INSTITUTO DE ENGENHARIA NUCLEAR

JOSÉ VICTOR JARDIM SAMPAIO

ANÁLISE COMPARATIVA DO VOLUME FINAL DE REJEITOS GERADOS EM USINAS NUCLEARES APÓS TRATAMENTO POR MEIO DE DIFERENTES MÉTODOS DE IMOBILIZAÇÃO

Rio de Janeiro

2019

JOSÉ VICTOR JARDIM SAMPAIO

ANÁLISE COMPARATIVA DO VOLUME FINAL DE REJEITOS GERADOS EM USINAS NUCLEARES APÓS TRATAMENTO POR MEIO DE DIFERENTES MÉTODOS DE IMOBILIZAÇÃO

Dissertação apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Ciência e Tecnologia Nucleares do Instituto de Engenharia Nuclear da Comissão Nacional de Energia Nuclear como parte dos requisitos necessários para a obtenção do Grau de Mestre em Ciências e Tecnologias Nucleares.

Orientador: Zelmo Rodrigues de Lima, D.Sc

Orientador Externo: Laís Alencar de Aguiar, D.Sc

Rio de Janeiro

SAMP Sampaio, José

Análise comparativa do volume final de rejeitos gerados em usinas nucleares após tratamento por meio de diferentes métodos de imobilização / José Victor Jardim Sampaio. -- Rio de Janeiro: CNEN/IEN, 2019.

xi, 81f. : il.. ; 31 cm.

Orientadores: Zelmo Rodrigues de Lima e Laís Alencar de Aguiar

Dissertação (mestrado) - Instituto de Engenharia Nuclear, PPGIEN, 2019

1. Minimização de Rejeitos 2. Métodos de Imobilização de Rejeitos 3. Gerenciamento de Rejeitos

ANÁLISE COMPARATIVA DO VOLUME FINAL DE REJEITOS GERADOS EM USINAS NUCLEARES APÓS TRATAMENTO POR MEIO DE DIFERENTES MÉTODOS DE IMOBILIZAÇÃO

José Victor Jardim Sampaio

DISSERTAÇÃO SUBMETIDA AO PROGRAMA DE PÓS GRADUAÇÃO EM CIÊNCIA E TECNOLOGIA NUCLEARES DO INSTITUTO DE ENGENHARIA NUCLEAR DA COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR COMO PARTE DOS REQUISITOS NECESSÁRIOS PARA OBTENÇÃO DO GRAU DE MESTRE EM CIÊNCIA E TECNOLOGIA NUCLEARES

Aprovada por:

Prof. Zelmo Rodrigues de Lima, D.Sc.

Prof. Laís Alencar de Aguiar, D.Sc.

Prof. Julio Cezar Suita, D.Sc.

Dr. Paulo Igor de Oliveira Pessoa, D.Sc.

RIO DE JANEIRO, RJ-BRASIL

SETEMBRO DE 2019

AGRADECIMENTOS

Aos meus orientadores Dr. Zelmo Rodrigues de Lima e Dra. Laís Alencar de Aguiar, agradeço o apoio, os ensinamentos e principalmente a paciência,

À todos os colaboradores do IEN por todo apoio e disponibilidade durante o curso de mestrado,

Aos meus colegas Bruno Martins, Jayme Rodrigues, Fábio Rodrigues, Luiz Mendonça pelas diversas horas compartilhadas durante as viagens Angra-Rio,

À Eletronuclear por me conceder a oportunidade de realizar o curso,

Ao meu irmão Felipe Jardim pelas diversas dicas durante a fase de elaboração da dissertação,

À minha mãe Maria da Gloria por toda educação que me permitiram chegar até aqui,

À minha esposa Christina Godinho pelo apoio, compreensão e paciência durante as horas ausentes dedicados ao curso,

À minha filha Beatriz Jardim por sempre me manter animado mesmo nos momentos mais difíceis,

Ao meu pai Railton Sampaio que de alguma forma também me ajudou na conclusão do curso.

RESUMO

A minimização de rejeitos radioativos é parte fundamental no seu gerenciamento. Rejeitos gerados em usinas nucleares, classificados como de baixo e médio níveis de radiação podem ser armazenados durante centenas de anos, ocupando espaço nos depósitos iniciais e finais, além de aumentarem os custos de transporte e deposição, tornando essencial a redução do volume não só na geração do rejeito bruto, mas também no seu tratamento. Como forma de identificar um método que produza o menor volume de rejeitos, foram comparados três métodos de imobilização de rejeitos: cimentação, betuminização e secagem direta em tambor. Para cada método foi realizada uma simulação, baseada na geração de rejeitos de uma usina PWR. Os rejeitos selecionados foram: concentrado do evaporador e resinas de troca iônica exauridas do sistema primário. Para realização desta simulação foram obtidos na literatura dados de incorporação de usinas que utilizam esses três métodos. Como resultado verificou-se que a secagem direta em tambor promove a maior redução do volume rejeitos após o processamento, porém este trabalho demonstra que a redução ou aumento do volume após a imobilização está relacionada não só aos graus de incorporação, mas também aos tipos de embalagens utilizadas durante o processo.

Palavras-chave: Minimização de Rejeitos Radioativos, Métodos de Imobilização de Rejeitos Radioativos, Gerenciamento de Rejeitos Radioativos.

ABSTRACT

Reduction of radioactive waste is a key part of its management. Waste generated in nuclear power plants, classified as Intermediate and Low Level Waste, can be stored for hundreds of years, taking up space in the initial and final deposits, increasing transport and deposition costs. It makes essential to reduce volume not only in generation of raw waste, but also in its treatment. In order to identify a method that produces the smallest volume of waste product, three immobilization methods were compared: cementation, bituminization and in drum drying system. For each method, a simulation based on the waste generation from a PWR plant was performed. The selected wastes were: evaporator concentrate and exausted ion exchange resins of the primary system. To perform this simulation, data from the incorporation of plants using these three methods were obtained in the literature. As a result it was found that in drum drying system promotes the highest reduction in waste volume after processing, however this work shows that the reduction or increase in volume after immobilization is related not only to the incorporation, but also to the types of packaging used during the process.

Keywords: Radioactive Waste Minimization, Radioactive Waste Immobilization Methods, Radioactive Waste Management.

LISTA DE ILUSTRAÇÕES

Figura 1. Comparação entre dois programas de gerenciamento de RBMN (EPRI, 1994)	14
Figura 2. Capacidade de geração nuclear em um cenário por região (NEA, 2015)	18
Figura 3. Representação esquemática da reação em cadeia provocada por fissão nuclear (LAMARSF	ł;
BARATTA, 1983)	19
Figura 4. Arranjo de um sistema primário de um reator PWR de 4 loops (TODREAS, KAZIMI, 201	2). 21
Figura 5. Esquema de uma usina do tipo PWR (WILLIS, 1967)	22
Figura 6. Mecanismo de liberação de gases nobres por meio de falhas de elementos combustíveis (NUCLEN, 1998)	25
Figura 7. Formação de elementos no núcleo por meio de reações de captura de nêutrons e decaiment beta (NUCLEN, 1998).	os 26
Figura 8. Percentual de embalagens contendo rejeitos radioativos produzidas na usina de Angra 1	
(BRASIL, 2017)	31
Figura 9. Percentual de embalagens contendo rejeitos radioativos produzidas na usina de Angra 2	27
(DRASIL, 2017).	52 24
Figura 11. Diagrama genérico do tratamento de resinas de troca jônica exercidas geradas em usinas	54
Pigura 11. Diagrama generico do tratamento de resmas de troca fonca exacindas geradas em úsmas	36
Figura 12 Eluxograma simplificado para determinação dos fatores de escala (IAFA 2009)	30
Figura 13, sequência utilizada para estimativa dos radionuclídeos em rejeitos radioativos (TADDEI	55
2013).	40
Figura 14. Diagrama simplificado do sistema MOSS (GESSER, 2000)	47
Figura 15. Foto do sistema MOSS 200 na usina nuclear de Borssele na Holanda (GESSER, 2000)	48
Figura 16. Resistência à compressão x massa de resinas de troca iônica incorporadas em cimento	
(GESSER et al., 2000).	50
bandejas de aço; 4 - camada de gramínea; 5 - camada de argila; (VARLAKOVA; OJOVAN, 2006).	53
Figura 18. Processo típico de extrusão utilizado na betuminização de rejeitos radioativos (AIEA,	
1993)	60
Figura 19. Esquema de um evaporador de filme rotativo (IAEA, 1993).	61
Figura 20. Comparação entre a geração de tambores utilizando-se a cimentação e a secagem direta e	m
tambor em cinco usinas espanholas (BENAVIDES, 2001).	64
Figura 21. Sistema móvel de secagem da empresa alemã GNS (VGB, 2002)	65
Figura 22. Esquema de um processo de secagem direta em tambor (BENAVIDES, 2001)	66
Figura 23. Conexões do tambor ao sistema de secagem (WESTINGHOUSE, 2015)	67
Figura 24. Esquema simplificado do processo de secagem direta em tambor da usina de Krsko na	
Eslovenia, (VOLARIC; ZORKO, 1998)	68
Figura 25. Esquema de uma embalagem revestida de concreto (GNS, 2019).	70
Figura 26. Embalagem utilizada no processo de secagem direta em usinas espanholas (BENAVIDES 2001).	s, 70
Figura 27. Esquema simplificado de uma embalagem MOSAIK (GNS, 2019)	72
Figura 28. Esquema simplificado de MOSAIK utilizado na usina de Sizewell B no Reino Unido	
(GNS, 2019).	73

Figura 29. Geração anual de rejeito processado na usina Beta NPP em diferentes métodos de	
imobilização	82
Figura 30. Geração de rejeito processado após 40 anos de operação da usina utilizada no estudo de	
caso	84

LISTAS DE TABELAS

Tabela 1. Exemplos de reações nucleares de formação dos produtos de corrosão ativados e seus	
elementos originais (NUCLEN, 1998)	27
Tabela 2. Principais radioisótopos produzidos em um reator nuclear (SILVA, 1997, apud GUZELLA	٩,
2010)	27
Tabela 3. Classificação de rejeitos radioativos segundo Norma CNEN NN 8.01 (CNEN, 2014)	29
Tabela 4. Classificação de Rejeitos de Baixo e Médio Níveis de Radiação (RBMN) (CNEN, 2014)	30
Tabela 5. Caracterização do Concentrado do Evaporador (GUZELLA, 2010)	35
Tabela 6. Composição Química do cimento Portland (ATKINS; GLASSER, 1992)	43
Tabela 7. Fases minerais formadas na produção do cimento (ATKINS; GLASSER, 1992)	43
Tabela 8. Principais propriedades das formulações investigadas	46
Tabela 9. Critérios de aceitação para rejeitos cimentados para deposição final (COUMES;	
COURTOIS, 2002)	52
Tabela 10. Betuminização no mundo (GUZELLA, 2010)	54
Tabela 11. Aplicações de diferentes tipos de betume (OJOVAN, 2005)	56
Tabela 12. Especificações do betume para incorporação de rejeitos radioativos em Angra 2	
(GUZELLA, 2010)	58
Tabela 13. Propriedades mais importantes do produto final em diferentes fases da gerência de rejeito)S
GUZELLA, 2010)	63
Tabela 14. Proporções entre os volumes inicial e final para os diferentes métodos analisados de acor	do
com os tipos de rejeitos	82

LISTAS DE ABREVIATURAS E SIGLAS

CE	-	Concentrado do Evaporador
CNEN	-	Comissão Nacional de Energia Nuclear
EPRI		Eletric Power Research Institute
IAEA		International Atomic Energy Agency
PWR	-	Pressurized Water Reactor
RBMN	-	Rejeitos de Baixo e Médio Níveis de Radiação
RDM	-	Radionuclídeos de Difícil Medição
RP	-	Resinas de Troca Iônica Exauridas

1.	INTF	RODUÇÃO	12
2.	OBJI	ETIVO	5
	2.1.	OBJETIVO GERAL	5
	2.2.	OBJETIVOS ESPECÍFICOS	5
3.	FUN	DAMENTAÇÃO TEÓRICA	6
	3.1.	PERSPECTIVAS DA ENERGIA NUCLEAR NO MUNDO	6
	3.2.	TECNOLOGIA NUCLEAR	16
	3.3.	REATORES À ÁGUA PRESSURIZADA (PWR)	19
	3.4.	GERÊNCIA DE REJEITOS	22
	3.5.	FORMAÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS EM UM PWR	23
	3.	5.1 Fissão e ativação do combustível nuclear	24
	3.	5.2 Produtos de Corrosão Ativados	26
	3.6.	CLASSIFICAÇÃO DE REJEITOS RADIOATIVOS	
	3.7.	TIPOS DE RBMN PRODUZIDOS EM UM PWR	30
	3.	7.1 Concentrado do evaporador	31
	3.	7.2 Resinas de Troca Iônica	35
	3.	7.3 Rejeitos Sólidos Compressíveis	37
	3.	7.4 Rejeitos Sólidos Não Compressíveis	37
	3.	7.5 Filtros de Cartucho	37
	3.8.	LEVANTAMENTO ISOTÓPICO	37
	3.9.	MÉTODOS DE IMOBILIZAÇÃO DE REJEITOS RADIOATIVOS	40
	3.	9.1 Cimentação	41
	3.	9.2 Betuminização	55
	3.	9.3 Secagem Direta em Tambor	63
4.	MET	ODOLOGIA	75
5.	RES	ULTADOS E DISCUSSÃO	76
6.	CON	ICLUSÃO	85
7.	REF	ERÊNCIAS	87

SUMÁRIO

1. INTRODUÇÃO

Resíduos são gerados pela sociedade humana desde a pré-história até o presente e, sem dúvida, irão acompanhar nosso futuro. Historicamente, a sociedade tem sido descuidada no que diz respeito ao gerenciamento dos resíduos que produzimos. Deposição no habitat circundante era uma prática usual com pouca preocupação com o meio-ambiente. Entretanto, hoje existe um entendimento que o gerenciamento de resíduos de maneira adequada é fundamental para a preservação do planeta, consequentemente, para gerações futuras (OJOVAN, 2005).

Nesse contexto, em 2010, foi sancionada a lei 12.305 (BRASIL, 2010), que instituiu a Política Nacional de Resíduos Sólidos que tem como principais objetivos a redução, destinação e reutilização dos resíduos gerados, bem como estabelecer responsabilidades compartilhadas entre os geradores. Apesar desta lei não ser aplicável a gerência de rejeitos radioativos, que têm seus critérios estabelecidos pela Comissão Nacional de Energia Nuclear, CNEN, na Norma CNEN NN 8.01 (CNEN, 2014), os princípios básicos são os mesmos devendo os rejeitos radioativos ser classificados, segregados, minimizados, acondicionados e destinados corretamente pelos seus geradores.

Segundo a Norma CNEN NN 6.09 (CNEN, 2002), rejeito radioativo é definido como "qualquer material resultante de atividades humanas, que contenha radionuclídeos em quantidades superiores aos limites de isenção especificados na Norma CNEN-NE-6.02, e para o qual a reutilização é imprópria ou não prevista". Diferente dos resíduos convencionais, os rejeitos radioativos não podem ser reutilizados, aumentando a importância da minimização do volume gerado nas diversas atividades econômicas envolvendo a área nuclear.

Segundo o Relatório Nacional Brasileiro (BRASIL, 2017), no Brasil existem diversos geradores de rejeitos radioativos, dentre eles: usinas nucleares, institutos de pesquisa, reatores de pesquisa, mineração de urânio, produção do combustível nuclear, medicina nuclear, produção de rádio-fármacos, etc. Em um futuro próximo, outras duas atividades importantes serão adicionadas às anteriores como a operação do submarino nuclear e do reator multipropósito brasileiro (RMB). Todas essas atividades necessitam de políticas próprias de gerenciamento, que estejam de acordo com a legislação vigente, visando sempre a minimização dos rejeitos gerados de maneira segura e eficaz.

Programas de minimização da geração de rejeitos radioativos foram amplamente implementados nas décadas de 70 e 80. A maior parte deles produzidos proveniente da geração de energia elétrica de origem nuclear, que são rejeitos de baixo e médio níveis de radiação (RBMN). Esses programas reduziram em 10 vezes a geração desses rejeitos em um período de 20 anos, diminuindo volume a 100 m³/GWe. Como resultado desses programas, o volume de rejeitos gerados por uma usina nuclear tornou-se muito menor comparado a uma usina termelétrica que utiliza combustível fóssil para produzir a mesma quantidade de energia (OJOVAN, 2005).

Após a construção do depósito final de rejeitos radioativos de baixo e médio níveis de radiação (RBMN) pela CNEN, deverão surgir novos critérios de aceitação para o armazenamento dos rejeitos, como qualidade do produto final, tipo de embalagem, matriz, etc. A escolha de um método de tratamento que não seja compatível com as práticas internacionais pode acarretar, além da elevação de custos devido ao reprocessamento, o aumento significativo do volume de rejeitos gerado durante a operação da central.

Segundo Eletric Power Research Institute (EPRI,1994), a adoção de práticas modernas no gerenciamento de RBMN podem ser muito vantajosas do ponto de vista econômico. Diversas usinas nucleares têm reavaliado seus programas nesse sentido e, como resultado, perceberam uma redução significativa nos custos, fonte e volume final. Como exemplo, a figura 1 mostra uma análise qualitativa entre duas plantas que, inicialmente, tinham a mesma produção anual de RBMN (6000 ft³). Após a implementação de um programa de redução de volume em ambas, a planta A conseguiu reduzir o volume de rejeitos para uma taxa anual de 1000 ft³ em apenas 30 dias. Já para a planta B foram necessários de 6 a 8 meses para atingir uma taxa anual de 2500 ft³ de redução. Como resultado, a planta A tem custos significativamente menores que a planta B na gestão de rejeitos. Comprovando assim que investimentos em tecnologias de redução de rejeitos podem ser vantajosos economicamente, principalmente, a longo prazo.



Figura 1. Comparação entre dois programas de gerenciamento de RBMN (EPRI, 1994).

Embora o Brasil disponha apenas de duas centrais nucleares, o que dificulta investimento e acesso a novas tecnologias, algumas práticas bem sucedidas foram aplicadas nessas centrais. (MONTE ET AL, 2007), apresentaram algumas ações de baixo custo que foram implementadas nas usinas de Angra 1 e 2 e obtiveram bons resultados na redução de rejeito sólido, aumentando desta forma a vida útil do depósito inicial da central e, consequentemente, reduzindo os custos da transferência para o repositório final. Eles citam também a existência de processos avançados em outros países, os quais suas aplicabilidades no Brasil estão pendentes de avaliação.

A falta de tecnologia no mercado nacional, aliada ao alto custo da importação de serviços e o fato do depósito final ainda não estar em operação fazem com que os rejeitos gerados pelas usinas de Angra tenham que ser tratados dentro do próprio sítio, desde o acondicionamento até a deposição inicial. Desse modo, torna-se imprescindível que os métodos de tratamento de rejeitos adotados pelas usinas estejam de acordo com a realidade brasileira, tendo sempre como objetivos principais a redução de volume e atendimento aos critérios de aceitação para fins de deposição final.

Neste trabalho estão descritos os principais RBMN gerados em usinas nucleares, bem como os processos de geração, caracterização, classificação e tratamento. Foram estudados três métodos de tratamento de rejeitos radioativos: cimentação, betuminização e secagem direta em tambor. Por

meio de dados obtidos na literatura e em pesquisa de campo, estudou-se o volume de rejeito radioativo gerado por cada técnica após o tratamento de concentrado do evaporador e resinas de troca iônica exaurida, que são RBMN produzidos em usinas nucelares.

2. OBJETIVOS

2.1 Objetivo Geral

Realizar uma análise comparativa entre as técnicas de processamento de rejeito radioativo de imobilização em cimento, betume e em secagem direta em tambor (ausência de matriz), visando a estabelecer o volume final de rejeito gerado após o tratamento de concentrado do evaporador e resinas de troca iônica exauridas produzidas em uma usina nuclear com reator à água pressurizada PWR.

2.2 Objetivos Específicos

- Estabelecer o processo de tratamento, dentre os selecionados, onde é possível produzir a menor quantidade de rejeito possível e que atenda aos critérios de aceitação estabelecidos nacional e internacionalmente.
- Utilizar a experiência operacional de usinas nucleares como base para o cálculo comparativo de geração de rejeitos após o tratamento.
- Descrever os processos de tratamento de rejeitos de cimentação, betuminização e secagem direta em tambor.

3. FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA

Neste capítulo são apresentados uma breve descrição da tecnologia nuclear de reatores PWR, o mecanismo de produção de radionuclídeos nesses reatores e os diferentes tipos de rejeitos radioativos formados em função de sua remoção.

Também são apresentados aspectos gerais do gerenciamento destes rejeitos, como caracterização, classificação e métodos de imobilização em cimento, betume e em embalagens de alta integridade.

3.1 Perspectivas da energia nuclear no mundo

Embora os três maiores acidentes na história (Three Mile Island, Chernobyl e Fukushima) trouxessem severos danos no desenvolvimento da energia nuclear para maioria dos países, interrompendo o seu desenvolvimento em curto prazo, em uma perspectiva de longo prazo, o futuro da energia nuclear ainda é promissor. (GU, 2018).

Durante a última década, crescentes preocupações a respeito do preço e segurança no suprimento de combustíveis fósseis, mudanças climáticas e o crescimento da demanda energética de países desenvolvidos e em desenvolvimento contribuíram para um ressurgimento do interesse mundial em energia nuclear (KESSIDES, 2012; JEWELL, 2010).

Conforme o gráfico da figura 2 e segundo projeções da Agência de Energia Nuclear (NEA), em um cenário no qual as pesquisas climáticas recentes indicam um aumento de 2 °C na temperatura média da Terra, serão necessários um aumento de 11% em 2011 para 17% em 2050 da participação da energia nuclear na matriz energética global (NEA, 2015).



Figura 2. Capacidade de geração nuclear em um cenário por região (NEA, 2015).

Outro aspecto importante para o desenvolvimento da energia nuclear no mundo é aceitação da opinião pública. Uma pesquisa realizada em 2010 mostrava que mais de dois terços dos participantes afirmaram que seus países deveriam utilizar ou aumentar o uso da energia nuclear (KESSIDES, 2012). Porém, o acidente de Fukushima mudou rapidamente esse cenário, uma nova pesquisa realizada em 2011 mostrou que 62% dos participantes eram contra o uso da energia nuclear. Isso demonstra a importância de reduzir a quantidade de rejeitos gerados como forma de mostrar à sociedade que os impactos adversos do uso da energia nuclear são mínimos perante os benefícios relacionados ao seu uso.

3.2 Tecnologia Nuclear

Assim como uma termoelétrica convencional gera eletricidade por meio do aproveitamento da energia térmica liberada pela queima de combustíveis fósseis, o reator nuclear produz e controla a liberação de energia pela da fissão de certos átomos. Esse processo é conhecido como reação em cadeia (POULLIKKAS, 2013), onde nêutrons são emitidos como produtos da fissão nuclear, que por sua vez induzem a fissão nuclear de outros átomos físseis, como urânio-235 e plutônio-239, que liberam mais nêutrons e assim por diante. A reação em cadeia pode ser descrita por um fator multiplicativo, denominado como *k*, que é definido pela taxa de número de fissões em uma geração dividido pelo número de fissões na geração seguinte (LAMARSH; BARATTA, 1983). A figura 3 mostra uma representação esquemática da reação em cadeia.



Figura 3. Representação esquemática da reação em cadeia provocada por fissão nuclear (LAMARSH; BARATTA, 1983).

Como descrito, a reação em cadeia é proporcional a quantidade de nêutrons, logo, para que seja controlada, deve-se conter a quantidade de nêutrons que está sendo gerada no reator. Eles podem ser removidos de duas maneiras: reações nucleares de absorção ou escape da superfície do reator. Quando a soma das taxas de absorção e escape são exatamente iguais as taxas de produção de nêutrons, o reator está crítico. Como o escape de nêutrons está relacionado com a geometria do reator, o controle da reação em cadeia é realizado utilizando-se absorvedores de nêutrons, que podem estar dissolvidos no refrigerante do reator (normalmente utiliza-se soluções de ácido bórico) ou por meio de barras de controle fabricadas com materiais absorvedores de nêutrons, que são introduzidas ou retiradas do reator dependendo da necessidade de se aumentar ou diminuir a energia provocada pelas reações de fissão (LAMARSH; BARATTA, 1983).

Em um período curto da história da energia nuclear, vários tipos de reatores foram propostos para produção de vapor (LAMARSH; BARATTA, 1983). Segundo os princípios utilizados para produção de energia elétrica por meio da energia nuclear são os mesmos para a maioria dos reatores. A energia liberada pela fissão contínua dos átomos é aproveitada para aquecer um gás ou água e, posteriormente, utilizada para produção de vapor. A energia cinética do vapor é utilizada para movimentar as turbinas, que por usa vez irão girar o eixo do gerador elétrico para produção de energia elétrica (POULLIKKAS, 2013).

Os sistemas de reatores à potência dividem-se em cinco tipos (LAMARSH; BARATTA, 1983):

- (a) Reatores à água pressurizada (PWR Pressurized Water Reactor) e reatores à água fervente (BWR Boiling Water Reactor);
- (b) Reatores à agua pressurizada evolucionários, contém os mesmos elementos básicos de um PWR, porém com melhorias significantes;
- (c) Reatores à água fervente evolucionários;
- (d) Reatores moderados à água pesada;
- (e) Reatores resfriados à gás;

Atualmente, existem 453 usinas nucleares em operação e 55 em construção (IAEA, 2019). Dentre os reatores em operação 65% são do tipo PWR e dentre os que estão em construção, este número chega a 83% (IAEA, 2018). Os reatores nucleares de Angra 1 e Angra 2 e futuramente Angra 3 utilizam esta mesma tecnologia. Devido a essa predominância, o presente trabalho só entrará em detalhes em projetos de reatores do tipo PWR.

3.3 Reatores à água pressurizada (PWR)

Reatores do tipo PWR foram um dos primeiros projetos desenvolvidos comercialmente nos Estados Unidos (fabricado pela empresa *Westinghouse*). Esse tipo de reator é utilizado em navios e submarinos com propulsão nuclear (LAMARSH; BARATTA, 1983).

O refrigerante do sistema primário consiste em um arranjo de múltiplos loops ao redor do vaso do reator. Projetos de 2, 3 e 4 loops têm sido construído ao longo dos anos, sendo os mais comuns os de 3 e 4 loops. Conforme demonstrado na figura 4, em um reator típico de 4 loops, cada um possui um gerador de vapor e uma bomba de refrigeração do reator (TODREAS, KAZIMI, 2012).



Figura 4. Arranjo de um sistema primário de um reator PWR de 4 loops (TODREAS, KAZIMI, 2012).

Em um PWR, a água, além de refrigerante, é utilizada como moderador, ou seja, por meio de múltiplas colisões entre átomos de hidrogênio presentes na água, os nêutrons perdem energia passando de nêutrons rápidos para nêutrons térmicos que é a região de maior probabilidade de ocorrência da fissão nuclear para átomos físseis como Urânio-235 e Plutônio-239, que são utilizados em grande parte das usinas PWR no mundo.

O uso da água como moderador é uma característica importante de segurança de PWR. Como o aumento da temperatura causa a expansão da água e a torna menos densa e, dessa forma, reduz as colisões com nêutrons rápidos, reduzindo assim o número de fissões, a reatividade do reator e, consequentemente, produzindo menos calor. Essa propriedade é conhecida como coeficiente negativo de reatividade e tornam os PWR muito estáveis (POULLIKKAS, 2013).

A maior desvantagem de utilizar água leve como moderador é seu ponto de ebulição que é relativamente baixo para altas temperaturas de operação do sistema primário em uma usina nuclear. Para não ocorrer a vaporização, é necessário pressões de operação elevadas, da ordem de

150 bar. A vaporização da água em um PWR ocorre no lado secundário do gerador de vapor, ao contrário de reatores do tipo BWR onde a água vaporiza no núcleo do reator (SANTOS, 2014).

Na figura 05 é representado um esquema simplificado de uma usina do tipo PWR. A grande diferença em relação a usinas do tipo BWR é a troca de calor indireta devido à utilização de geradores de vapor. Apesar de reduzir a eficiência da planta, a grande vantagem desses tipos de reatores são as barreiras existentes entre o material radioativo e o meio ambiente em função do isolamento entre o lado primário e o lado secundário (SANTOS, 2014).



Figura 5. Esquema de uma usina do tipo PWR (WILLIS, 1967)

3.4 Gerência de Rejeitos

Os rejeitos radioativos devem ser gerenciados de maneira a não impactar as futuras gerações, ou seja, as gerações que os produzem devem buscar soluções seguras, práticas, e ambientalmente aceitáveis para um gerenciamento de longo prazo. Sistemas de gerenciamento de rejeitos tem um papel fundamental para que estas soluções sejam implementadas em todos os estágios, desde a geração até deposição. (IAEA, 2008).

A gerência de rejeitos é dividida em etapas, e o atendimento de cada dependerá do tipo de rejeito a ser gerenciado. As principais etapas do gerenciamento de rejeitos radioativos são (IAEA, 2008):

- (a) Geração
- (b) Pré-Tratamento;
- (c) Caracterização;
- (d) Tratamento;
- (e) Acondicionamento;
- (f) Armazenamento;
- (g) Controle de descargas;
- (h) Limites de Isenção;
- (i) Embalagens;
- (j) Transporte dos embalados de rejeito;
- (k) Análise de segurança;
- (l) Autorização do órgão regulador;

No Brasil os critérios gerais e requisitos básicos de segurança e proteção radiológica relativos à gerência de rejeitos de baixo e médio níveis de radiação bem como rejeitos de meiavida muito curta estão descritos na Norma CNEN NN 8.01 (CNEN, 2014).

3.5 Formação de radionuclídeos em um PWR

Termo fonte é definido como a quantidade e a composição de material radioativo liberado em uma instalação nuclear, como, por exemplo, rejeitos radioativos enviados para um depósito final (IAEA, 2003). Termo fonte está diretamente associado a formação de grandes quantidades de radionuclídeos durante a operação de um reator nuclear em que após sua formação no núcleo, esses são transportados pelo refrigerante do reator e depositados por todo circuito primário, sendo responsáveis pelos campos de radiação presente em tubulações e equipamentos. Para manter os valores das taxas de dose os mais baixos possíveis para os trabalhadores de uma central nuclear, são necessários a utilização de processos físico-químicos para remoção destes radionuclídeos, obtendo como produto desses processos os rejeitos radioativos.

Estes radionuclídeos podem ser classificados em dois principais grupos de acordo com os mecanismos de formação (PROVENS, 2002):

- Fissão e ativação do combustível nuclear;
- Produtos de corrosão ativados;

3.5.1 Fissão e ativação do combustível nuclear

Durante a operação do reator, as reações de fissão nos elementos combustíveis produzem um grande número de produtos radioativos. Grande parte destes produtos ficam retidos no encamisamento do combustível, porém, em caso de falhas ou defeitos, uma pequena porção será liberada no refrigerante do reator. Dentre os produtos liberados estão os não-voláteis como Ba, Sr, Ce, Pr, Zr, Ru, gases nobres e actinídeos, que, normalmente, não migram para fora das varetas de elemento combustível íntegro. A quantidade liberada também depende do tamanho e da posição da falha (DONG et al, 2018).

Pequenas quantidades de material físsil liberadas no primário podem causar sérios riscos de contaminação por emissores alpha. Além disso, o fato de os actinídeos apresentarem a propriedade de se depositarem nas superfícies dos equipamentos e tubulações, sua medição durante a operação da usina é muito difícil. Como forma de identificar uma falha de elemento combustível, foi proposto um modelo de acompanhamento da evolução da atividade do Iodo-134 no refrigerante (BENFARAH ET AL, 2015). Na figura 6, é mostrado um mecanismo de liberação de gases nobres por meio de uma falha de elemento combustível.



Figura 6. Mecanismo de liberação de gases nobres por meio de falhas de elementos combustíveis (NUCLEN, 1998).

Falhas de elementos combustíveis podem ser minimizadas por meio de um cuidadoso controle químico do refrigerante, variações de potência e prevenindo a entrada de materiais estranhos durante parada para recarregamento ou manutenção (YIM; OCKEN, 2001).

Além da falha, outra maneira de ocorrer presença de produtos de fissão no refrigerante do reator é por meio da contaminação de óxido de urânio (UO₂) na superfície das varetas dos elementos combustíveis, que pode ocorrer durante a fabricação. Neste caso, ao passar pelo núcleo do reator, o U-235 sofre ativação neutrônica, onde, além da fissão, pode sofrer captura de nêutrons, liberando elementos transurânicos no refrigerante. A figura 7 mostra um dos principais processos de formação desses elementos transurânicos no núcleo (NUCLEN, 1998):



Figura 7. Formação de elementos no núcleo por meio de reações de captura de nêutrons e decaimentos beta (NUCLEN, 1998).

3.5.2 Produtos de Corrosão Ativados

Apesar de um rigoroso controle químico do refrigerante e a utilização de ligas metálicas de alta resistência, mesmo que minimizados, processos corrosivos ocorrem em todo circuito primário. Os produtos de corrosão são transportados pelo refrigerante e ao entrarem em contato com fluxo neutrônico, presente no núcleo do reator, são ativados e podem se depositar nas superfícies das tubulações e equipamentos ou serem removidos por processos de purificação, como filtragem mecânica ou troca iônica por filtros de resina.

A natureza dos produtos de corrosão ativados e liberados no refrigerante está diretamente relacionada aos tipos de ligas metálicas utilizadas na construção da usina (JARVIS; JARVIS, 2018). Os radionuclídeos que mais contribuíram para as taxas de dose em um PWR são Cobalto-58 e Cobalto-60, os quais são responsáveis por cerca de 80% dos campos de radiação fora da periferia do núcleo do reator. O Cobalto-60 é produzido pela captura de um nêutron térmico pelo seu percursor, Cobalto-59 (forma 100% abundante na natureza). Já o Cobalto-58 é produzido pela reação nuclear ⁵⁸Ni(n,p)⁵⁹Co. O Níquel é o maior constituinte das ligas metálicas no sistema primário (YIM; OCKEN, 2001). Dentre os outros radionuclídeos formados, os principais são: Cromo-51, Manganês-54 e Ferro-59 (PROVENS, 2002).

Como forma de diminuir o termo fonte associado ao Co-58 e Co-60, gerações mais modernas de reatores têm substituído os materiais por ligas com baixo teor de cobalto e níquel. Como a substituição desses materiais requer altos investimentos, algumas usinas alemãs optaram por realizar a injeção de zinco empobrecido no circuito primário, com o objetivo de reduzir a liberação dessas fontes. Por meio da injeção de zinco empobrecido que a liberação de Co-58 e Co-60 no refrigerante será reduzido (STELLWAG ET AL., 2002).

Alguns exemplos de produtos de corrosão ativado, as reações nucleares para sua formação e as ligas metálicas, nos quais estão presentes, são apresentados na tabela 1 (NUCLEN, 1998). Na tabela 2 são apresentados os principais radioisótopos gerados em um reator nuclear.

Tabela 1. Exemplos de reações nucleares de formação dos produtos de corrosão ativados e seus elementos originais (NUCLEN, 1998).

Reação Nuclear	Fonte	
Fe-54 (n, γ) Fe-55	Incoloy 800, aços austeníticos	
Fe-58 (n, γ) Fe-59		
Fe-54 (n, p) Mn-54		
Fe-56 (n, p) Mn-56		
Cr-50 (n, γ) Cr-51		
Ni-62 (n, γ) Ni-63	Incoloy 800, aços austenísticos	
Ni-64 (n, γ) Ni-65	Impurezas de Co no Incoloy e aços austeníticos	
Ni-58 (n, p) Co-58	[11] S. M. M. M. S. M. M. Markellin, J. M.	
Co-59 (n, γ) Co-60		
Zr-94 (n, γ) Zr-95βNb-95	Revestimentos de Zircaloy, produtos de fissão	
Zr-96 (n, γ) Zr-97βNb-97		
Mo-98 (n, γ) Mo-99βTc-99m		
Ag-109 (n, γ) Ag-110 m	Selos contendo Ag	
Cd-114 (n, γ) Cd-115 m	Barras de Controle	
Sb-121 (n, γ) Sb-122	Selos contendo antimônio	
Sb-123 (n, γ) Sb-124		

Tabela 2. Principais radioisótopos produzidos em um reator nuclear (SILVA, 1997, apud GUZELLA, 2010)

Radioisótopo	Meia-vida
Co-60	5,26 a
Cs-137	30,17a
Fe-55	2,7 a
H-3	12,323 a
I-129	1,6 x 10 ⁷ a
Kr-85	10,72 a
Sr-90	28,1 a
Xe-133	5,25 d

3.6 Classificação de Rejeitos Radioativos

Radionuclídeos estão presentes em boas partes dos materiais naturais ou artificiais, incluindo seres vivos, logo não seria possível afirmar que todos os materiais que possuam algum tipo de radionuclídeo sejam classificados como rejeitos radioativos. Portanto, como forma de caracterizar um resíduo como rejeito radioativo foi estabelecido limites mínimos, levando-se em contas as propriedades dos elementos radioativos presentes e os impactos ao meio ambiente ocasionados pela sua liberação (SILVA, 2006).

Os rejeitos que apresentem atividade abaixo dos limites estabelecidos são considerados como isentos e são liberados sem que seja necessário um controle regulatório. Podem ser tratados e dispostos por meio de técnicas convencionais, sem considerar suas propriedades radioativas (IAEA, 2009).

No Brasil a classificação dos rejeitos radioativos é estabelecida pela norma CNEN NN 8.01 (CNEN, 2014), que os classificas em classes segundo seus níveis e natureza da radiação, bem como suas meias-vidas, conforme descrito na tabela 3.

Classe 0	Rejeitos Isentos	Rejeitos contendo radionuclídeos com valores de atividade
		ou de concentração de atividade, em massa ou volume,
		inferiores ou iguais aos respectivos níveis de dispensa
		estabelecidos nos Anexos II e VI da norma;
Classe 1	Rejeitos de Meia-	Rejeitos com meia-vida inferior ou da ordem de 100 dias,
	Vida Muito Curta	com níveis de atividade ou de concentração em atividade
		superiores aos respectivos níveis de dispensa;
Classe 2	Rejeitos de Baixo e	Rejeitos de baixo e médio níveis de radiação contendo
	Médio Níveis de	emissores beta/gama, com meia-vida inferior ou da ordem
	Radiação	de 30 anos e com concentração de radionuclídeos
		emissores alfa de meia-vida longa limitada em 3700
		kBq/kg em volumes individuais e com um valor médio de
		370 kBq/kg para o conjunto de volumes;
Classe 3	Rejeitos de Alto	Rejeitos com potência térmica superior a 2kW/m3 e com
	Nível de Radiação	concentrações de radionuclídeos de meia-vida longa que
		excedam as limitações para classificação como rejeitos de
		meia-vida curta.

Tabela 3. Classificação de rejeitos radioativos segundo Norma CNEN NN 8.01 (CNEN, 2014).

Os rejeitos de baixa e média atividade gerados durante a operação das centrais nucleares são constituídos de materiais e equipamentos que de alguma forma retiveram os radionuclídeos produzidos por diferentes mecanismos. Os maiores contribuintes da atividade desses rejeitos são os radionuclídeos de meia-vida curta, como o cobalto-60 e o césio-137, que decaem a níveis seguros após 200 a 300 anos de estocagem. Os rejeitos de média atividade, compostos pelos concentrados do evaporador, utilizado para o tratamento de grandes volumes de efluentes líquidos, por filtros de cartucho e resinas de troca iônica provenientes dos sistemas de purificação da água do reator (SOUZA, 1998 apud SILVA, 2006). Na tabela 4 são apresentadas as subclasses de RBMN, conforme Norma CNEN NN 8.01 (CNEN, 2014).

Classe 2.1	Meia-Vida Curta	Rejeitos de baixo e médio níveis de radiação contendo
		emissores beta/gama, com meia-vida inferior ou da ordem
		de 30 anos e com concentração de radionuclídeos
		emissores alfa de meia-vida longa limitada em 3700
		kBq/kg em volumes individuais e com um valor médio de
		370 kBq/kg para o conjunto de volumes;
Classe 2.2	Rejeitos Contendo	Rejeitos de extração e exploração de petróleo, contendo
	Radionuclídeos	radionuclídeos das séries do urânio e tório em
	Naturais	concentrações de atividade ou atividades acima dos níveis
		de dispensa estabelecidos no Anexo VI da referida
		Norma.
Classe 2.3	Rejeitos contendo	Rejeitos contendo matérias primas minerais, naturais ou
	Radionuclídeos	industrializadas, com radionuclídeos das séries do urânio
	Naturais	a da tária are concentraçãos de atividade ar atividades
	1 (atalais	e do torio em concentrações de atividade ou atividades
		acima dos níveis de dispensa estabelecidos no Anexo VI
		acima dos níveis de dispensa estabelecidos no Anexo VI da referida Norma;
Classe 2.4	Rejeitos de Meia-	acima dos níveis de dispensa estabelecidos no Anexo VI da referida Norma; Rejeitos não enquadrados nas Classes 2.2 e 2.3, com
Classe 2.4	Rejeitos de Meia- Vida Longa	acima dos níveis de dispensa estabelecidos no Anexo VI da referida Norma; Rejeitos não enquadrados nas Classes 2.2 e 2.3, com concentrações de radionuclídeos de meia-vida longa que
Classe 2.4	Rejeitos de Meia- Vida Longa	acima dos níveis de dispensa estabelecidos no Anexo VI da referida Norma; Rejeitos não enquadrados nas Classes 2.2 e 2.3, com concentrações de radionuclídeos de meia-vida longa que excedem as limitações para classificação como rejeitos de

Tabela 4. Classificação de Rejeitos de Baixo e Médio Níveis de Radiação (RBMN) (CNEN, 2014).

3.7 Tipos de RBMN Produzidos em um PWR

A geração do rejeito, por vezes, está associada a processos de remoção dos radionuclídeos presentes no refrigerante do reator. Os radionuclídeos transportados pelo refrigerante são removidos e concentrados por meio de filtros e resinas, que quando saturados são substituídos e tratados como rejeito radioativo. Esses processos são necessários para reduzir as taxas de dose aos trabalhadores durante a operação da usina. Além de rejeito sólido durante a operação de um PWR,

também são produzidos rejeitos líquidos, provenientes de drenagens ou vazamentos de equipamentos contendo refrigerante do primário. Os radionuclídeos presentes nos efluentes líquidos são concentrados de forma a reduzir a quantidade de rejeito líquido produzida. (KJELLBERT; HAGGBLOM, 1980).

Os principais tipos de rejeitos radioativos produzidos em uma usina nuclear durante operação normal e em parada podem ser classificados como: concentrado do evaporador (CE), resinas de troca iônica exauridas (RP), rejeitos sólidos compressíveis, rejeitos sólidos não compressíveis e filtros de cartucho.

Nas figuras 8 e 9, são apresentados os percentuais de embalagens produzidas durante a operação de Angra 1 e Angra 2 respectivamente (BRASIL, 2017).



Figura 8. Percentual de embalagens contendo rejeitos radioativos produzidas na usina de Angra 1 (BRASIL, 2017).





3.7.1 Concentrado do evaporador

Rejeitos radioativos líquidos resultam de descarregas ou vazamentos do sistema de refrigeração do reator, drenagens de equipamentos para manutenção, sistemas de amostragens e análises químicas, sistemas de descontaminação de materiais (ultrassom, hidro jateamento, etc.), lavanderia de roupas e outras atividades que resultem na liberação de líquidos contaminados (IAEA, 1996).

Efluentes de baixa pureza como retrolavagem de filtros, soluções descontaminantes, drenos de piso, resíduos de laboratório e vazamentos de equipamentos diversos têm uma composição variável e complexa de ser determinada. Por essa razão, como forma de minimizar a radioatividade dos efluentes líquidos, algumas plantas optam por utilizar um evaporador de rejeitos, onde o destilado retorna para o circuito primário ou é liberado para o meio ambiente desde que o limite de dispensa não seja ultrapassado. O concentrado, contendo praticamente todos os radionuclídeos presentes no efluente tratado, é armazenado em tanques de estocagem para posterior imobilização (IAEA, 1996).

Na usina de Angra 2, os rejeitos líquidos radioativos são divididos em três grupos:

- Grupo I - rejeitos ativos com atividade específica entre 3,7 a 3,7E+3 Bq/cm³;

- Grupo II – rejeitos líquidos de baixa atividade e inativos com atividade específica menor que 3,7E-01 Bq/cm³;

Cada grupo é coletado em tanques distintos. Normalmente os rejeitos de baixa atividade já se encontram abaixo do limite de dispensa exigido pelo órgão regulador e são enviados para tanques de monitoração onde após análises químicas e radio-químicas são liberados para o meio ambiente, desde que atendidos os critérios estabelecidos pela CNEN. Os rejeitos ativos são tratados no evaporador de rejeitos e posteriormente imobilizados em betume, por meio do sistema de processamento de rejeitos sólidos (BRASIL, 2017).

Na figura 10, é apresentado um diagrama genérico do tratamento de rejeitos líquidos gerados em usinas PWR:



Rejeito líquido

Figura 10. Diagrama simplificado do tratamento de rejeito líquido em uma usina PWR.

Na tabela 5, é mostrada a caracterização físico-química de uma solução de concentrado do evaporador realizada por Guzella (2010), que foi produzida baseada em informações fornecidas pela Eletronuclear.

Determinação	(% em massa) ^(*)
Boro	3,37±0,11
Sódio	4,73±0,46
Cloreto	0,28±0,12
Fosfato	1,41±0,12
Sulfato	3,31±0,49
Cálcio	1,08±0,07
% de sólidos	25,6±0,3

Tabela 5. Caracterização do Concentrado do Evaporador (GUZELLA, 2010).

(*) Média de três determinações em três simulados de soluções de rejeito

3.7.2 Resinas de Troca Iônica

Resinas de troca iônica são amplamente utilizadas em usinas nucleares, dentre as principais funções podemos listar (IAEA, 2002):

- (a) Purificação do refrigerante do reator (água borada);
- (b) Tratamento de efluentes proveniente do circuito primário;
- (c) Purificação da piscina de elemento combustível;
- (d) Sistema de purificação da purga do gerador de vapor;
- (e) Tratamento de rejeitos radioativos líquidos (redução da atividade);
- (f) Purificação e reciclagem do ácido bórico;

Por terem uma grande eficiência na remoção de radionuclídeos, esses tipos de resinas, normalmente, apresentam alta atividade, requerendo maiores cuidados no manuseio, armazenamento e tratamento. A seleção do tratamento e do embalado devem ser escolhidos visando aos critérios de aceitação definido pelo órgão regulador para deposição final (IAEA, 2002).

Em usinas PWR alemãs, projetadas pela KWU-Siemens, similares a usina de Angra 2, após exauridas, as resinas provenientes da purificação do primário e da piscina de armazenamento de combustível usado são transferidas para tanques de armazenagem para posterior incorporação em algum tipo de matriz como, por exemplo, betume ou cimento (BRASIL, 2017). Segundo a IAEA (1981), usinas alemãs de 1300 MWe produzem em média 3 m³/ano de resinas exauridas do sistema
primário. Abaixo segue, como exemplo, um diagrama do esquema de processamento de resinas de troca iônica desse tipo de usina.

Na figura 11, é apresentado um diagrama genérico do tratamento de resinas de troca iônica exauridas geradas em usinas PWR:



Resinas de Troca Iônica Exauridas

Figura 11. Diagrama genérico do tratamento de resinas de troca iônica exauridas geradas em usinas PWR.

3.7.3 Rejeitos Sólidos Compressíveis

Os materiais sólidos compactáveis são produzidos durante atividades de manutenção e operação da usina. Consiste basicamente de materiais contaminados como vestimentas, equipamentos de proteção individual, plásticos, ferramentas entre outros. A maior parte desses rejeitos são produzidos durante a parada para recarregamento. Podem ser triturados e compactados em tambores, como é o caso das usinas de Angra 1 e 2 (BRASIL, 2017).

3.7.4 Rejeitos sólidos não compressíveis

O processo de geração é semelhante aos rejeitos compactáveis, porém, devido sua dureza, não podem ser triturados nem prensados. Consistem basicamente de materiais como válvulas, tubos, flanges e ferramentas utilizadas na manutenção. Podem ser submetidos a processos químicos e mecânicos de descontaminação (imersão em bacias de descontaminação, jateamento com esferas de vidro em cabines de jateamento úmido, bacia de ultrassom, usinagem, etc) e até mesmo liberados caso apresentem atividade abaixo do limite de dispensa estabelecido pelo órgão regulador, caso contrário, devem receber tratamento visando ao atendimento do critério de aceitação para deposição final (BRASIL, 2017).

3.7.5 Filtros de cartucho

Boa parte dos produtos de corrosão ativados são removidos por filtros de cartucho, minimizando a concentração de particulados no sistema de refrigeração do reator. Podem ser armazenados em tambores e imobilizados por meio de algum tipo de matriz.

Outros tratamentos alternativos são corte ou trituração seguidos por armazenamento em embalagem apropriada. Esses processos permitem uma redução significativa do volume do produto final, porém requer cuidados para que não ocorra dispersão de aerossóis contendo radionuclídeos (IAEA, 2006).

3.8 Levantamento Isotópico

A norma CNEN NN 6.09 (2002) estabelece que "o tipo, a composição e o conteúdo de radionuclídeos do rejeito radioativo, tratado na forma final, devem ser conhecidos e documentados com suficiente precisão para apresentar evidência de sua conformidade com os limites

autorizados". Ou seja, é mandatório por norma que os geradores de rejeitos radioativos realizem a caracterização isotópica visando a sua deposição final.

O inventário dos radionuclídeos de cada embalado contendo rejeitos radioativos é necessário para realização da análise de segurança do depósito final, a qual é considerada diversos fatores relevantes a um armazenamento de longo prazo, tais como: tipo de radiação emitida, meiavida, mobilidade no meio ambiente e efeito da radiotoxicidade em um armazenamento a longo prazo (TADDEI ET AL, 2014).

A caracterização isotópica é importante para que sejam estabelecidos os limites autorizados em função das doses de radiação que indivíduos do público podem vir a receber anualmente a partir do inventário presente no repositório. Esses limites são estabelecidos, principalmente, em relação às concentrações de atividade, dadas em Bq/g, dos radionuclídeos presentes nos embalados contendo rejeitos. Por meio de medidas externas ao embalados é possível medir as concentrações de atividade dos radionuclídeos emissores de raios-gama (TADDEI, 2012)

Não só para deposição final, mas também na resposta a um acidente, existe a necessidade do desenvolvimento de um método simples, rápido e confiável para detecção de radionuclídeos presentes em embalados, principalmente os que não emitem raios-gama que são impossíveis de serem medidos por de instrumentação externa (DAI; KRAMER-TREMBLAY, 2014).

A maioria dos radionuclídeos de meia-vida longa mais importantes são de difícil medição (RDM), considerando ensaios não-destrutivos e medidas externas aos embalados, o principal motivo é a baixa energia das emissões beta ou alfa e, consequentemente, baixo poder de penetração. A identificação destes RDM requer um grande número de amostragem dos rejeitos, além de complexas marchas analíticas para separação dos radionuclídeos de interesse. Esses métodos não são práticos para serem aplicados em grande escala (IAEA, 2009).

Um método amplamente usado para determinação de RDM é o fator de escala, que consiste em desenvolver uma correlação entre radionuclídeos de fácil medição (gama emissores, como ⁶⁰Co ou ¹³⁷Cs) e RDM. Os gamas emissores são medidos por instrumentação externa e pelo fator de escala previamente estabelecido são extrapoladas as atividades dos RDM. Esse método vem sendo aplicado desde 1983 para caracterização isotópica de RBMN provenientes de reatores nucleares.

Na figura 12, é demonstrado um fluxograma básico para aplicação da técnica de fator de escala (IAEA, 2009).

PASSO 1

- Estudo básico dos fatores

- Desenvolvimentos de um programa de amostragem

PASSO 2

- Amostragem e análises

PASSO 3

- Observação e avaliação dos dados das atividades dos radionuclídeos

- Avaliar a aplicabilidade do método de fator de escala

- Classificar os fatores de escala para availiação

PASSO 4

- Determinação dos Fatores de Escala

- Determinação da atividade dos RDM

Figura 12. Fluxograma simplificado para determinação dos fatores de escala (IAEA, 2009).

Atualmente o Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares em conjunto com a Eletronuclear estão desenvolvendo um projeto para determinar empiricamente os fatores de escala nos rejeitos radioativos gerados nas usinas nucleares brasileiras. Em sua tese de doutorado, Taddei, (2013), aplicou a técnica do fator de escala para determinar as correlações entre gama emissores e RDM para os principais rejeitos de baixa e média atividades do reator nuclear de pesquisa IEA-

R1. A figura 13 mostra a sequência utilizada para estimativa dos radionuclídeos em rejeitos radioativos, que é semelhante as práticas adotadas mundialmente.



Figura 13. sequência utilizada para estimativa dos radionuclídeos em rejeitos radioativos (TADDEI, 2013).

3.9 Métodos de imobilização de rejeitos radioativos

A norma CNEN NN 6.09 (2002), estabelece que rejeitos líquidos (incluindo concentrado do evaporador) e resinas de troca iônica do sistema primário devem ser incorporados em matriz, formando um produto monolítico.

Imobilização de rejeitos radioativos é uma prática adotada pela indústria nuclear desde a década de 50 e ainda é amplamente utilizada. A imobilização ou solidificação resulta em mudanças nas propriedades físicas dos rejeitos de forma que o produto final forme uma massa monolítica de boa resistência mecânica e praticamente isenta de líquidos livres, proporcionando maior segurança no manuseio, transporte e deposição final. O produto final também deve ter baixas taxas de lixiviação, ou seja, baixa de dissolução do material radioativo meio aquoso (BATCHELOR, 2006).

Quando o objetivo é a deposição final, a imobilização de rejeitos deve ser um processo irreversível, desta forma evitando a liberação de radionuclídeos da matriz durante o tempo de armazenamento. Um dos principais critérios de avaliação de um método de imobilização, do ponto

de vista da deposição final é a taxa de lixiviação, ou seja, quanto menor a solubilidade da matriz menor será a liberação de radionuclídeos ao ambiente (OJOVAN, 2005).

Segundo a Norma CNEN NN 8.01 (CNEN, 2014): "deve ser assegurada a minimização do volume e da atividade dos rejeitos radioativos gerados na operação de uma instalação nuclear, instalação radiativa, instalação mínero-industrial ou depósito de rejeitos radioativos". Ou seja, na escolha do método de tratamento, as usinas nucleares devem levar em consideração, dentre outros aspectos, um processo que proporcione a maior redução possível no volume do produto final e que garanta o atendimento aos critérios de deposição estabelecidos pelo órgão regulador. Neste trabalho, foram selecionados os seguintes métodos como objeto de estudo: cimentação, betuminização e Secagem Direta em Tambor.

O critério de escolha da cimentação e betuminização foi o fato destas técnicas já serem aplicadas em usinas brasileiras, Angra 1 e 2 respectivamente, possibilitando comparar as tecnologias utilizadas com uma técnica inovadora.

A Secagem Direta em Tambor foi escolhida pois, além de se tratar de uma tecnologia inovadora, também é considerada de fácil operação, produzindo um produto final de baixo volume que atende aos critérios de deposição em alguns países, como Espanha e Alemanha (IAEA, 2006).

3.9.1 Cimentação

Cimentos são compostos inorgânicos que têm a capacidade de reagir com água em condições ambientes para formar um produto de alta dureza e resistente à água. Os cimentos mais comuns usados para imobilização de rejeitos radioativos são a base de silicatos de cálcio, como os cimentos tipo Portland (OJOVAN, 2005).

Apesar de ser uma técnica utilizada há mais de 60 anos, o entendimento dos mecanismos de imobilização de rejeitos utilizando cimentos é complicado devido as diversas alternativas de cimentos, bem como da natureza dos radionuclídeos e dos compostos inativos do rejeito. Basicamente, a química envolvida nos componentes presentes no rejeito, seja concentrado do evaporador ou resinas do primário, deve ser levada em consideração para a escolha da matriz mais adequada (KOTÁTKOVÁ, 2017).

Cimentos utilizados para imobilização de rejeitos tem uma quantidade significativa de cimento Portland em sua composição, que é um dos tipos de cimento mais comuns e é refinado há muitas décadas. Apesar de anos de experiência, ainda existe espaço para otimizações relevantes para imobilização de rejeitos radioativos, tais como (ATKINS; GLASSER, 1992):

- Controle do teor de orgânicos: orgânicos podem formar complexos ou até mesmo solubilizar alguns radionuclídeos.
- Baixo calor liberado durante hidratação: como consequência da liberação de calor durante a hidratação pode elevar, excessivamente, a temperatura do monólito, resultando na alteração das suas microestruturas, causando fissuras devido a dilatação térmica.
- Boa fluidez: o cimento deve penetrar em pequenos espaços presentes no rejeito a ser imobilizado, desta forma uma boa fluidez é necessária para minimizar a formação de espaços vazios na matriz.
- Tolerância a ambientes agressivos: Cimentos podem ter que imobilizar materiais ricos em sais, como, por exemplo, boratos provenientes do refrigerante do primário. Também devem ser resistentes à exposição a radiação durante longos períodos.

3.9.1.1 Tipos de Cimento

Na prática, usuários deste tipo de processo optam por usar cimentos disponíveis no seu país de origem como forma de obter o menor custo possível. O cimento escolhido deve passar por testes garantindo o atendimento que os critérios de aceitação serão atingidos após a solidificação dos rejeitos. Diversos tipos de cimento já foram testados e estão em uso em diferentes países como: cimento Portland, cimento Portland sintético, cimento especial de alta resistência e cimento de escória (GESSER et al., 2000).

3.9.1.2 Química do Cimento

Cimento Portland é um cimento hidráulico produzido pela pulverização do clínquer, consiste basicamente em silicatos de cálcio com adição de sulfato de cálcio (gesso). Os clínqueres são produzidos pelo aquecimento de materiais argilosos com cal a altas temperaturas (> 1500 °C) para formar nódulos de 5 a 25 mm de diâmetro. A abundância dos materiais envolvidos na produção torna o cimento Portland um dos produtos de menor custo para mobilização de rejeitos (OJOVAN, 2005).

Na tabela 6, é mostrado a composição química do cimento Portland (ATKINS; GLASSER, 1992):

Óxido	m/m %
CaO	60-65
SiO ₂	21-24
Al _s O ₃	3-8
Fe ₂ O ₃	3-8
MgO	0-2
SO ₃	1-4

Tabela 6. Composição Química do cimento Portland (ATKINS; GLASSER, 1992).

Após a calcinação, o produto final possui seis fases minerais. As composições aproximadas são listadas na tabela 7. É importante ressaltar que algumas especificações nacionais permitem adição de cinzas e escória e, ainda assim, atendem os pré-requisitos legais de classificação do cimento Portland. Isso é explicado pois o que define a classificação como "Portland" é a composição química e não a composição de fases (ATKINS; GLASSER, 1992).

Fase	Nome	Notação	m/m % (aproximado)
Ca₃SiO₃	Silicato tricálcico	C₃S	60
Ca_2SiO_4	Silicato dicálcico	C ₂ S	20
Ca ₃ Al2O ₆	Aluminato tricálcico	C ₃ A	5-8
Ca₂(Al,Fe)2O₅	Aluminoferrito tetracálcico	C ₄ AF	4-8
CaSO ₄ .2H ₂ O	Sulfato de cálcio hidratado	-	2-4
Escória, cinzas		-	*

Tabela 7. Fases minerais formadas na produção do cimento (ATKINS; GLASSER, 1992).

*Alguns códigos nacionais permitem adição de 5 a 10%.

Comercialmente cimentos Portland são divididos em cinco tipos (OJOVAN, 2005):

- Tipo 1: é o mais comumente utilizado quando propriedades especiais dos outros tipos não são requeridas, como, por exemplo, resistência a ataque de sulfato ou baixo calor gerado na fase de hidratação.

- Tipo 2: cimento Portland modificado com níveis de C3S e C3A reduzidos, devido a baixa taxa de hidratação, menor que o tipo 1, a liberação de calor nesta fase também é mais lenta. A resistência a ataques de sulfato também é maior que o tipo 1, desta forma são recomendados para uso quando o rejeito possui concentrações moderadas de sulfato.

- Tipo 3: alta resistência inicial com alto C3S e baixo teor de C2S. Por adquirir resistência rapidamente, também produz altas taxas de calor, o que pode impedir o uso do tipo 3 para imobilização de grandes volumes de rejeitos, formando grandes monólitos.

- Tipo 4: possui baixa liberação de calor devido aos baixos teores de C3S e C3A e, consequentemente, alto teor de C2S, podendo ser utilizado para imobilização de grandes volumes de rejeitos, formando grandes monólitos, como, por exemplo, em um embalado tipo container.

 - Tipo 5: é um cimento resistente a sulfato devido ao baixo teor de aluminato tricálcico. É utilizado para formação de monólitos que ficaram expostos a ambientes com concentrações significativas de sulfato.

Os cimentos Portland tipos 1, 2 e 3 são normalmente utilizados para imobilização de rejeito radioativo. Embora o tipo 2 tenha melhor performance para ataque proveniente de sulfato, todos os 3 tipos apresentaram bons resultados na solidificação de soluções de sulfato de sódio. Rejeitos líquidos contendo ácido bórico necessitam ter o pH ajustado entre 8-12, isto é feito pela adição de agentes alcalinizantes, como, por exemplo, hidróxido de sódio. O tipo 3 é o mais utilizado para imobilização desse tipo de rejeito líquido pois o seu baixo tempo de cura compensa o efeito retardante induzido pelo ácido bórico (OJOVAN, 2005).

Apesar das diversas composições de cimento Portland estarem consolidadas na indústria nuclear, outras alternativas vêm surgindo com o passar dos anos, uma delas é o sulfoaluminato de cálcio (CSA), que foi desenvolvido para minimizar a corrosão causada pela alta alcalinidade dos cimentos Portland em metais reativos, como magnésio e alumínio, encontrados em alguns tipos de rejeitos. Durante o processo corrosivo ocorre a formação de hidrogênio, produzindo produtos de corrosão expansivos. Devido a diferenças na química da hidratação e baixo pH comparado ao cimento Portland, o Cimento CSA permite a imobilização de rejeitos contendo esses tipos de metais com baixa reatividade. O principal produto formado na fase de hidratação, etringita, pode

incorporar um bom número de íons dentro de seus cristais, tornando um composto ideal para imobilização de rejeitos (ZHOU et. Al., 2006).

3.9.1.3 Cimentação de Concentrado do Evaporador

Como descrito nas seções anteriores, rejeitos provenientes do concentrado do evaporador normalmente possuem altas concentrações de boro (acima de 20.000 ppm). Os boratos predominantes nas correntes de rejeitos são compostos, na maior parte, por ácido bórico e metaborato de sódio, também contém pequenas partes de nitrato de sódio e fosfato de sódio (IAEA, 1996).

Boratos reagem com os compostos de cálcio presentes no cimento Portland, resultando na formação de boratos de cálcio, que por meio de fenômenos físico-químicos retardam o tempo de cura do monólito formado e diminuem a resistência à compressão conforme se aumenta a concentração de boro. A interação entre compostos borados e os diversos tipos de cimentos utilizados para imobilização de rejeitos é bastante complexa e ainda requer maiores esclarecimentos e evidências experimentais. Devido a este efeito retardante do boro, é necessário aumentar a relação cimento / rejeito para atender aos critérios de aceitação (SUN; WANG, 2010).

A característica predominante dos concentrados contendo altos teores de ácido bórico é o baixo valor de pH, tornando impossível atender os requisitos de processo e de deposição sem adição de alcalinizantes para neutralizar os ácidos formados pelos compostos de boro. Sem adição de aditivos alcalinizantes, como NaOH e Ca(OH)₂, o tempo de cura do cimento seria em torno de 14 a 56 dias. Além de apresentar baixa fixação dos radionuclídeos na matriz e do aumento do custo operacional, o uso de alcalinizantes aumenta o volume do produto final em 1,5 a 3 vezes. Embora no caso de concentrado do evaporador, os aditivos alcalinizantes representem valores significativos, outros aditivos químicos são necessários e amplamente utilizados para controlar as propriedades estruturais da matriz contendo os rejeitos radioativos (SUN; WANG, 2010).

Como forma de reduzir quantidade de aditivos, principalmente alcalinos, Gorbunova (2015) propôs uma metodologia na qual se utiliza campos eletromagnéticos que tem como principal característica a alteração do pH das soluções contendo sais de boro, devido a dissociação das ligações de hidrogênio, sem alterar os critérios de aceitação para deposição final. Por meio dessa técnica, é possível aumentar significativamente o teor de sólidos totais no produto final.

Além de sais boro, o concentrado do evaporador é composto por diversos outros sais como cloreto, sulfato, fosfato, entre outros, que afetam, significantemente, a taxa de hidratação do cimento e / ou reduzem a qualidade do produto final. A ação destes sais, em diferentes concentrações variadas, simultaneamente, foi investigada na imobilização de CE em cimento. Os resultados deste estudo, relevantes ao processo e ao atendimento aos critérios de aceitação, podem ser observados na tabela 8 (COUMES; COURTOIS, 2003)

Tabela 8. Principais propriedades das formulações investigadas

Rápida liberação de calor (Tmáx > 80 ° C) na Tempo final de cura foi sempre superior a 5 horas e excedeu 24 horas em amostras com fase de hidratação do cimento para amostras boro ([B]>0,8 g/l) e fosfato em médias com baixo teor de fosfato (< 10 g/l) e médias concentrações ($6 < [PO_4^{3-}] < 24 \text{ g/l}$) ou altas concentrações de sulfato (> 15 g/l) Endurecimento precoce da massa Alta resistência à compressão de amostras para amostras com baixo ou médio teor de fosfato solidificadas após 90 dias de cura úmida a 20 $([PO_4^{3-}] < 25 g/l)$ e médio ou altas °C concentrações de sulfato ($[SO_4] > 10 \text{ g/l}$) ou Sem trincas no rejeito solidificado após 90 dias altas concentrações de boratos e cloretos ([B] de cura úmida a 20 ° C ~ 3 g/l, $[Cl^-] > 15$ g/l) Ausência de "sangramento" (quando a água, livre da mistura, está presente na superfície devido a precipitação de partículas pesadas presentes no cimento)

3.9.1.4 Cimentação de Resina do Primário

A principal vantagem de utilizar a cimentação como processo de solidificação de resinas primário é o fato de poder trabalhar em baixas temperaturas, diferente de outros processos já consolidados como, por exemplo, incineração, betuminização e vitrificação. Como desvantagem, tem-se o baixo teor de incorporação na matriz. Os estudos atuais buscam diferentes tipos de cimentos onde seja possível aumentar a incorporação, reduzir as taxas de lixiviação, aumentar a resistência à compressão da matriz e controlar o calor liberado durante a fase de hidratação (LI; WANG, 2006).

Um novo tipo de cimento com adição de zeólita vem sendo estudado na China como uma forma de aumentar a incorporação para até 42% em massa de resina na matriz. A principal vantagem dessa nova técnica é a boa capacidade de fixação das resinas na matriz e redução nas taxas de lixiviação comparadas a outros tipos de cimentos já utilizados. Porém, o alto calor liberado na fase de hidratação ainda necessita ser controlado para completo domínio da técnica (LI; WANG, 2006).

3.9.1.5 Tecnologia da Cimentação

O sistema MOSS é utilizado na usina nuclear de Borssele na Holanda, conforme mostrado nas figuras 14 e 15, este sistema é composto por módulos e controlado remotamente. Utiliza a técnica do "misturador de sacrifício", onde o misturador é produzido por um material de baixo custo e descartado no próprio embalado. Pode ser utilizado para imobilização de vários tipos de rejeitos, como resinas do primário, lamas contaminadas e concentrados do evaporador. É composto por balança de precisão para garantir a mistura correta da massa, que é adicionada em tambores de 200 ou 400 litros. Também é composto por um sistema de exaustão com filtragem acoplada com o objetivo de evitar o espalhamento de aerossóis (GESSER ET AL, 2000).



Figura 14. Diagrama simplificado do sistema MOSS (GESSER, 2000)



Figura 15. Foto do sistema MOSS 200 na usina nuclear de Borssele na Holanda (GESSER, 2000).

A versatilidade deste sistema permite uma combinação de diferentes tipos de cimentos e aditivos, como é utilizado em diferentes países. Geralmente, as composições das misturas são definidas de acordo com os critérios de aceitação de cada país e, consequentemente, influenciando no volume final produzido (GESSER, 2000).

3.9.1.6 Grau de Incorporação

A minimização de rejeitos está diretamente relacionada ao grau de incorporação do rejeito radioativo à matriz, ou seja, quanto maior o grau de incorporação menor será a quantidade do produto final gerado. Abaixo são apresentados alguns exemplos de incorporação de rejeito em cimento no mundo:

Imobilização de Concentrado do Evaporador:

- Em usinas espanholas, foram incorporados em média de 140 a 150 litros de concentrado em um tambor de 200 litros. Não foram disponibilizadas informações sobre as características físicoquímicas do concentrado (BENAVIDES, 2001); Na usina de Krsko, na Eslovênia, incorporava-se 110 litros de concentrado em tambores de 200 litros (KROSELJ, 2006);

- Na Rússia, 1 m³ de concentrado do evaporador, contendo 300 Kg/m³ de sais, produz um produto final de 1,5 vezes maior volume (LAVEROV, 2011).

Além do grau de incorporação, outros fatores afetam o volume de rejeito gerado após o tratamento, tais como: o tipo de cimento, concentração de sólidos totais e sais no rejeito líquido e o volume da embalagem utilizada.

Imobilização de Resina do Primário:

O teor máximo de resinas exauridas, incorporadas em cimento, é aproximadamente 20% em massa de resina seca. Essa limitação ocorre porque o aumento da incorporação resulta na diminuição da resistência à compressão a valores que não atendem ao critério de aceitação para deposição final (IAEA, 2002).

Valores maiores que 20% do teor de resinas incorporadas provocam baixa instabilidade do produto final, tornando-o frágil e suscetível ao aparecimento de trincas. A principal razão está na expansão das resinas após imobilização (LI; WANG, 2006).

A usina de Muhleberg na Suiça, adicionou ao sistema MOSS um módulo de pré-tratamento térmico que permitiu aumentar o grau de incorporação de 40 - 45 Kg para 60 - 65 Kg de resinas para cada tambor de 200 litros, mantendo-se a resistência à compressão em valores superiores a 10 Mpa (limite estabelecido para fins de deposição), conforme mostrado na figura 16 (GESSER et al., 2000).



Figura 16. Resistência à compressão x massa de resinas de troca iônica incorporadas em cimento (GESSER et al., 2000).

Cimentação de Concentrado do Evaporador e Resinas do Primário no Brasil

Conforme publicado no Relatório Nacional do Brasil, (BRASIL, 2017), até 1998, Angra 1, que utiliza a tecnologia da cimentação, imobilizava concentrado do evaporador e resinas do primário em tambores de 200 litros, porém, como a mistura não ficava homogênea, o processo de imobilização foi considerado impróprio por não estar de acordo com os critérios estabelecidos pela CNEN. Como forma de atender a esses critérios, o sistema foi modificado e, além de produzir um produto mais homogêneo, passou a utilizar embalagens denominadas de liners, que contêm uma blindagem externa proporcionando, dessa forma, significativa redução de dose aos trabalhadores durante o processo de imobilização.

A desvantagem desses tipos de embalagens é que a blindagem externa aumenta o volume do embalado e, consequentemente, reduz espaço nos depósitos finais e iniciais. Para realizar a comparação do volume de rejeito gerado entre os métodos de imobilização selecionados nesse trabalho, de forma mais próxima possível a realidade brasileira, foi feita uma pesquisa em uma usina que utiliza embalagens semelhantes para imobilização de rejeito em cimento, obtendo-se os seguintes resultados: Embalagem com blindagem externa para armazenamento de concentrado:

Volume total: 1,5 m³

Volume útil: 0,92 m³

Volume de Concentrado: 0,554 m³

Volume de Cimento: 0,366 m³

Embalagem com blindagem externa para armazenamento de resinas do primário:

Volume total: 1,5 m³

Volume útil: 0,47 m³

Volume de resinas: 0,195 m³

Volume de cimento: 0,275 m³

Apesar de terem o mesmo volume, as embalagens utilizadas para acondicionamento de resinas possuem maior blindagem devido as altas taxas de dose, portanto o volume útil é menor comparado a embalagem para acondicionamento de concentrado.

3.9.1.7 Critérios de Aceitação

No trabalho publicado por Coumes e Courtois (2002) são definidos alguns critérios de aceitação utilizados para depósitos próximos à superfície. Na tabela 7 são mostrados estes critérios:

Tempo de cura	O tempo de cura deve ser maior que 5 horas		
	para evitar endurecimento durante a mistura e		
	menor que 24 horas para permitir um bom		
	fluxo de saída da unidade de encapsulamento.		
Fluidez após a mistura	Rejeito cimentado deve ter uma baixa		
	viscosidade após a mistura, de modo a permitir		
	fácil esvaziamento do tambor e deste modo		
	minimizar o volume de água de lavagem (caso		
	específico do processo escolhido como objeto		
	de estudo).		
Sangramento	O material não deve exibir nenhum		
	"sangramento" (quando a água, livre da		
	mistura, está presente na superfície devido a		
	precipitação de partículas pesadas presentes no		
	cimento).		
Aumento da temperatura da massa durante	O aumento na temperatura resultante da		
hidratação	hidratação do cimento não deve afetar a		
	integridade do embalado.		
Resistência à compressão	A resistência à compressão, após 90 dias de		
	cura, abaixo da água a 20 °C, deve exceder 8		
	MPa.		
Estabilidade dimensional	Qualquer expansão que possa causar danos a		
	matriz ou ao embalado deve ser impedida.		

Como forma de analisar a performance a longo prazo de rejeitos radioativos imobilizados em matrizes de cimento, um experimento, iniciado em 1965, produziu 73 amostras de blocos de cimento com um volume de 0,027 m³, utilizando cimento tipo Portland padrão e soluções simuladas contendo uma atividade específica de 4E+5 a 1,8E+6 Bq/L. Os blocos de cimento foram

dispostos em um repositório de superfície, conforme esquema mostrado na figura 17 (VARLAKOVA; OJOVAN, 2006).



Figura 17. Esquema de um repositório de superfície. 1 - blocos de cimento; 2 - camada de areia; 3 - bandejas de aço; 4 - camada de gramínea; 5 - camada de argila; (VARLAKOVA; OJOVAN, 2006).

O local onde este repositório foi instalado estava sujeito a variações de temperatura de – 5,77 °C a 18,52 ° C e precipitações atmosféricas entre 90 e 175 mm em média. Em 2004, o repositório foi aberto para realização de análises nas amostras e solo. Como resultado desse teste, após 39 anos, os blocos de cimento estavam em boas condições e o cimento reteve os radionuclídeos presentes nas amostras originais, confirmando dessa maneira a confiabilidade da cimentação como opção para imobilização de rejeitos de baixa e média atividades e deposição em depósitos de superfície (VARLAKOVA; OJOVAN, 2006).

3.9.2 Betuminização

Com o objetivo de aumentar o grau de incorporação e mantendo baixas as taxas de lixiviação, uma série de estudos utilizando betume como matriz iniciou-se na década de 1960 em Marcoule, na França, como uma alternativa a cimentação. Posteriormente, novas pesquisas surgiram em Karlsruhe na Alemanha Ocidental e no Eurochemic, na Bélgica. Todos esses estudos basearam-se no desenvolvimento da tecnologia utilizada no processo e na caracterização do produto final de rejeito, de modo a garantir sua compatibilidade com os repositórios finais (GUZELLA, 2010).

Como resultado desses estudos, constatou-se que a betuminização é uma técnica que poderia ser empregada no acondicionamento de rejeitos de baixa e média atividades, garantindo um produto final mecânica, física, química e radiologicamente estável para todas as etapas do gerenciamento desses tipos de rejeitos (IAEA, 1993).

Em 1964, a primeira planta em escala industrial foi colocada em operação na Bélgica. Desde então, a betuminização tem sido amplamente utilizada em outros países como França, Alemanha, Finlândia e outros. Após 35, anos de operação mais de 200.000 m³ de rejeito radioativo líquido foram processados em usinas nucleares no mundo (ZAKHAROVA e MASANOV, 2000).

Na tabela 10, estão descritos alguns países que utilizam o processo de betuminização para imobilização de rejeitos radioativos.

País	Sistema de tratamento	Tipo de rejeito	Observações	
Alemanha	Extrusor-evaporador	Vários, incluindo rejeitos de usina		
Bélgica	Extrusor-evaporador e batelada	Rejeitos de usina	Incorporação de 30 - 40%. Aquecimento elétrico.	
Brasil	Extrusor-evaporador	Rejeitos de usina (concentrados e resinas)	Usina Nuclear de Angra 2.	
Canadá	Evaporador de filme	Lamas e resinas		
Coreia	Evaporador de filme		Sistema Piloto	
Eslováquia	Evaporador de filme	Rejeitos de usina	Processo contínuo em batelada.	
Finlândia	Misturador	Rejeitos de usina		
França	Extrusor-evaporador e evaporador de filme	Lamas e rejeitos de reprocessamento	35 - 45% de incorporação.	
Índia	Evaporador de filme	Rejeitos de usina		
Japão	Extrusor-evaporador, misturador e evaporador de filme	Lamas e rejeitos de reprocessamento	6 usinas nucleares.	
Suécia	Evaporador de filme	Rejeitos de usina (concentrados e resinas)	15 - 57% de incorporação em betumes destilados	
Suiça	Extrusor-evaporador	Rejeitos de usina (concentrados e resinas)	Incorporação de 15 - 33%.	
			29 anos de operação contínua na Usina de Goesgen.	

Tabela 10. Betuminização no mundo (GUZELLA, 2010)

No Brasil, o Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN/CNEN publicou os primeiros trabalhos relacionados a incorporação de rejeitos em betume em escala de laboratório. Em escala industrial, somente a usina nuclear de Angra 2 imobiliza rejeitos utilizando betume. Após um trabalho de pesquisa e desenvolvimento em parceria com o Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear – CDTN/CNEN, foram realizadas diversas pesquisas destacando-se a busca de betume nacional visando redução de custos, ensaios de caracterização dos produtos de rejeito com objetivo de garantir o atendimento aos critérios de aceitação e a otimização dos parâmetros de processo, buscando a melhoria contínua (GUZELLA, 2010).

3.9.2.1 Tipos de Betume

Betume é um termo genérico utilizado para descrever uma gama de compostos orgânicos de alto peso molecular. Materiais betuminosos têm sido utilizados pela indústria há muitos anos, existindo evidências da utilização de betume em construção em 3800 AC, devido as suas propriedades adesivas e hidrofóbicas. (OJOVAN, 2005).

Betume é a mistura de hidrocarbonetos pesados, que podem ser obtidos por ocorrência natural ou por diferentes processos físicos ou químicos, como a separação das frações leves do petróleo por destilação, sendo solúveis em bissulfeto de carbono (IBP, 1978).

Apesar da sua ocorrência natural, os betumes disponíveis no mercado são praticamente produzidos por meio de óleo asfáltico, após a separação de frações leves. De acordo com o modo de preparação, os betumes utilizados na imobilização de rejeitos radioativos podem ser subdivididos nos seguintes tipos (IAEA, 1993):

- Betume destilado: obtido como produto de fundo em torres de destilação após a destilação de óleos crus;

Betume soprado ou oxidado: obtido por meio de injeção de ar em betume, em temperaturas entre
200 e 260 °C;

- Betume liquefeito ou emulsificado: obtido pela adição de soluções aniônica (sabões alcalinos), catiônica (sais de amina) ou não-iônica (emulsificantes) ao betume destilado;

- Betume de craqueamento: produzido pela quebra das frações mais pesadas obtidas durante o refino;

Na tabela 11, é mostrada as aplicações de diferentes tipos de betume para imobilização de rejeitos radioativos (OJOVAN, 2005):

Tipo de Betume	Aplicação
Betume destilado	Batelada, Evaporador de filme
Betume oxidado	Batelada, Extrusor, Evaporador de filme
Betume de Craqueamento	Extrusor
Betume emulsionado	Evaporador de filme

Tabela 11. Aplicações de diferentes tipos de betume (OJOVAN, 2005).

Como os betumes são uma mistura de hidrocarbonetos alifáticos e aromáticos, eles podem facilmente estar sujeitos à radiólise que acarreta na produção de gases (H2, CH4, CO2) dependendo do tipo de betume, taxa de dose e taxa de dose absorvida. Alguns estudos produzidos no Reino Unido e na França comprovaram que o betume oxidado é mais resistente a radiação (2,8 x 108 Gy) que o betume destilado (2 x 106 Gy); portanto, para rejeitos radioativos que apresentam níveis de radiação absorvida acima de 106 Gy, é recomendado a utilização de betume oxidado (IAEA, 1993).

3.9.2.2 Propriedades Físico-Químicas do Betume

A principal característica do betume é sua propriedade termoplástica, ou seja, funde quando aquecido e solidifica à temperatura ambiente. Desde que aquecido, pode ter sua forma alterada repetidas vezes; se puro, pode ser reciclado. Parcialmente cristalino ou totalmente amorfo, insolúveis em água, possui alta plasticidade, quimicamente inerte, com alto grau de incorporação de rejeitos e boa resistência à lixiviação (GUZELLA, 2010).

Possui uma estrutura molecular complexa, onde os principais tipos de hidrocarbonetos em materiais betuminosos são classificados como asfaltenos, aromáticos de alto peso molecular, e maltenos, substâncias de alto ponto de ebulição, contendo resinas e óleos (hidrocarbonetos alifáticos) (IAEA, 1993).

As propriedades do betume variam de acordo com a taxa dos componentes (OJOVAN, 2005):

- Propriedade visco-elástica à temperatura ambiente (10 - 40 °C) são concedidas pela presença de frações de alto peso molecular, como os asfaltenos;

- Viscosidade de betumes são complexas e afetadas por mudanças na sua natureza coloidal que ocorrem com o aquecimento, porém, quando as temperaturas são altas o suficiente para o betume estar no estado líquido, ele se comporta como um fluido newtoniano;

As propriedades mais importantes, tanto para o betume quanto para a caracterização do produto final, são penetração, ponto de amolecimento, ponto de fulgor, determinação do teor de água e taxa de lixiviação e análise termodiferencial (determina o risco de ocorrência de reações exotérmicas descontroladas e deve ser realizado no rejeito e no produto final). No Brasil, no processo de incorporação da usina de Angra 2, é utilizado o betume oxidado. Suas especificações são descritas na tabela 12.

Ensaio	Especificação (DIN 1995)
Ponto de amolecimento (°C)	67 -72
Penetração (1/10) mm	10 -20
Teor de cinzas (%)	max. 0,5
Ponto de fulgor ⁽¹⁾ (°C)	min. 290
Densidade a 25 °C (g.cm ⁻³)	1,03 - 1,06
Ductibilidade a 25 °C (cm)	min. 5
Perda por aquecimento (%) 163 °C/ 5h	max. 1
Viscosidade ⁽¹⁾ (cSt)	1.580

Tabela 12. Especificações do betume para incorporação de rejeitos radioativos em Angra 2 (GUZELLA,2010).

⁽¹⁾ Características adicionais especificadas pela ELETRONUCLEAR

Ao especificar o betume a ser utilizado como matriz de rejeitos radioativos, devem ser considerados os seguintes aspectos (IAEA, 1993):

- (a) Armazenamento e transferência do betume no estado líquido;
- (b) Parâmetros de processo;
- (c) Compatibilidade com o material a ser incapsulado;
- (d) Embalagem requerida para o produto final de rejeito;
- (e) Condições de estocagem e transporte do embalado;
- (f) Deposição final;

3.9.2.3 Tecnologia da Betuminização

Existem diferentes técnicas de imobilização que utilizam betume como matriz. Independentes da técnica, o produto final deve ser produzido de forma a atender os critérios de deposição final. Tomando-se como base a Norma CNEN NN 6.09 (CNEN, 2002), as principais características são:

- Estabilidade estrutural;
- Resistência à compressão e tração;
- Baixa permeabilidade e lixiviação;

Em linhas gerais, a betuminização consiste em incorporar o rejeito líquido ou sólido ao betume ainda no estado líquido e, após o resfriamento e consequente solidificação do betume, considera-se o rejeito fisicamente imobilizado. Esses processos podem ser contínuos (extrusão ou evaporador de filme) ou em batelada (OJOVAN, 2005).

3.9.2.4 Processo em Batelada

É aplicável a rejeitos sólidos e líquidos. No caso de rejeitos sólidos, é realizado uma secagem prévia e uma quantidade pré-determinada, pelo grau de incorporação requerido, é introduzida em um tanque contendo o betume fundido. Os dois componentes são misturados até total homogeneização do produto final e subsequente transferência para embalado para resfriamento e solidificação. Nesses sistemas, é possível produzir de 2 a 5 tambores de 210 litros por dia, sendo um tambor a cada batelada (IAEA, 1993).

O rejeito líquido é introduzido em um volume conhecido de betume a temperaturas de aproximadamente 200 °C. O tanque de mistura é mantido aquecido externamente para manter a fluidez do betume. A água é evaporada e os sólidos residuais são misturados a ele. A quantidade de rejeito a ser adicionada é determinada previamente pela caracterização do rejeito líquido, principalmente, determinação de sólidos totais, de forma que o grau de incorporação requerido seja atingido. Quando o rejeito é totalmente adicionado a massa de betume e toda água é evaporada, o produto homogêneo é descarregado em tambores para resfriamento e solidificação (OJOVAN, 2005).

3.9.2.5 Extrusão

São aplicados a vários tipos de rejeitos sólidos e líquidos, como concentrado do evaporador e resinas de troca iônica do sistema primário. É utilizado para tratar grandes volumes de efluentes ou rejeitos de baixa e média atividades contendo grandes quantidades de sais (GUZELLA, 2010).

Nesse processo, o rejeito é alimentado em um parafuso extrusor em conjunto com o betume, a temperaturas entre 130 e 200 °C. Durante a passagem no parafuso extrusor aquecido, o betume e o rejeito são misturados e a água é evaporada, simultaneamente, nos domos do extrusor. O destilado é tratado para posterior liberação (OJOVAN, 2005).

O produto final é descarregado em tambores para resfriamento e solidificação. Um processo típico de extrusão é mostrado na figura 18.



Figura 18. Processo típico de extrusão utilizado na betuminização de rejeitos radioativos (AIEA, 1993).

3.9.2.6 Evaporador de Filme

Assim como o extrusor pode ser utilizado para imobilização de concentrados do evaporador e resinas do sistema primário de usinas nucleares, o rejeito pré-aquecido e betume são alimentados separadamente pelo topo do evaporador rotativo vertical. A água é evaporada permanecendo somente os sólidos incorporados ao betume. O vapor é coletado e condensado para posterior tratamento. Um sistema de pás rotatórias na parede interna do evaporador rotativo garante a homogeneidade do produto final, que é descarregado em embalagens para posterior resfriamento e solidificação. Na figura 19, é apresentado um esquema de um evaporador rotativo (IAEA, 1993).



Figura 19. Esquema de um evaporador de filme rotativo (IAEA, 1993).

3.9.2.7 Acidentes e Aspectos Relacionados à Segurança

Uma das grandes desvantagens do uso do betume como matriz de rejeito é a sua inflamabilidade e a possibilidade de que, em contato com determinados componentes a altas temperaturas, provoque reações exotérmicas indesejadas. Por questões de segurança, deve-se limitar o teor no rejeito radioativo de algumas substâncias capazes de oxidar o betume à temperatura de processo (aproximadamente 200 °C), como, por exemplo, nitratos de metais trivalentes (ZAKHAROVA; MASANOV, 1999).

Rejeitos concentrados de plantas de reprocessamento, particularmente, aqueles que contêm nitratos ou compostos orgânicos voláteis, podem ser identificados como críticos. Também podem ser críticos rejeitos que contêm esses tipos de compostos que, mesmo em baixas concentrações, podem ser concentrados durante a evaporação no processo de imobilização (IAEA, 1993).

Por meio da caracterização do rejeito e do produto final, como a realização de análises termodiferenciais, é possível prever reações exotérmicas e, consequentemente, incompatibilidades entre rejeito e matriz.

Existem, na literatura, alguns acidentes ocorridos em processos de betuminização podendo destacar-se uma autoignição de tambores contendo produto de rejeito betuminizado na planta Eurokemik, na Bélgica (ZAKHAROVA; MASANOV, 1999). E o mais sério de todos, na planta de Tokai, no Japão, em 1997, onde um incêndio, seguido por uma explosão, ocorreu provocando um acidente grave (MIURA et al., 1998).

O que os dois acidentes tinham em comum era que ambos eram plantas de reprocessamento e que continham em seus concentrados altos teores de nitrato de sódio. Isto torna vital uma boa caracterização analítica, tanto do rejeito quanto do produto betuminizado, de maneira a prevenir tais acidentes.

Esses acidentes ocorridos durante o processo de betuminização são bem conhecidos pela indústria, ocasionando diversas alterações em procedimentos e processos, como análises químicas, controle de processos, sistemas de proteção contra incêndio, de maneira a eliminar ou prevenir os riscos. Com a experiência operacional disponível e a aderência a procedimentos, a ocorrência de incêndio durante uma campanha de betuminização torna-se extremamente baixa (IAEA, 1993).

3.9.2.8 Grau de incorporação

Conforme descrito na tabela 8, a experiência internacional mostra que o grau de incorporação do processo de betuminização pode atingir até 45% em massa de rejeito no produto betuminizado.

Em testes utilizando-se betume nacional, a incorporação, em até 40% (m/m) em tambores de 200 litros, tanto para resinas quanto para concentrado, garante o atendimento aos critérios de aceitação estabelecidos pela CNEN (GUZELLA, 2010).

Após resfriamento, fechamento, monitoração e identificação os embalados de rejeito estão prontos para as etapas subsequentes do gerenciamento de rejeitos: armazenamento, transporte e deposição. Devido a especificidade do betume, cada uma dessas etapas requer propriedades específicas do produto final. Na tabela 13, são descritas as propriedades do rejeito em grau de importância nas etapas descritas acima (GUZELLA, 2010).

Tabela 13. Propriedades mais importantes do produto final em diferentes fases da gerência de rejeitos GUZELLA,2010).

Propriedade	Processo de solidificação	Armazenamento intermediário	Transporte	Disposição
Teor de Sólidos	MI	I.	1	MI
Densidade	l l	-	l I	-
Efeito de Micro-organismos	-	-	-	MI
Ponto de Fulgor	MI	MI	MI	I.
Análise Termodiferencial	MI	I	l I	I
Homogeneidade	MI	I.	I.	MI
Lixiviação	-	I	l l	MI
Penetração	-	I	MI	I
Porosidade	-	I	l I	MI
Ponto de Amolecimento	MI	MI	MI	MI
Viscosidade	MI	I	-	I.
Teor de Água	I	I	l I	MI

MI: Muito Importante

I : Importante

- : Não importante

3.9.3 Secagem Direta em Tambor

A secagem direta em tambor é um processo no qual resinas de troca iônica exauridas ou concentrados do evaporado que, em linhas gerais, consiste na secagem desses rejeitos em único tambor. Essa técnica constitui-se em remover a água por meio de evaporação a vácuo, por meio do aquecimento da própria embalagem ao qual o rejeito será acondicionado. Ela pode ser feita de aço carbono, polietileno de alta densidade, aço inox, reforçado com fibra ou concreto (IAEA, 2002).

Por não utilizar matriz e não ser necessário nenhum tratamento químico ou físico posterior, os critérios de aceitação para deposição são requeridos pelas características da embalagem e da garantia de ausência de líquido livre no rejeito e, consequentemente, redução da possibilidade de corrosão da mesma. (OLDIGES, BLENSKI, 2003).

A grande vantagem dessa técnica está na redução significativa do volume de rejeitos comparadas a técnicas convencionais, como a cimentação. Uma comparação mostrando a geração de tambores utilizando-se a técnica de cimentação e secagem direta em cinco usinas espanholas é mostrada na figura 20 (BENAVIDES, 2001).



Figura 20. Comparação entre a geração de tambores utilizando-se a cimentação e a secagem direta em tambor em cinco usinas espanholas (BENAVIDES, 2001).

Essa redução só é possível por não serem utilizadas matrizes, além de não requererem nenhum tratamento químico ou físico posterior. Geralmente, os critérios de aceitação para deposição são estabelecidos pelas características da embalagem e da garantia de ausência de líquido livre no rejeito e, consequentemente, redução da possibilidade de corrosão das embalagens. (OLDIGES, BLENSKI, 2003).

Os processos de secagens podem ser utilizados para tratar e acondicionar rejeitos sólidos e líquidos, como concentrado do evaporador e resinas de troca iônica. E dependendo do projeto, essas plantas podem ser operadas a partir de estações móveis ou instaladas na própria planta geradora do rejeito, (VGB, 2012).

Segundo a empresa GNS, (2019), esse sistema está em operação em diversos países como Alemanha, Bélgica, Inglaterra, Rússia, China, Espanha e Eslovênia. Na figura 21, é mostrado o sistema móvel de secagem alemão PETRA fabricado pela empresa GNS.



Figura 21. Sistema móvel de secagem da empresa alemã GNS (VGB, 2002).

Concentrado do evaporador e lamas são os dois rejeitos líquidos mais significativos produzidos durante a operação de uma usina nuclear. Embora o teor de sólidos e sais variem, dependendo da origem do rejeito, a secagem desses rejeitos, ao invés de imobilização, reduz de forma significativa o volume do rejeito tratado. Se os teores de sais forem suficientes, o produto final seco formará um bloco monolítico, podendo ser um meio de encapsular outros sólidos como resinas do primário (VGB, 2012).

3.9.3.1 Descrição do Processo

Existem alguns processos diferentes, porém todos utilizam o mesmo princípio. Como exemplo, será mostrado o processo descrito por Benavides, (2001), utilizado em usinas espanholas para tratamento de concentrado do evaporador.

Essa planta, apesar de ser modular, foi concebida para ser utilizada como fixa e tratar a geração anual de concentrado do evaporador. De acordo com o volume de rejeito gerado, definese o número de circuitos de secagem. A planta em questão foi projetada com dois circuitos de secagem, tendo capacidade para tratar os rejeitos gerados em uma usina de 1000 Mwe. Na figura 22, é mostrado um esquema simplificado de um processo de secagem direta em tambor.



Figura 22. Esquema de um processo de secagem direta em tambor (BENAVIDES, 2001).

Essa planta é composta pelas seguintes seções:

1. Tanques de Concentrado

Esses tanques recebem os efluentes líquidos concentrados na coluna evaporadora.

2. Câmara de secagem

Nesse caso específico, duas câmaras de secagem operam em paralelo. Um tambor de 130 litros vazio e aberto é introduzido, remotamente, por meio de um trilho em cada câmara. Esse tambor é conectado ao processo por meio das conexões responsáveis por alimentação do rejeito,

saída do vapor, medição de vácuo e medição de nível. Na figura 23, é mostrado um exemplo dessas conexões.

Após vários testes para assegurar a estanqueidade, o rejeito é transferido do tanque de concentrado para o tambor por meio de vácuo.



Figura 23. Conexões do tambor ao sistema de secagem (WESTINGHOUSE, 2015)

3. Estação de fechamento do tambor

O tambor é fechado remotamente assim que o processo termina.

4. Vácuo e Condensador

Cada circuito possui seu sistema próprio de vácuo e condensação. O vácuo é produzido por meio de um ejetor de água gelada que é mantido em recirculação por um sistema fechado, a pressão de trabalho varia entre 40 e 60 mbar.

A fonte fria do condensador é água proveniente de sistema de refrigeração. Para melhorar a performance do processo, o condensador descarrega em um tanque pequeno para evitar a perda de vácuo.

5. Painel de Controle

O processo é totalmente automático, a partir do momento que um tambor vazio é posicionado na câmara de secagem. A maioria das variáveis de processo são registradas no software de controle.

Assim como o tratamento de concentrado do evaporador, os processos utilizados para secagem direta em tambor de resinas do primário são praticamente os mesmos. Para exemplificar,

será mostrado a secagem de resinas na usina de Krsko, na Eslovênia. Um esquema simplificado é

mostrado na figura 24, (VOLARIC; ZORKO, 1998).



Figura 24. Esquema simplificado do processo de secagem direta em tambor da usina de Krsko na Eslovenia, (VOLARIC; ZORKO, 1998).

Os componentes são instalados atrás de paredes (blindagem de concreto) e todo sistema é operado remotamente, podendo ser automático, semiautomático ou manual, além disso todo o processo é monitorado por câmeras.

A resina de troca iônica exaurida do sistema primário é transferida fluidizada por água do tanque de resina exaurida para o tanque de secagem de resina exaurida. Após entrar no tanque de secagem a água sai por um bocal interno ao tanque e a resina é retida por meio de um elemento filtrante especial. Após atingir o nível esperado de resina no tanque de secagem, o processo de transferência é interrompido e a água remanescente no tanque é drenada. Ele é aquecido por meio de um encamisamento com resistências elétricas e submetido a vácuo para facilitar a evaporação da água até que as resinas estejam secas conforme especificação. O condensado segue o mesmo destino que o processo de secagem de concentrado do evaporador, sendo direcionado a um tanque de armazenamento.

As resinas secas são descarregadas por gravidade em tambores de 200 litros, que, após cheios, são fechados remotamente e transferidos para um armazenamento inicial.

3.9.3.2 Critérios de Aceitação

Na Alemanha, o critério estabelecido para finalizar o processo e garantir que o rejeito foi acondicionado seco e está de acordo com as normas vigentes para fins de deposição final é a quantidade de condensado por hora (menos de 100 ml/h por tambor durante um tempo mínimo de cinco horas). Para plantas de pequeno, este critério não atenderia, pois a vazão de água gerada na evaporação é muito pequena. Para essas plantas, utiliza-se outro critério, também aceito pelo órgão regulador alemão, que é a umidade dentro do tambor, de forma que este valor não pode ser maior que 80% da umidade medida no ambiente da planta de secagem direta em tambor à 25 °C. Para declarar o processo finalizado, ainda deve-se garantir que o ponto de orvalho dentro do tambor seja menor que 8,5 °C (OLDIGES; BLENSKI, 2003).

3.11.3.3 Tipos de Embalagens

Como descrito anteriormente no processo de secagem direta em tambor, as embalagens são fundamentais para garantir a integridade do rejeito e, consequentemente, o material e o projeto de fabricação são fundamentais para aceitação nos repositórios. A seguir, serão descritas embalagens já aceitas em repositórios no mundo.

Blindagem Revestida de Concreto

Estes tambores são classificados como EI-2 (equivalente ao IP-2 no trato internacional), segundo Norma de Transporte Radioativos CNEN NE 5.01 (CNEN, 1988). Consiste em um casco cilíndrico revestido de aço na superfície interna e externa, o espaço entre ambas as superfícies é revestido com concreto. Dependendo do tipo de rejeito, a densidade do concreto pode variar, aumentando o coeficiente de atenuação da blindagem. O material seco (resina ou concentrado do evaporador) pode ser acondicionado em um tambor e adicionado a embalagem e os espaços vazios entre os dois cilindros são preenchidos com concreto. Na figura 25, é mostrado um esquema desta embalagem (GNS, 2019).

Este tipo de embalagem é aprovada no repositório de Konrad, na Alemanha (GNS, 2019).



Figura 25. Esquema de uma embalagem revestida de concreto (GNS, 2019).

Usinas espanholas (3 PWR e 1 BWR) utilizam embalagens semelhantes em seus processos de secagem. Porém, nesse caso um tambor de 130 litros (sem nenhum requisito especial, exceto ser resistente ao vácuo produzido no processo) é utilizado para secar os rejeitos e introduzido dentro de uma embalagem de 200 litros que é preenchida com 5 centímetros de concreto entre os dois tambores. Na figura 26, é mostrado um tambor utilizado no processo de secagem e um esquema da embalagem utilizada (BENAVIDES, 2001).



Figura 26. Embalagem utilizada no processo de secagem direta em usinas espanholas (BENAVIDES, 2001).

Essa embalagem é aceita para fins de deposição pela ENRESA (Empresa Nacional de Resíduos Radioativos, Sociedade Anônima), que é responsável pela seleção, projeto, construção e operação de repositórios intermediários e definitivos na Espanha.

A usina de Krsko realizou a secagem de rejeitos em tambores de 200 litros, sem nenhum tipo de blindagem, que não atende a nenhum critério de aceitação para fins de deposição final. Como solução para esse problema, o acondicionamento desses tambores nas embalagens descritas é vista como uma solução para o passivo criado (KROSELJ, JANKOVIC, 2006).

Atualmente, Krsko utiliza tambores de 200 litros contendo uma barreira biológica que resulta em um volume útil de 150 litros, essa embalagem é classificada como tipo A pela Agência Internacional, atendendo aos critérios de transporte e armazenamento. Na figura 25, é mostrada embalagem semelhante (IAEA, 2010).

• <u>MOSAIK</u>

Esta embalagem é feita de ferro fundido para rejeitos de níveis médios de radiação, como resinas exauridas do sistema primário. Por ser modular, esta embalagem pode ser utilizada para acomodar diversos tipo de rejeito, porém, no caso da secagem direta em tambor, é mais utilizada para acondicionamento de concentrado do evaporador e resinas do primário simultaneamente. Algumas características importantes podem ser alteradas, como espessura da parede, volume, modo de fechamento da tampa (solda ou parafusos) e também podem ter uma blindagem interna de chumbo, sempre dependendo do rejeito a ser condicionado. Também atende aos critérios de transporte e deposição final na Alemanha, (GESTERMANN, 2004). Na figura 27, é mostrada um esquema simplificado do MOSAIK (GNS, 2019).


Figura 27. Esquema simplificado de uma embalagem MOSAIK (GNS, 2019).

3.9.3.4 Grau de incorporação

Como referência para o cálculo de comparação do volume de rejeito gerado após acondicionamento com outros métodos apresentados neste trabalho, será utilizada a experiência da usina PWR de Sizewell B no Reino Unido para incorporação de resinas de troca iônica em embalagens do tipo MOSAIK e a experiência de uma usina estudada que realiza incorporação de resinas e concentrado em embalagens semelhantes as utilizadas na usina de Krsko (200 litros contendo barreira biológica e volume útil de 150 litros).

Incorporação de resinas exauridas em MOSAIK

Segundo a Autoridade de Descomissionamento Nuclear – NDA (2012), com o objetivo de reduzir os rejeitos radioativos de médio níveis de radiação gerador na usina de Sizewell B, no Reino Unido, decidiu-se substituir o sistema de incorporação de resinas de troca iônica exauridas provenientes do sistema primário em cimento, pelo processo de secagem direta em tambor, utilizando como embalagem o modelo M II-15 E. Um esquema simplificado desta embalagem é mostrado na figura 28.



Figura 28. Esquema simplificado de MOSAIK utilizado na usina de Sizewell B no Reino Unido (GNS, 2019).

Esse modelo foi escolhido por atender todos os critérios requeridos para transporte e deposição final na Alemanha, sem necessidade de utilização de matriz ou blindagem externa adicional (NDA, 2012).

De acordo com a NDA (2012), para cada embalagem são incorporados 0,466 m³ de resina (95% do volume útil do MOSAIK). Logo, acrescentando, temos os seguintes dados relevantes ao cálculo de incorporação:

- Volume total aproximado do embalado = 1,3 m³
- Volume útil = $0,49 \text{ m}^3$
- Volume de resina úmida adicionado por emabalagem = 0,466 m³ (340 Kg após drenado)

Incorporação de resinas e concentrado em embalagens de 200 litros com barreira biológica

Para utilização nos cálculos de incorporação, foi estudada usina que adota processos e embalagens semelhantes à usina de Krsko, ou seja, utilizando-se tambores de 200 litros contendo barreira biológica e com volume útil de 150 litros.

Por meio de pesquisa foram obtidos os seguintes dados:

- Incorporação de resinas exauridas:
 - > 300 litros de resina úmida para cada tambor.

Diferentemente de Sizewell B, onde a resina é seca na própria embalagem, nesse processo a resina é seca em um tanque de secagem e posteriormente transferida para a embalagem, isto permite um maior aproveitamento do volume útil, pois a resina seca tem seu volume reduzido em 2,0 vezes após tratamento térmico, sendo possível secar e, de certa maneira, incorporar 300 litros de resina úmida em um tambor de 150 litros.

• Incorporação de concentrado do evaporador:

O volume de concentrado incorporado depende diretamente da quantidade de sólidos totais presente no rejeito, quanto maior a concentração de sólidos totais menor será o volume de concentrado a ser tratado por batelada no sistema de secagem. No caso da usina estudada, é possível "incorporar" 1,08 m³ por tambor ou em 150 litros de volume útil, o concentrado do evaporador apresenta as seguintes características:

- Densidade: 1,15 Kg/l;
- Teor de sólidos totais: 20 % (m/m);

Calculando-se a massa de sólidos em 1,08 m³, verifica-se que é possível incorporar uma massa de aproximadamente 248 Kg de sólidos por tambor.

4. METODOLOGIA

Para realização deste trabalho foi feito um levantamento bibliográfico com objetivo de identificar os diferentes tipos de rejeitos produzidos em usinas PWR, bem como as quantidades geradas e necessidade de imobilização, baseado nesses dois critérios foram selecionados para o desenvolvimento desse trabalho, utilizando-se como referência as usinas de Angra 1 e 2, o concentrado do evaporador e resinas exauridas do sistema primário, como pode ser verificado nas figuras 8 e 9, apresentam grande relevância na geração de rejeitos em ambas usinas.

Algumas etapas da gerência de rejeitos também foram abordadas no presente trabalho, tais como métodos de redução de volume e caracterização isotópica de rejeitos radioativos, ambos com ênfase em usinas PWR.

Para atender o objetivo principal deste trabalho, foram selecionados três métodos de imobilização de rejeitos radioativos a serem estudados: betuminização, cimentação e secagem direta em tambor. A cimentação e a betuminização foram escolhidos por já serem metodologias utilizadas nas usinas de Angra 1 e 2 respectivamente. Para a escolha da secagem direta o critério utilizado foi por se tratar de um método inovador, já aceito para deposição final em outros países, como Alemanha e Espanha.

Para realizar a comparação entre o volume final de rejeito radioativo gerado após o processamento foi realizada uma simulação de tratamento do concentrado do evaporador e resinas exauridas do sistema primário por meio dos métodos previamente selecionados, utilizando-se como referência a geração em uma usina PWR de 1300 MWe e projeto Siemens-KWU. Após levantamento bibliográfico definiu-se os graus de incorporação correspondente a cada método a ser utilizado na simulação, os dados obtidos representam valores utilizados em escala industrial, ou seja, tomou-se como base a experiência operacional de diferentes usinas nucleares.

Após a simulação foi possível realizar uma análise crítica, definindo-se o método mais vantajoso do ponto de vista da minimização de rejeitos.

5. RESULTADOS E DISCUSSÃO

Foi realizada uma simulação entre os três métodos de tratamento de rejeitos analisados a fim de determinar o volume final de rejeito gerado após tratamento e acondicionamento de resinas do primário e concentrado do evaporador.

Como modelo, foi utilizada a geração anual de rejeitos de uma usina PWR, modelo KWU-Siemens, com geração de 1300 MWe, que será denominada neste trabalho como Beta NPP.

A usina estudada gera as seguintes quantidades de rejeito:

- Resinas do Primário: 3,6 m³ / ano de resina úmida ou 1,8 m³ / ano de resina seca
 Densidade média da resina seca: 700 Kg / m³ (IAEA, 2002).
- Concentrado do Evaporador: 9 m³ / ano;
- Sólidos Totais: 25%
- Densidade: 1,2 Kg/l

Nos cenários hipotéticos apresentados a seguir, só foram considerados os graus de incorporação do rejeito em cada técnica, não foram levados em consideração outros aspectos como custo, critérios de aceitação para deposição final, taxas de dose envolvidas, etc.

5.1 IMOBILIZAÇÃO EM CIMENTO

Para a simulação do volume final de rejeito gerado após a cimentação, foram considerados os graus de incorporação utilizando-se embalagens com blindagem externa e em tambores de 200 litros, conforme apresentados no item 3.9.1.6.

Para a imobilização em tambores 200 litros, foram considerados o grau de incorporação das usinas espanholas para concentrado do evaporador (150 litros/tambor) (BENAVIDES, 2001) e da usina de Muhleberg, na Suíça, para resinas do primário (45Kg / tambor) (GESSER ET AL, 2000).

Caso a usina Beta NPP adotasse a cimentação como método de processamento de rejeito, os seguintes volumes seriam produzidos após o tratamento:

Resinas do Primário Imobilizadas em Embalagens com Blindagem Externa:

Volume total da embalagem: 1,5 m³

Volume útil: 0,47 m³

Volume de resinas: 0,195 m³

Volume de cimento: 0,275 m³

✓ Número de embalagens produzidas para imobilização de 3,6 m³ de resinas:

Volume de resinas produzidas por ano / Volume útil da embalagem = 3,6 / 0,195 = 18,46Embalagens

✓ Volume total de rejeito para fins de armazenamento:

Volume total da embalagem x número de embalagens produzidas = 18,46 * 1,5 = 27,69 m³

Concentrado Imobilizado em Embalagens com Blindagem Externa:

Volume total da embalagem: 1,5 m³

Volume útil: 0,92 m³

Volume de Concentrado: 0,554 m³

Volume de Cimento: 0,366 m³

✓ Número de embalagens produzidas para imobilização de 9 m³ de concentrado:

Volume de concentrado produzido por ano / Volume útil da embalagem = 9 / 0,554 = 16,25 Embalagens

✓ Volume total de rejeito para fins de armazenamento:

Volume total da embalagem x número de embalagens produzidas = 16,25 x 1,5 = 24,38 m³

Resinas do Primário Imobilizadas em Tambores de 200 litros:

Volume total da embalagem: 0,2 m³

Volume útil: 0,2 m³

Massa de resinas secas incorporada: 45 Kg

Volume de resinas incorporado: massa de resina incorporada / densidade da resina seca = 45 Kg $/700 \text{ Kg/m}^3 = 0,065 \text{ m}^3$

✓ Número de embalagens produzidas para imobilização de 1,8 m³ de resinas:

Volume de resinas produzidas por ano / Volume útil da embalagem = 1,8 m³ / 0,065 m³ = 27,69 Embalagens

✓ Volume total de rejeito para fins de armazenamento:

Volume total da embalagem x número de embalagens produzidas = 27,69 * 0,2 = 5,54 m³

Concentrado Imobilizado em Tambores de 200 litros:

Volume total da embalagem: 0,2 m³

Volume útil: 0,2 m³

Volume de Concentrado incorporado: 0,15 m³

✓ Número de embalagens produzidas para imobilização de 9 m³ de concentrado:

Volume de concentrado produzido por ano / Volume útil da embalagem = 9 / 0,15 = 60,00 Embalagens

✓ Volume total de rejeito para fins de armazenamento:

Volume total da embalagem x número de embalagens produzidas = 60 x 0,2 = 12,00 m³

Para realização dos cálculos, foram desconsideradas as diferenças das características físicoquímicas dos concentrados (densidade, sólidos totais, etc). Foram utilizados apenas os volumes incorporados em cimento apresentados nos trabalhos utilizados como referência.

5.2 IMOBILIZAÇÃO EM BETUME

Para a simulação do cálculo de volume de rejeito imobilizado pela técnica de betuminização, será utilizado o grau de incorporação de 40% em massa de rejeitos no produto final em embalagens de 200 litros. Conforme descrito no 4.2.5, o produto final produzido a partir desse grau de incorporação atende aos requisitos descritos na norma CNEN NN 6.09 (CNEN, 2002) quando utilizado betume nacional.

Para o caso hipotético da usina estudada, os seguintes volumes de rejeito imobilizado em matriz de betume seriam produzidos:

Resinas do Primário imobilizadas em Betume:

- ✓ Volume total da embalagem: 0,2 m³
- ✓ Volume útil: 0,19 m³ (considerando o enchimento de 95% da embalagem)
- ✓ Densidade do produto final: 1.100 Kg/m³ (AIEA, 1993)
- ✓ Massa da resina incorporada: volume útil x densidade do produto final x grau de incorporação = 0,19 x 1.100 x 0,4 = 83,6 Kg de resinas / tambor de 200 litros
- ✓ Massa de Betume incorporada: 120,4 Kg
- ✓ Massa da resina seca produzida anualmente, conforme estudo de caso: volume de resina x densidade da resina = 1,8 m³ x 700 Kg/m³ = 1260 Kg
- ✓ Número de Tambores produzidos para imobilização de 1,8 m³ de resinas secas: massa da resina produzida / massa da resina incorporada = 1260 Kg / 83,6 Kg = 15,07 tambores
- ✓ Volume anual de rejeitos para fins de armazenamento:

Volume total do tambor x número de tambores produzidos = 15 * 0,2 m³ = 3,01 m³

- > Concentrado do Evaporador imobilizado em Betume:
- ✓ Volume total da embalagem: 0,2 m³
- ✓ Volume útil: 0,19 m³ (considerando o enchimento de 95% da embalagem)
- ✓ Densidade do produto final: 1.400 Kg/m³ (AIEA, 1993)
- ✓ Massa de sólidos (resultado da evaporação da água presente no concentrado) incorporado: volume útil x densidade do produto final x grau de incorporação = 0,19 x 1.400 x 0,4 = 106,4 Kg de sólidos / tambor de 200 litros
- ✓ Massa de Betume incorporada: 159,6 Kg
- ✓ Massa de sólidos produzidos anualmente, conforme estudo de caso: volume de total de concentrado x teor de sólidos totais x densidade do concentrado: 9 m³ x 0,25 x 1.200 Kg / m³ = 2.700 Kg
- ✓ Número de Tambores produzidos para imobilização de 9 m³ de concentrado:

Massa de sólidos produzidos / massa de sólidos incorporada = 2700 Kg / 106,4 Kg = 25,38 tambores

✓ Volume anual de rejeitos para fins de armazenamento:

Volume total do tambor x número de tambores produzidos = 25,4 * 0,2 m³ = 5,08 m³

5.3 IMOBILIZAÇÃO EM SECAGEM DIRETA EM TAMBOR

Para a simulação do cálculo de volume de rejeito imobilizado pela técnica de secagem direta em tambor, serão utilizados os graus de incorporação descritos no item 4.3.3. Portanto, para incorporação de resinas serão consideradas a utilização em embalagens MOSAIK (dados da usina de Sizewell B) e tambores de 200 litros com barreira biológica. Para o concentrado, será utilizado como referência a incorporação em tambores de 200 litros com barreira biológica.

<u>Resinas do Primário imobilizadas em MOSAIK MII-15EI:</u>

- ✓ Volume total da embalagem: 1,3 m³
- ✓ Volume útil: 0,49 m³
- ✓ Volume de resina úmida incorporada: 0,467 m³ (considerando enchimento de 95% da embalagem)
 - ✓ Número de Tambores produzidos para imobilização de 3,6 m³ de resinas úmidas: volume de resina produzido / volume de resina incorporada = 3,6 m³ / 0,467 m³ = 7,71 embalagens
 - ✓ Volume anual de rejeito para fins de armazenamento:

Volume total da embalagem x número de embalagens produzidas = 7,71 * 1,3 m³ = 10,02 m³

- <u>Resinas do Primário imobilizadas em tambores de 200 litros com barreira biológica:</u>
- ✓ Volume total da embalagem: 0,2 m³
- ✓ Volume útil: 0,15 m³
 - ✓ Volume de resina seca incorporada: 0,15 m³
 - ✓ Número de Tambores produzidos para imobilização de 1,8 m³ de resinas secas volume de resina seca produzido / volume de resina incorporada = 1,8 m³ / 0,15 m³ = 12,00 embalagens
 - ✓ Volume anual de rejeito para fins de armazenamento:

Volume total da embalagem x número de embalagens produzidos = 12 * 0,2 m³ = 2,40 m³

> <u>Concentrado do Evaporador imobilizado em tambores de 200 litros com barreira biológica:</u>

- ✓ Volume total da embalagem: 0,2 m³
- ✓ Volume útil: 0,15 m³
 - ✓ Massa de sólidos incorporados por embalagem: 248 Kg
 - ✓ Massa de sólidos produzidos anualmente, conforme estudo de caso: volume de total de concentrado x teor de sólidos totais x densidade do concentrado: 9 m³ x 0,25 x 1.200 Kg / m³ = 2.700 Kg
 - ✓ Número de tambores produzidos para imobilização de 9 m³ de concentrado: massa total de sólidos produzido / massa de sólidos incorporados = 2700 Kg / 248 Kg = 10,88
 - ✓ Volume anual de rejeito para fins de armazenamento:

Volume total da embalagem x número de embalagens produzidos = 10,88 * 0,2 m³ = 2,18 m³

5.4 COMPARAÇÃO ENTRE OS VOLUMES DE REJEITO PROCESSADO GERADOS PELOS MÉTODOS ESTUDADOS

Conforme apresentado na figura 29, por meio dos resultados obtidos pela simulação, verificou-se que o método de secagem direta em tambor de 200 litros é o mais vantajoso do ponto de vista de minimização de rejeitos quando comparado à cimentação e a betuminização.



Figura 29. Geração anual de rejeito processado na usina Beta NPP em diferentes métodos de imobilização.

Outro critério de comparação a ser analisado é a proporção entre o volume de rejeito gerado sem tratamento e o volume de rejeito processado. Na tabela 14, são apresentadas as proporções para os diferentes métodos analisados de acordo com os tipos de rejeitos.

Tipos de Rejeitos	Cimentação Embalagens com Blindagem	Cimentação Tambores de 200 litros	Betuminização	Secagem Direta MOSAIK	Secagem Direta - Tambor de 200 l
Resinas do Primário	1:7,7	1:1,5	1:0,8	1:2,8	1:0,7
Concentrado do Evaporador	1:2,7	1:1,3	1:0,6	-	1:0,2

Tabela 14. Proporções entre os volumes inicial e final para os diferentes métodos analisados de acordo com os tipos de rejeitos.

A secagem direta quando comparada com a cimentação em embalagens com blindagem externa os volumes gerados são da ordem de 11 vezes menores para resinas exauridas e 13,5 vezes menores para concentrado do evaporador. Quando comparada com a cimentação em embalagens

de 200 litros, essa redução cai para 2,1 vezes para resinas e 6,5 vezes para concentrado do evaporador.

Em contrapartida, a imobilização de resinas em MOSAIK, além de não apresentar redução de volume, obteve resultado pior quando comparada à cimentação em tambores de 200 litros. Esses fatos demonstram que a embalagem influencia diretamente na geração do rejeito após o tratamento.

A betuminização apresentou resultados satisfatórios, reduzindo o volume de rejeito após o processamento em ambos os casos, apresentando resultados muito próximos a secagem direta em tambor de 200 litros e obtendo resultados superiores quando utilizado MOSAIK para acondicionamento de resinas do primário.

Quanto a imobilização em cimento, existem algumas considerações que explicam os volumes gerados serem significativamente maiores, comparados aos outros métodos, tais como:

- Dentre os métodos estudados é o único que não remove a água antes da incorporação, logo não seria possível uma redução no volume final.
- A embalagem utilizada, embora atenda aos critérios de aceitação para deposição final, promove um aumento significativo no volume final devido as suas dimensões que são significativamente aumentadas em virtude da blindagem presente na embalagem.
- O cimento apresenta limitações no grau de incorporação pelo excesso de sólidos afetarem, diretamente, as propriedades do produto final cimentado.

Como forma de comparar o impacto, em longo prazo, quanto à geração de rejeitos radioativos na central Beta NPP, foi realizada uma extrapolação considerando 40 anos de operação dessa usina, ressaltando-se que como todas essas embalagens necessitam ser transportadas para o depósito final, seriam necessárias centenas dessas operações, que são realizadas por meio de planos de transporte complexos, envolvendo diversos órgãos públicos e consequentemente com custos significativos associados a atividade.

Na figura 30, são apresentados os resultados da geração de rejeitos processados após 40 anos de operação da usina Beta NPP.



Figura 30. Geração de rejeito processado após 40 anos de operação da usina utilizada no estudo de caso.

6. CONCLUSÃO

Nesse trabalho, foi apresentada uma análise comparativa do volume de rejeito radioativo gerado após o tratamento de concentrado do evaporador e resinas do circuito primário em diferentes técnicas de imobilização. Foram analisados também a cimentação, betuminização e secagem direta em tambor. Por meio de dados obtidos na literatura e pesquisas de campo, foi possível determinar fatores essenciais para realização dos cálculos de geração, como grau de incorporação e tipos de embalagens utilizadas.

Conforme os resultados apresentados, foi possível determinar que o método de secagem direta em tambor é o mais eficiente do ponto de vista da minimização de rejeitos. Além de ser um sistema versátil e de fácil operação, permitindo até mesmo a realização de bateladas por meio de sistemas móveis, que poderiam ser transportados entre as usinas. Embora este método já seja aceito para fins de deposição final em países como Alemanha e Espanha, para a sua aplicação em usinas brasileiras ainda se faz necessário definição dos critérios de aceitação e autorização pelo órgão regulador.

Foi comprovado que independente do tratamento utilizado, o volume final dos rejeitos processados está diretamente relacionado à embalagem utilizada, tornando-se fundamental para a geradora, antes de implementar um novo sistema de processamento, verificar os modelos de embalagens aceitas pelo órgão regulador para fins de deposição. Caso contrário pode-se gerar um passivo devido a necessidade de tratamentos posteriores desses rejeitos, como a utilização de sobreembalagens.

Vale ressaltar que apesar dos métodos estudados atualmente atenderem aos critérios de aceitação estabelecidos pela CNEN, caso houver mudanças nas normas vigentes, como alteração no critério de aceitação das embalagens ou até mesmo alteração na relação rejeito / matiz, o volume gerado pode ser aumentado de maneira significativa como forma de atender aos novos critérios. Como exemplo, pode-se citar o caso da usina de Okiluoto, na Finlândia, onde tambores betuminizados são concretados em containers, praticamente dobrando o volume do produto final (KEKKI, TIITTA, 2000). Desta maneira, torna-se necessário, antes da escolha do método de tratamento, a certeza do atendimento aos critérios de aceitação estabelecidos pelo órgão regulador e até mesmo a previsão de possíveis alterações baseadas na experiência internacional.

Ficou demonstrada a importância da escolha de métodos eficientes sob o ponto de vista da minimização de rejeitos gerados e tratados em uma usina nuclear. Além de estar de acordo com as melhores práticas de gerenciamento de rejeitos radioativos, a redução dos rejeitos radioativos ao longo da operação de uma central mostra-se economicamente vantajosa, reduzindo significativamente a ocupação dos depósitos finais e iniciais e, consequentemente, reduzindo os custos de armazenamento, transporte e deposição.

Para trabalhos futuros sugere-se:

- Levantamento de custos para realização de secagem direta em tambor em usinas brasileiras;

- Determinação de critérios de aceitação de embalagens utilizadas no processo de secagem direta em tambor para fins de deposição;

- Técnicas inovadoras que permitam maior grau de incorporação utilizando a técnica de cimentação, incluindo embalagens mais econômicas do ponto de vista de volume de rejeito gerado.

7. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

ATKINS M.; GLASSER F. P.; Application of Portland cement-based materials to radioactive waste immobilization. **Waste Management.** v. 12, p. 105-131, 1992.

BATCHELOR, B.; Overview of waste stabilization with cement. **Waste Management.** v.26, p. 689-698, 2006.

BENAVIDES E. Vacuum Drying Plant for Evaporator Concentrates. Madrid: 2001.

BENFARAH M.; ZOUITER M.; JOBERT T.; DACQUAIT F.; BULTOT M.; GENIN J. PWR circuit contamination assessment tool. Use of OSCAR code for engineering studies at EDF. **Nuclear Science & Technologies.** v. 2, p. 15, 2016.

BRASIL. Lei nº 12.305 de 2 de agosto de 2010. Institui a Política Nacional de Resíduos Sólidos; altera a Lei no 9.605, de 12 de fevereiro de 1998; e dá outras providências.

BRASIL. National Report of Brazil for the 6th review meeting of the joint convention on the safety of spent fuel management and on the safety of radioactive waste management. Rio de Janeiro, 2017.

COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR – CNEN NN 6.09. Critérios de aceitação para deposição de rejeitos radioativos de baixo e médio níveis de radiação. Rio de Janeiro, 2002.

COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR – CNEN NN 8.01. Gerência de rejeitos radioativos de baixo e médio níveis de radiação. Rio de Janeiro, 2014.

COUMES, C.C.D., COURTOIS, S. Cementation of a low-level radioactive waste of complex chemistry investigation of the combined action of borate, chloride, sulfate and phosphate on cement hydration using response surface methodology. **Cem. Concr. Res**. v. 33, 305–316, 2003.

DAI X.; KRAMER-TREMBLAY S. Five-column chromatography separation for simultaneous determination of hard-to-detect radionuclides in water and swipe. Ontario, 2014.

DONG B.; Li L.; Li C.; Zhou W.; Yin J.; Wang D. Review on models to evaluate coolant activity under fuel defect condition in PWR. **Annals of Nuclear Energy.** v. 124, p. 223-233. 2019.

ELETRIC POWER RESEARCH INSTITUTE. Solid Low Level Waste Management Guidelines. California, 1994.

GESSER C.; HEDIN G.; JOHANSSON, B. T.; WALTERSTEN, T. Versatile cement solidification of low- and intermediate level radwaste with the moss system. **Waste Management Conference.** Tucson, 2000.

GESTERMANN, G. MOSAIK 20 years of experience with cask system for transportation, conditioning and storage of radioactive waste. **14th International Symposium on the Packaging and Transportation of Radioactive Materials**, Berlim, 2004.

GNS. **Portfolio.** Disponível em: <<u>https://www.gns.de/language=en/21601/portfolio</u> > Acessado em: 25 de julho de 2019.

GORBUNOVA, O. Cementation of liquid radioactive waste with high content of borate salts. **Journal Radioanal Nucl Chem.** v. 304, p. 361-370, 2015. GU, Z. History review of nuclear reactor safety. **Annals of Nuclear Energy.** v. 120, p. 682-690. 2018.

GUZELLA M. F. R. Desenvolvimento de processo para imobilização de rejeitos de usinas nucleares utilizando betumes nacionais. 2010. Tese (Doutorado em Engenharia Química). Universidade Estadual de Campinas, Campinas, 2010.

HAGGBLOM H.; KJELLBERT N.; CEDERSTROM M.; LUNDGREN T. Central Repository for low and intermediate level waste (ALMA): conceptual design, siting and safety study. Studsvik, 1980.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **PRIS - Power Reactor Information System.** Disponível em: Acesso em: 10 de março de 2019.">http://www.iaea.org/PRIS/> Acesso em: 10 de março de 2019. INSTITUTO BRASILEIRO DE PETRÓLEO. **Informações básicas sobre materiais asfálticos.** Comissão de Asfalto, 2 ed., 1978.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Application of ion exchange processes for treatment of radioactive waste and management of spent ion exchangers. Vienna: IAEA, 2002. (Technical report series, 408).

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Bituminization processes to condition** radioactive wastes. Vienna: IAEA, 1993a (Technical report series, 352).

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Country Waste Profile Report for SLOVENIA. Vienna: IAEA, 2010.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Determination and use of scaling factors for waste characterization in nuclear power plants.** Vienna: IAEA, 2009.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Innovative waste treatment and conditioning technologies at nuclear power plants. Vienna: IAEA, 2006.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. The Management System for the Processing, Handling and Storage of Radioactive Waste. Vienna: IAEA, 2008.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Management of spent ion-exchange resins from nuclear power plants. Vienna: IAEA, 1981.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Processing of nucelar power plant waste streams containing boric acid .** Vienna: IAEA, 1996.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Radioactive Waste Management Glossary. Viena: IAEA, 2003.

JARVIS J.; JARVIS A. Radiation Source Term Assessments. Structural Integrity Associates. V. 44, 2018.

KESSIDES, N. I. The future of the nuclear industry reconsidered: Risks, uncertainties, and continued promise. **Energy Police.** v. 48, p. 185-208. 2012.

KEKKI, T.; TIITTA, A.; Evaluation of the radioactive waste characterization at the Okiluoto nuclear power plant. **Radiation and Nuclear Safety Authority.** Março, 2000.

KOTATKOVA, J.; ZATLOUKAL J.; REITERMAN, P.; KOLAR K. Concrete and cement composites used for radioactive waste deposition. **Journal of Environmental Radioactivity.** v. 178-179, p. 147-155, 2017.

KROSELJ, V.; JANKOVIC, M.; SKANATA, D.; MEDAKOVIC, H.; HERTL, B. Characterization of In-Drum Drying Products. **Waste Management Conference,** Tucson, 2006.

LAMARSH, J. R.; BARATTA, A. J. Introduction to Nuclear Engineering. 2^a edição. Prentice Hall, Nova Jersey, 1983.

LAVEROV, N. P.; OMEL'YANENKO, B. I.; YUDINTSEV, S. V.; STEFANOVSKY, S. V. Confinement matrices for low and intermediate level radioactive waste. **Geology of ore deposits.** v. 54, p. 1-16, 2012.

Li, J.; WANG, J. Advances in cement solidification technology for waste radioactive ion exchange resins: A review. **Journal of Harzardous Materials.** v. B135, p. 443-448, 2006.

MIURA, A.; SATO, Y.; KOYAMA, T.; OMORI E.; KATO, Y.; SUZUKI, H.; NOJIRI I.; YAMANOUCHI, T. Fire and explosion incident at bituminization demonstration facility of **PNC Tokai Works**, Ibaraki, 1997.

MONTE, L.; OLIVA, N.; BARRETO, V. Implementation of a radioactive waste management program focused on the development of waste process technologies to minimize waste volumes and to improve storage capacity. In: International Nuclear Atlantic Conference, Santos, 2007.

NUCLEAR DECOMMISSIONING AUTHORITY. Packaging of Spent ILW Ion Exchange Resins at Sizewell B using MOSAIK casks. Março, 2012.

NUCLEAR ENERGY AGENCY. Technology Roadmap: Nuclear Energy. 2015

NUCLEN. Manual de Química. Rio de Janeiro: 1998.

OJOVAN, M.I.; LEE, W.E. An introduction to nuclear waste immobilization. New York: Elsevier, 2005, 250p.

OLDIGES, O.; BLENSKI, H. A new, small, drying facility for wet radioactive waste and liquids. **Waste Management Conference**, Tucson, 2003.

POULLIKKAS, A. An overview of future sustainable nuclear power reactors. **International Journal of Energy and Environment.** V. 4, p. 743-776. 2013.

PROVENS, H.; Primary circuit contamination in nuclear power plants: contribution to occupational exposure. Fontenay-aux-Roses, 2002.

SANTOS, Ricardo Luís Pereira. A Energia Nuclear no Sistema Elétrico Brasileiro. Tese (Doutorado em Engenharia) – Ciências em Planejamento Energético. UFRJ/COPPE. Universidade Federal do Rio de Janeiro, 2014.

SILVA, E.M.P. **Implementação de um sistema unificado para gerenciamento de rejeitos.** 2006. 277 f. Tese (Doutorado em Engenharia Química). Universidade Estadual de Campinas, Campinas, 2006.

STELLWAG B.; JUERGENSEN M.; WOLTER D. Zinc injection in german PWR plants. França: 2002.

SUN, Q.; WANG, J. Cementation of radioactive borate liquid waste produced in pressurized water reactors. **Nuclear Engineering and Design.** v. 240, p. 3660-3664, 2010.

TADDEI M. H. T.; VICENTE R.; MARUMO J. T. Determination of long-lived radionuclides in radioactive wastes from the IEA-R1 nuclear research reactor. Budapeste, 2012.

TADDEI, M. H. T. Determinação de fatores de escala para estimativa do inventário de radionuclídeos em rejeitos de média e baixa atividades do reator IEA-R1. 2013. Tese (Doutorado em Ciências na área de Tecnologia Nucelar - Reatores). Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo, 2013.

TODREAS. N. E.; KAZIMI M. S. Nuclear Systems: Thermal Hydraulic Fundamentals. v. 1, 2^a edição. CRC Press, Florida, 2012.

VARLAKOVA, G.; OJOVAN, M. I. 39-years Performance of Cemented Radioactive Waste in a Mound Type Repository. **Mat. Res. Symp. Proc.** V. 932, 2006.

VGB POWER TECH. Waste disposal for nuclear power plants. Essen, 2012.

VOLARIC, M. B.; ZORKO, M. Liquid waste volume reduction by In Drum Drying System. Vrbina, 1998.

WESTING HOUSE ELETRIC COMPANY. In-Drum Dryer. Cramberry Township, 2015.

WILLS, J. G. Nuclear Power Plant Technology. New York London: J. Wiley & Sons, 1967.

YIM, M.; OCKEN, H.; Radiation Dose Management in Nuclear Power Plants. **Progress in** Nuclear Energy. v. 39, p. 31-51, 2001.

ZAKHAROVA, K. P.; MASANOV, O. L. Bituminization of liquid radioactive wastes safety assessment and operating experience. **Atomic Energy**. v.89, 2000.

ZHOU Q.; MILESTONE B. N.; HAYES M. An alternative to Portland Cement for waste encapsulation – The calcinum sulfoaluminate cement system. Journal of Hazardous Materials.
V. 136, p. 120-129, 2006.
6.