6	Soil	2003	97 ± 1
	6–9	Soil	2003	86 ± 1
8	-	Moss	2001	113 ± 2
	-	Moss	2003	108 ± 1
16	-	Moss	2001	110 ± 2
	0–3	Litter	2003	115 ± 1
	0–3	Soil	2003	113 ± 1
	3–6	Soil	2003	100 ± 1
	6–9	Soil	2003	103 ± 1
	6–9	Soil	2003	103 ± 1
32	-	Moss	2003	109 ± 2
	-	Moss	2001	106 ± 2
	-	Moss	2001	113 ± 2
	0–3	Litter	2003	110 ± 1
	0–3	Litter	2003	114 ± 1
	6–9	Soil	2003	109 ± 1
	6–9	Soil	2003	109 ± 1

Table 4 - ^{14}C specific activity (pMC) measured in aquatic plants collected along the shoreline of Lake Drūkšiai in 2002. Sampling sites are shown in Fig. 2.

Sampling site	Species	^{14}C specific activity (pMC)
1	<i>Ceratophyllum demersum</i>	131 ± 1
2	<i>Cladophora glomerata</i>	145 ± 2
3	<i>Chara vulgaris</i>	153 ± 2
4	<i>Myriophyllum</i>	147 ± 2
5	<i>Chara vulgaris</i>	141 ± 2
6-1	<i>Potamogeton</i>	155 ± 2
6-2	<i>Ceratophyllum demersum</i>	150 ± 2