

**INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA
SECRETARIA DA CULTURA, CIÊNCIA E TECNOLOGIA
AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO**

**ANÁLISE QUANTITATIVA DOS REJEITOS RADIOATIVOS A SEREM
GERADOS NO PROGRAMA NUCLEAR BRASILEIRO**

José Mauro Esteves dos Santos

**Dissertação apresentada ao Instituto de
Energia Atômica como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
"Mestre - Área de Reatores Nucleares de
Potência e Tecnologia do Combustível
Nuclear".**

Orientador: Dr. Roberto Yoshiyuki Hukui

**São Paulo
1979**

INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA

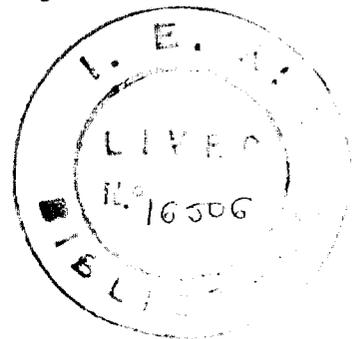
Secretaria da Cultura, Ciência e Tecnologia - Autarquia associada à Universidade de São Paulo

**ANÁLISE QUANTITATIVA DOS REJEITOS RADIOATIVOS A
SEREM GERADOS NO PROGRAMA NUCLEAR BRASILEIRO**

José Mauro Esteves dos Santos

Dissertação apresentada ao Instituto de Energia Atômica como parte dos requisitos para obtenção do grau de "Mestre", na Área de Reatores Nucleares de Potência e Tecnologia do Combustível Nuclear.

Orientador: DR. ROBERTO YOSHIYUTI HUKAI



**SÃO PAULO
1979**

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
I P E N

ÍNDICE GERAL

	Pág.
AGRADECIMENTOS.....	1
SUMÁRIO.....	111
ABSTRACT.....	v
<u>CAPÍTULO I - INTRODUÇÃO</u>	1
1.1 Objetivos.....	5
1.2 Apresentação dos resultados.....	5
1.3 Revisão bibliográfica.....	6
<u>CAPÍTULO II - FONTES DO REJEITO RADIOATIVO</u>	24
2.1 Alternativas de Operação do Ciclo do Combustível - Nuclear.....	26
2.1.1 Alternativa I - Operação do Ciclo do Combustível sem reciclagem do urânio e do plutônio	26
2.1.2 Alternativa II - Operação do Ciclo do Combustível com reciclagem do urânio.....	28
2.1.3 Alternativa III- Operação do Ciclo do Combustível com reciclagem do urânio e do plutônio	31
2.2 Fontes dos Resíduos Radioativos no Ciclo do Combustível Nuclear.....	33
2.2.1 Mineração.....	33
Resíduos produzidos na mineração	34
Resíduos gasosos	34
Resíduos sólidos	34
Resíduos líquidos	34

	Pág.
2.2.2 Beneficiamento do Minério (Concentração e Purificação).....	35
Método de Lixiviação Ácida.....	35
Resíduos produzidos no beneficiamento do - minério.....	36
Resíduos gasosos.....	36
Resíduos líquidos.....	36
Resíduos sólidos.....	37
2.2.3 Produção de Hexafluoreto de Urânio.....	37
Resíduos gerados na produção de hexafluore to de urânio.....	38
2.2.4 Enriquecimento.....	39
Resíduos produzidos no enriquecimento.....	40
Resíduos líquidos.....	41
Resíduos sólidos.....	41
2.2.5 Fabricação do Combustível.....	41
Resíduos produzidos na fabricação do com- bustível.....	43
Resíduos gasosos.....	43
Resíduos líquidos.....	44
Resíduos sólidos.....	44
2.2.6 Irradiação no Reator.....	45
A Radioatividade gerada no circuito primã- rio de refrigeração.....	47
Os produtos de fissão.....	47
Os produtos de ativação.....	49
Resíduos Produzidos na Usina Nuclear.....	53
Resíduos gasosos.....	53
Resíduos líquidos.....	54
Resíduos sólidos.....	54

	Pág.
2.2.7 Armazenamento do Combustível Irrradiado.....	56
Características dos tanques de armazenamen- to do combustível irradiado das Usinas Nu- cleares.....	57
Características dos tanques de armazenamen- to do combustível irradiado das usinas de reprocessamento.....	57
2.2.8 Reprocessamento.....	59
Operações iniciais.....	60
Extração com solvente.....	64
Purificação do urânio e fabricação do UF ₆ .	66
Purificação do plutônio e fabricação do - PuO ₂	67
Resíduos produzidos no reprocessamento....	71
Rejeito de alta atividade.....	71
Rejeito de atividade intermediária.....	73
Rejeito de atividade baixa.....	73
Rejeito na forma gasosa.....	77
Rejeito sólido	77
1.2.9 Fabricação de Óxido Mixto de Urânio e Plu- tônio.....	78
Resíduos produzidos na fabricação dos óxi- dos mistos de urânio e plutônio.....	80
Resíduos combustíveis contaminados com - elementos transurânicos.....	80
Resíduos não combustíveis contaminados - com elementos transurânicos.....	80
<u>CAPÍTULO III - A CLASSIFICAÇÃO DO REJEITO RADIO</u> <u>ATIVO.....</u>	82

	Pág.
3.1 Estado Atual da Classificação do Rejeito Radioativo	83
3.1.1 Rejeito gasoso.....	84
3.1.2 Rejeito líquido.....	84
3.1.3 Rejeito sólido.....	86
3.2 A Classificação Proposta pela Agência Internacional de Energia Atômica.....	87
3.2.1 Categorias do rejeito líquido.....	87
3.2.2 Categorias do rejeito sólido.....	90
3.2.3 Categorias do rejeito gasoso.....	92
3.2 A Classificação Usada Neste Trabalho.....	94
<u>CAPITULO IV</u> - AS PROPRIEDADES DO COMBUSTÍVEL NUCLEAR E DO REJEITO RADIOATIVO DE ALTA ATIVIDADE.....	96
4.1 O Código "ORIGEN".....	98
4.1.1 As potencialidades do Código "ORIGEN".....	100
4.1.2 Descrição das subrotinas do programa.....	104
4.1.3 Cartões de fornecimento de dados.....	110
4.1.4 Os dados utilizados.....	122
4.2 Os Resultados Obtidos.....	131
4.2.1 O combustível durante a irradiação.....	137
4.2.2 O combustível irradiado.....	142
taxa de geração de calor.....	142
radioatividade.....	146
energia emitida pelos raios γ	149
taxa de geração de neutrons.....	154

	Pág.
4.2.3 O Rejeito Radioativo de Alta Atividade.....	154
Composição isotópica.....	153
Radioatividade.....	159
Energia emitida pelos raios γ	159
Taxa de emissão de nêutrons.....	162
Taxa de geração de calor.....	165
<u>CAPÍTULO V - O VOLUME DO REJEITO RADIOATIVO.....</u>	<u>167</u>
5.1 Hipóteses Básicas.....	169
5.2 Obtenção dos Resultados.....	172
5.3 Resultados Obtidos.....	180
<u>CAPÍTULO VI - CONCLUSÃO.....</u>	<u>194</u>
6.1 Discussão.....	194
6.2 Sugestões para atividades futuras.....	200
<u>CAPÍTULO VII - BIBLIOGRAFIA.....</u>	<u>202</u>
APÊNDICE A - TABELAS REFERENTES AO CAPÍTULO IV....	222
APÊNDICE B - TABELAS REFERENTES AO CAPÍTULO V.....	229

INDICE DAS TABELAS

	Pág.
2.1 - Atividade dos produtos de fissão no Sistema de Refrigeração de Angra II.....	48
2.2 - Atividade dos produtos de corrosão, mais importantes, no Sistema Primário de Refrigeração de Angra II.....	51
2.3 - Atividade, das resinas de troca iônica depois de 6 meses de utilização.....	52
2.4 - Os resíduos na forma líquida que serão produzidos na usina Angra II.....	55
2.5 - Composição estimada do rejeito de baixa atividade.....	75
3.1 - Classificação do rejeito radioativo sólido adotada no Japão.....	86
3.2 - Categorias propostas pela AIEA para o rejeito radioativo líquido.....	89
3.3 - Categorias propostas pela AIEA para o rejeito radioativo sólido.....	91
3.4 - Categorias do rejeito gasoso, propostas pela AIEA	93

	Pág.
4.1 - Números inteiros que podem ser atribuídos a MLIBE	111
4.2 - Valores de MS e as propriedades correspondentes..	120
4.3 - Tipos de isotópos e valores da variável NEXT, nos cartões K.....	121
4.4 - Valores atribuídos às variáveis do Código "ORIGEN"	125
4.5 - Variação do fluxo neutrônico durante a operação do reator.....	135
4.6 - Composição isotópica do combustível, em átomos - grama, em função do tempo de irradiação.....	139
4.7 - Composição isotópica do combustível irradiado, em átomos-grama, em função do tempo após a retirada do reator.....	143
4.8 - Quantidade total de calor gerado no combustível - irradiado.....	145
4.9 - Radioatividade total do combustível irradiado....	148
4.10 - Energia total emitida, por segundo, pelos raios γ no combustível irradiado.....	151
4.11 - Taxa total de produção de neutrons no combustível irradiado.....	153
4.12 - Características dos produtos de fissão.....	158

	Pág.
5.1 - Características da usina nuclear de 1300 MWe...	172
5.2 - Valores de K_i	177
5.3 - Os resíduos radioativos gerados no ciclo do combustível.....	181
A1 - Composição isotópica, em átomos-grama, do rejeito radioativo, em função do tempo após o reprocessamento.....	223
A2 - Radioatividade, em curies, do rejeito em função do tempo após o reprocessamento.....	224
A3 - Energia emitida pelos raios γ , em watts (j/s), no rejeito radioativo, em função do tempo após o reprocessamento.....	225
A4 - Nêutrons emitidos em reações (α, n), no rejeito radioativo, em neutrons/segundo, em função do tempo depois do reprocessamento.....	226
A5 - Nêutrons emitidos em fissões espontâneas, no rejeito radioativo, em neutrons/segundo, em função do tempo depois do reprocessamento.....	227
A6 - Quantidade de calor produzida, em watts, no rejeito radioativo, em função do tempo depois do reprocessamento.....	228

	Pág.
B1 - Volume do rejeito produzido na usina de fabricação do UF ₆ , pelo "Wet Solvent Extraction Method"	230
B2 - Volume do rejeito produzido na usina de fabricação do UF ₆ , pelo "Dry Hidrofluor Process".....	231
B3 - Volume do rejeito produzido na usina de enriquecimento.....	232
B4 - Volume do rejeito produzido na fabricação dos elementos combustíveis.....	233
B5 - Volume dos combustíveis irradiados.....	234
B6 - Volume do rejeito produzido na usina nuclear...	235
B7 - Volume do rejeito de baixa atividade, produzido na usina de reprocessamento.....	236
B8 - Volume do rejeito de alta atividade produzido - na usina de reprocessamento.(dados americanos).	237
B9 - Volume do rejeito de alta atividade produzido - na usina de reprocessamento (dados alemães)....	238
B10 - Volume do rejeito contaminado com elementos transurânicos produzido na usina de reprocessamento.....	239
B11 - Volume do rejeito contaminado com plutônio.....	240

ÍNDICE DAS FIGURAS

	Pág.
2.1 - Alternativa I - Operação do ciclo do combustível nuclear sem reciclagem do urânio ou do plutônio.	27
2.2 - Alternativa II - Operação do ciclo do combustível nuclear com reciclagem do urânio.....	29
2.3 - Alternativa III - Operação do ciclo do combustível nuclear com reciclagem do urânio e do plutônio	32
2.4 - Fluxograma típico do tratamento do rejeito radioativo nos reatores PWR	46
2.5 - Etapas principais executadas no reprocessamento..	61
2.6 - Operações iniciais executadas no reprocessamento.	63
2.7 - Etapas principais executadas na operação de extração com solvente.....	65
2.8 - O processo de purificação do urânio e os resíduos gerados no mesmo.....	68
2.9 - O processo de purificação do plutônio e os resíduos gerados no mesmo.....	70
2.10 - Resíduos produzidos no reprocessamento I.....	72
2.11 - Resíduos produzidos no reprocessamento II.....	74

	Pág.
2.12 - Resíduos produzidos no reprocessamento III.....	76
3.1 - Classificação do rejeito radioativo líquido, em vários países.....	85
4.1 - Diagrama de blocos referente a cálculo $\bar{X} = \bar{A} \cdot \bar{X}$..	105
4.2 - Propriedades estudadas nas 3 etapas dos cálculos executados com o programa "ORIGEN"	136
4.3 - Composição isotópica do combustível, em átomos - grama durante a irradiação.....	138
4.4 - Quantidade total de calor gerado, em watts, no combustível irradiado, em função do tempo após a retirada do reator.....	144
4.5 - Radioatividade total, em curies, do combustível em função do tempo após a retirada do reator....	147
4.6 - Energia total emitida, por segundo (watts) pelos raios γ , no combustível irradiado, em função do tempo após a retirada do reator.....	150
4.7 - Taxa de produção de nêutrons, (neutrons/segundo) no combustível irradiado, em função do tempo após a retirada do reator.....	152
4.8 - Composição isotópica em átomos-grama, do rejeito radioativo, em função do tempo após o reprocessamento.....	156

4.9	- Radioatividade, em curies, do rejeito, em função do tempo após o reprocessamento.....	160
4.10	- Energia emitida pelos raios γ , em watts, (j/s), no rejeito radioativo, em função do tempo após o reprocessamento.....	161
4.11	- Nêutrons produzidos em fissões espontâneas, no rejeito radioativo, em neutrons/segundo, em função do tempo após o reprocessamento.....	167
4.12	- Nêutrons produzidos em reações (α, n), no rejeito radioativo, em neutrons/segundo, em função do tempo após o reprocessamento.....	164
4.13	- Quantidade total de calor produzido, em watts, em função do tempo após o reprocessamento.....	166
5.1	- Previsão da capacidade nuclear a ser instalada - no Brasil até o ano 2010.....	171
5.2	- Divisão da curva que mostra a capacidade nuclear a ser instalada em intervalos de 1300 MWe.....	174
5.3	- Diagrama de blocos do programa "WASTE".....	175
5.4	- Volume do rejeito produzido na usina de fabricação do UF_6 , pelo "Wet Solvent Extraction Method"	184
5.5	- Volume do rejeito produzido na usina fabricação do UF_6 pelo "Dry Hydrofluor Process".....	185

	Pág.
5.6 - Volume do rejeito produzido na usina de enriquecimento (Difusão Gasosa).....	186
5.7 - Volume do rejeito produzido na usina de fabricação dos elementos combustíveis.....	187
5.8 - Volume dos combustíveis irradiados.....	188
5.9 - Volume do rejeito produzido na usina nuclear...	189
5.10 - Volume do rejeito de baixa atividade produzido na usina de reprocessamento.....	190
5.11 - Volume do rejeito de alta atividade produzido na usina de reprocessamento.....	191
5.12 - Volume do rejeito contaminado com elementos transurânicos produzido na usina de reprocessamento.....	192
5.13 - Volume do rejeito contaminado com plutônio produzido na usina de reprocessamento.....	193

AGRADECIMENTOS

Consignamos os nossos melhores agradecimentos ao Professor Dr. Roberto Yoshiyutí Hukai pela orientação e colaboração dispensadas no transcorrer de nossas pesquisas, bem como pelo estímulo e amizade com que sempre nos distinguiu.

Agradecemos, também, ao Instituto de Energia Atômica de São Paulo, na pessoa de seu Superintendente, Prof. Dr. Rômulo Ribeiro Pieroni, e ao PRONUCLEAR - Programa de Formação de Recursos Humanos para o Setor Nuclear pelo fornecimento do material e do auxílio financeiro necessários à execução deste trabalho.

Ao Dr. Chihiro Kikuchi, professor da Universidade de Michigan, EUA, ao Dr. Cláudio Rodrigues, professor do Instituto de Energia Atômica de São Paulo, ao Dr. Klaus Keil, professor da Universidade do Novo México, EUA, e aos colegas José Roberto Menezes Monteiro e Márcia Regina Hoeltz - Barros, do Centro de Engenharia Nuclear, deste Instituto, somos imensamente gratos pelas sugestões e pela colaboração prestada no

decorrer deste trabalho.

Desejamos, ainda, externar os nossos mais sinceros agradecimentos ao Dr. Rui Ribeiro Franco e ao Dr. José Antonio Dias Dieguez, gerentes, o primeiro do Centro de Treinamento em Energia Nuclear, e o segundo do Centro de Engenharia Nuclear, do Instituto de Energia Atômica de São Paulo, ao Dr. - Josue de Camargo Mendes e ao Dr. Nabor Ricardo Ruegg, respectivamente Diretor e Professor do Instituto de Geociências - da Universidade de São Paulo, à Sra. Ângela Loyolla, da Promon Engenharia, e ao Sr. Antônio Gouvêia, Chefe do Grupo de Aplicações Científicas da Computação, do Instituto de Energia Atômica de São Paulo, pelo auxílio e incentivo recebidos durante a execução deste trabalho.

À Sra. Itacy Kroehne e ao Sr. Celso Ricardo Esteves Coppio somos gratos pela colaboração recebida na confecção das diversas figuras que ilustram o texto. Ao sr. Jayme Alves da Silva e às Srtas. Ivan Rocha da Silva e Neide de Jesus Lima registramos também nossos sinceros agradecimentos pelos serviços de impressão e de datilografia.

Finalmente, a todos aqueles que, direta ou indiretamente, nos prestaram sua colaboração expressamos nossos agradecimentos.

São Paulo, 21 de janeiro de 1979
José Mauro Esteves dos Santos.

SUMÁRIO

Nas unidades que compõem o ciclo do combustível nuclear são produzidos resíduos radioativos, os quais requerem cuidados especiais no tratamento, transporte e armazenamento. Entre as informações imprescindíveis à elaboração de um programa para administrar esses materiais, destacam-se os seus volumes e as suas propriedades físicas.

Neste trabalho, utilizando os programas "WASTE" e "ORIGEN", obtivemos os volumes dos resíduos radioativos - que serão gerados no país até o ano 2010 e determinamos as - propriedades do combustível nuclear, durante e após a irradiação, e do rejeito de alta atividade que será produzido no reprocessamento.

As propriedades estudadas do combustível irradiado e do rejeito radioativo de alta atividade foram: a composição isotópica, a taxa de geração de calor, a radioatividade, a energia gama liberada e a taxa de emissão de nêutrons. Foi obtida ainda a composição isotópica do combustível durante a irradiação.

Os volumes dos resíduos referem-se às seguintes unidades do ciclo do combustível: usina de conversão do concentrado de urânio em hexafluoreto de urânio, usina de enri-

quecimento, usina de fabricação dos elementos combustíveis, usina nuclear, e usina de reprocessamento.

Concluimos que, a curto prazo, o maior problema a ser resolvido será o armazenamento do combustível irradiado e dos resíduos de baixa atividade produzidos nas usinas nucleares. Os volumes obtidos desses materiais são, respectivamente: 1287 m³ e 16149 m³ no ano 1990 e 55051 m³ e 690506 m³ no ano 2010. A médio prazo, deverá ser solucionado o problema do armazenamento temporário do rejeito de alta atividade, o qual, por suas propriedades, constitui o material mais perigoso produzido na indústria nuclear. Os volumes obtidos - desse tipo de detrito para os anos 2000 e 2010 foram, respectivamente, 50 m³ e 1265 m³. A longo prazo, deverá ser estudada e resolvida a questão do armazenamento definitivo desses resíduos. Para tanto, obtivemos suas propriedades em função do tempo após o reprocessamento.

ABSTRACT

In the nuclear fuel cycle radioactive waste requiring special treatment (processing, transportation and disposal) is produced. For the implementation of a waste management program, parameters such as volume, specific activity, thermal power, gamma power, (α, n) and spontaneous fission neutron production rates are required.

In this work, we have calculated:

- a- The specific activity, thermal power, gamma power and neutron production rate for the irradiated fuel of Angra II.
- b- The volumes of radioactive waste that will be produced in the nuclear fuel cycle in Brazil
- c- The specific activity, thermal power, gamma power and neutron production rate for the high-level waste that will be produced during fuel reprocessing.

In the short-term it is concluded that the major problems that will require solution will be the disposal of the low-level waste (volume V_L) and the interim storage of the irradiated fuel elements (volume V_F) generated in the nuclear power plants. For the years 1990 and 2010 these volumes are: (1990) $V_L = 16149 \text{ m}^3$; $V_F = 1287 \text{ m}^3$ and (2010) $V_L = 690506 \text{ m}^3$, $V_F = 55051 \text{ m}^3$.

In the medium-term the problem of the interim storage of the high-level waste (volume V_H) must be solved. The volumes of this waste we have calculated for the years 2000 and 2010 are: (2000) $V_H = 50 \text{ m}^3$ and (2010) $V_H = 1265 \text{ m}^3$. Long term evaluation of high-level waste disposal must be analysed to aid in initial studies of this problem. Several parameters of this waste have been calculated as a function of time after reprocessing.

CAPÍTULO I

INTRODUÇÃO

Generalidades

A presença do homem sobre a terra pode ser determinada por dois tipos de indícios: ossos fossilizados, atribuíveis a seres humanos e vestígios de moradias ou de indústrias primitivas, reveladoras da intervenção de uma causa inteligente. Se os primeiros são raros, os últimos são abundantes e permitem, por si sós, fixar a época à qual convém atribuir o aparecimento do fenômeno humano. É bem no início do Quaternário que se encontram os primeiros restos de uma indústria lítica ainda muito rudimentar, mas cuja fabricação - intencional não pode, por diversas razões, ser posta em dúvida.

Assim, desde os primórdios de sua evolução cultural, há dois milhões de anos, o homem começou a fabricar utensílios de pedra, atividade da qual, com certeza, se originavam

detritos de diversas espécies.

Hoje, sabe-se que todas as atividades industriais dão origem a uma forma ou outra de rejeito. O fato desse material inaproveitável ser inconveniente, perigoso, prejudicial, ou ainda potencialmente útil é determinado por sua natureza e pela habilidade humana em tratá-lo, isolá-lo, ou dispersá-lo no meio ambiente. A geração de resíduos é um processo intimamente relacionado à industrialização. O caso nuclear não constitui exceção. No entanto, os detritos produzidos na indústria nuclear possuem uma característica que torna proibitiva sua liberação no ambiente: a radioatividade. Nas instalações que compõem o ciclo do combustível são produzidos resíduos radioativos, os quais requerem cuidados especiais no tratamento, no transporte e no armazenamento.

A utilização do átomo, em grande escala, para a produção de eletricidade criou um problema não existente até então: o isolamento do material residual produzido nessa nova indústria.

Grandes progressos já foram feitos no desenvolvimento de uma tecnologia segura e economicamente aplicável para o tratamento e o isolamento do resíduo nuclear. Entretanto, alguns problemas persistem em relação a certos tipos de detrito.

Com a exaustão dos recursos hídricos e o crescimento da demanda de energia elétrica, principalmente no Sude

te do país, tornou-se necessária a criação do Programa Nuclear Brasileiro, dentro do qual será construída uma série de centrais nucleares, que virão suprir o déficit energético da região mais industrializada do país.

Uma vez adotada a opção nuclear para a produção de eletricidade, faz-se necessária a elaboração de um programa de administração dos resíduos radioativos, os quais, com a instalação do ciclo do combustível, serão certamente produzidos.

Neste trabalho procuramos determinar diversas propriedades do combustível, durante e após a irradiação, e do rejeito radioativo resultante da atividade desenvolvida na usina de reprocessamento. Obtivemos, também, o volume dos detritos que serão gerados no país até o ano 2010, com a instalação do ciclo do combustível nuclear.

As propriedades estudadas do combustível irradiado e do rejeito de alta atividade foram: a composição isotópica, a taxa de geração de calor, a radioatividade, a energia gama liberada e a taxa de emissão de nêutrons. Foi obtida, ainda, a composição isotópica do combustível durante a irradiação.

Os volumes dos resíduos calculados referem-se às seguintes unidades do ciclo do combustível: usina de conversão do concentrado a hexafluoreto de urânio, usina de enriquecimento, usina de fabricação dos elementos combustíveis, usi-

na nucleare usina de reprocessamento.

No decorrer do trabalho foram empregados dois programas, denominados "ORIGEN"- "ORIGEN ISOTOPE GENERATION AND DEPLETION CODE" e o "WASTE".

O código "ORIGEN" é um conjunto, bastante complexo, de sub-rotinas, que utiliza o método das matrizes exponenciais na resolução do sistema de equações diferenciais, ordinárias e de primeira ordem, as quais descrevem o comportamento dos radionuclídeos em uma cadeia de decaimento radioativo. Com este programa foram obtidas as propriedades do combustível durante e após a irradiação e do rejeito de alta atividade produzido nas operações de reprocessamento. O código "ORIGEN" foi elaborado nos Estados Unidos e trazido a este Instituto especialmente para a execução deste trabalho.

Com o programa "WASTE" foram obtidos os volumes dos detritos radioativos no ciclo do combustível nuclear. A previsão dos volumes foi feita até o ano 2010. A partir do ano 2000, consideramos um crescimento de 8% ao ano na capacidade nuclear a ser instalada. Esta taxa de crescimento visa a ter tão somente um efeito ilustrativo, uma vez que a parte mais importante da projeção se refere aos próximos vinte anos.

Acreditamos que os resultados obtidos possam ser de grande valia no estabelecimento de um programa de administração dos detritos radioativos.

1.1 Objetivos

Este trabalho possui dois objetivos principais. O primeiro deles é fornecer o volume do rejeito radioativo a ser gerado com a instalação e operação do ciclo do combustível nuclear; este volume permitirá o dimensionamento do sistema de transporte e do repositório final onde os resíduos serão isolados. O segundo objetivo é fornecer as propriedades do combustível irradiado e do rejeito radioativo de alta atividade que será produzido no reprocessamento. Tais informações podem ser de grande valia no cálculo de blindagens e, ainda, na escolha do método mais eficaz de tratamento e do local mais apropriado para a colocação temporária ou definitiva do resíduo nuclear.

1.2 Apresentação dos Resultados

Os resultados do trabalho são apresentados na forma de gráficos e de tabelas. Os primeiros encontram-se distribuídos pelo texto, à medida que vão sendo referidos. Algumas tabelas de resultados acompanham os diagramas. As demais foram reunidas nos apêndices A e B.

O apêndice A encerra as tabelas referentes ao capítulo IV. No apêndice B encontram-se as tabelas relacionadas aos diagramas do capítulo V.

O trabalho, como um todo, pode ser dividido em três partes.

A primeira compreende os capítulos II e III e cor responde à sua fundamentação teórica. Nestes capítulos são a apresentadas as fontes do resíduo nuclear e as classificações internacionalmente mais usadas para esse tipo de material.

A segunda encerra os capítulos IV e V, onde foram executados os cálculos e obtidos os volumes e as propriedades dos detritos radioativos.

A terceira e última compreende os capítulos VI e VII nos quais são apresentadas as conclusões e a bibliografia consultada.

O capítulo I, como o próprio nome indica, introduz o tema e fornece uma revisão bibliográfica do assunto ora abordado.

1.3 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

A bibliografia sobre os detritos radioativos é - por demais extensa. Diversos aspectos, como o tratamento, a - armazenagem, a legislação, os perigos de contaminação, a toxidez, o transporte, etc., destes resíduos já foram e continuam sendo estudados. Para que se tenha uma idéia mais clara do volume dos esforços que estão sendo feitos no campo dos detritos nucleares, basta dizer que, em 1977, foram aplicados, sô nos Estados Unidos da América do Norte, cerca de 60 milhões - de dólares na pesquisa e no desenvolvimento de métodos de tra

tamento, transporte e estocagem dos materiais imprestáveis gerados na indústria nuclear.

Dito conferências internacionais foram patrocinadas pela Agência Internacional de Energia Atômica, visando a facilitar a troca de informações sobre o rejeito radioativo. Seus temas foram:

1959 - Armazenamento dos Resíduos Radioativos

1962 - Tratamento e Armazenamento dos Resíduos Radioativos

1965 - Tratamento dos Resíduos de Graus Baixo e Intermediário

1967 - Tratamento dos Resíduos Gasosos

1970 - Administração dos Resíduos de Graus Baixo e Intermediário

1972 - Administração dos Resíduos de Usinas de Reprocessamento

1976 - Administração dos Resíduos Radioativos do Ciclo do Combustível Nuclear.

Além desses encontros científicos, o assunto ainda foi abordado em diversas conferências internacionais que trataram da energia nuclear, em um aspecto mais geral. Este é o caso, por exemplo, das Conferências Internacionais Sobre Usos Pacíficos da Energia Atômica, patrocinadas pela Organização das Nações Unidas, nas quais os resíduos radioativos sempre fazem parte do temário discutido.

Além dos trabalhos publicados em âmbito internacional, encontramos, nos relatórios elaborados pelos diversos

centros de pesquisa nuclear espalhados pelo mundo, uma literatura riquíssima sobre os diferentes aspectos do problema dos rejeitos radioativos.

Dada essa imensa quantidade de material já publicado, torna-se difícil elaborar-se uma revisão bibliográfica abrangendo toda a literatura disponível. Assim sendo, procuramos revisar o assunto, utilizando principalmente os trabalhos publicados nas principais conferências internacionais, nas quais foi tratado o problema dos detritos radioativos. Nos anais desses encontros científicos pudemos colher um vasto material de pesquisa, no qual se encontram registrados os principais progressos feitos em cada país acerca do problema do resíduo nuclear.

Observamos que a primeira vez que o tema do rejeito radioativo foi abordado em âmbito internacional foi em 1955, na Conferência Internacional sobre os Usos Pacíficos da Energia Atômica / 26/. Antes desta data encontramos, na literatura, apenas relatórios técnicos isolados, publicados pelos Centros de Pesquisa Nuclear que já estudavam o problema dos detritos radioativos desde a década de 40. Este é o caso do trabalho de LAUDERALE Jr. / 62/, que descreve um método de coagulação para o tratamento dos rejeitos líquidos, ou dos estudos desenvolvidos em Hanford sobre a dispersão dos radioelementos no solo.

Deve-se ressaltar a dificuldade que encontramos pa

ra pesquisar esses trabalhos mais antigos, uma vez que, na maioria das vezes, eles não se encontram disponíveis nas bibliotecas especializadas.

Dois problemas principais foram estudados na década de 50 : o tratamento e o armazenamento dos detritos. Grande apreensão pública existia em relação ao resíduo nuclear / 26/ . BROWN, PARKER e MAWSON / 20/, apresentaram estudos sobre a colocação dos radionuclídeos no solo. De acordo com BROWN e PARKER (op.-cit.), os fatores a serem avaliados, antes da colocação dos detritos no solo, eram: a composição química e radioquímica do rejeito, os parâmetros de retenção dos radioelementos no solo, o tempo durante o qual os nuclídeos radioativos ficariam retidos, as características do lençol freático, a possibilidade de controlar-se a composição do lençol freático, a ocorrência de retenção dos radionuclídeos nos sedimentos que por ventura pudessem existir no curso da água subterrânea, a diluição e a concentração máxima permissível de cada nuclídeo na água. Segundo esses autores, o terreno de armazenamento deveria possuir características de retenção tais que impedissem os radionuclídeos de atingirem o lençol freático. No trabalho de MAWSON (op.cit.) é apresentada uma opinião contrária à de BROWN e PARKER (op.cit.). Segundo esse autor, os elementos radioativos deveriam ser colocados diretamente na água do lençol, de maneira que eles fossem transportados e retidos nos sedimentos percolados pelo mesmo. CIPRIANI / 26/ manifestou-se contra tal

idêia, levantando dūvidas quanto ā segurança do mētodo propos-
to, em relaçaō ā contaminaçaō das regiōes circunvizinhas ā re-
giāo de liberaçaō dos resīduos.

Na ēpoca, o mar era considerado como um local po-
tencialmente favorāvel ao armazenamento do rejeito da indūs-
tria nuclear. Assim, foi feita uma sērie de estudos sobre a
possibilidade de colocarem-se os detritos nos oceanos /85 /.
Um dos trabalhos mais extensos sobre o assunto foi apresenta-
do por SELIGMAN; DUNSTER; FAIR e McLEAN /85,36,44 /. Este es-
tudo divide-se em 3 partes. Na primeira delas, SELIGMAN (op.
cit.) salienta que, antes da construçaō de uma central nuclear
no Mar da Irlanda (parte do Oceano Atlāntico entre a Irlanda e
a Inglaterra), havia necessidade de elaborarem-se estudos com
o objetivo de determinar a quantidade de radioatividade que po-
deria ser colocada continuamente no mar, sem causar danos ā vi-
da animal e vegetal. Para tanto, foram feitos experimentos vi-
sando: ā determinaçaō das caracterīsticas do movimento dos -
efluentes radioativos sob vārias condiçōes de marē e de ventos;
ā diluiçaō dos radioelementos com o tempo e ās variaçōes dos
fatores anteriormente mencionados em funçaō da distāncia ā li-
nha de costa. SELIGMAN (op.cit.) ainda salienta que, na ēpoca,
nāo existiam dados disponīveis para o estabelecimento de uma -
teoria que descrevesse adequadamente o movimento dos efluentes
radioativos no mar e a taxa de diluiçaō dos radionuclīdeos de-
pois da descarga. DUNSTER (op.cit.), na segunda parte do traba-

lho, realizou um estudo preliminar da segurança de uma descarga contínua de materiais radioativos no mar. Os principais pontos abordados foram: a radioatividade no mar decorrente de um dia de descarga de efluentes contaminados; a relação entre a radioatividade descarregada no mar e aquela que seria encontrada nos peixes e nos sedimentos marinhos; os critérios de segurança a serem adotados para proteger o público; os limites de segurança a serem usados na descarga de materiais radioativos no mar. Na terceira parte do estudo, FAIR e McLEAN /44/ descrevem os estudos feitos com descargas experimentais de efluentes contaminados no mar. Devemos ressaltar a importância de um estudo desse porte, na época, quando, segundo RENN /79/, não haviam, ainda, trabalhos práticos visando ao armazenamento dos resíduos radioativos no mar. RENN (op.cit) - também ressalta a apreensão do público, em geral, quanto à colocação dos rejeitos da indústria nuclear nos oceanos.

Em 1958, três anos depois da apresentação dos estudos mencionados, muitos progressos haviam sido conquistados em relação ao isolamento dos resíduos radioativos. No entanto, as opiniões ainda divergiam quanto à melhor maneira de tratar os detritos. De acordo com LIEBERMAN /65/, existiam duas linhas de pensamento a respeito do resíduo nuclear. A primeira congregava os pesquisadores em cuja opinião os detritos radioativos constituíam um aspecto sem importância na indústria nu-

clear, enquanto que, a segunda, reunia os cientistas segundo os quais o rejeito radioativo é o maior obstáculo à aplicação do átomo nos diversos setores da atividade humana. LIEBERMAN (op. cit.) ressalta que o objetivo principal da administração dos detritos da indústria nuclear é a proteção ao meio. Para o autor, na época havia uma considerável falta de informação do público em relação ao resíduo nuclear.

Diversas tentativas foram feitas para incorporar os detritos radioativos em materiais sólidos. THOMAS / 92/ salientou que um dos aspectos principais a serem considerados na escolha de um processo de solidificação para o rejeito nuclear é a mobilidade dos radioelementos diante das condições de lixiviação pelas águas subterrâneas. Segundo WATSON, DURHAM, ERLEBACH e RAE / 98/, os nefelina - sienitos são as rochas mais apropriadas à fabricação de vidros contendo radielementos em sua composição. Esta rocha, de acordo com as pesquisas efetuadas, funde-se a 1250°C e, quando resfriada sob condições adequadas, transforma-se em um vidro, ao qual podem ser incorporados os elementos radioativos. GOLDMAN, SERVIZI, DANIELS, TEBBUT, BURNS e LAUDERALE / 49 / estudaram a possibilidade da incorporação do rejeito nuclear em materiais cerâmicos. De acordo com esses autores, as principais vantagens da utilização da cerâmica são: a grande estabilidade dessa substância, uma vez que existem evidências arqueológicas de que tais materi-

ais lixiviam-se muito pouco com o passar do tempo, a resistência ao intemperismo e ao ataque químico e a existência do óxido de alumínio no próprio rejeito, composto esse de importância fundamental na fabricação do material cerâmico.

No campo do armazenamento dos resíduos, ainda na década de 50, LAGUNA, COWSER e PARKER / 61 / descrevem um processo de estocagem de resíduos líquidos em poços não revestidos. Essa técnica, segundo os autores, baseia-se no princípio de que o próprio solo pode reter os radioelementos, funcionando como uma coluna de troca iônica. Até 1957 foram armazenados, apenas em três desses poços, cerca de 32 milhões de litros de resíduos radioativos na forma líquida. Além da colocação dos detritos no solo, alguns cientistas estudaram a possibilidade de efetuar-se a descarga em rios. DURAMEL, MENOUX e CANDILLON / 35 / descreveram métodos de liberação de líquidos - contaminados, em rios. De acordo com esses autores, os efluentes líquidos provenientes do Centro Nuclear de Saclay eram - tratados em uma usina de capacidade reduzida e transportados, na forma líquida, para Fontaine Aux Roses, um subúrbio de Paris, onde eram liberados no Rio Sena.

No final da década de 50, quando o problema dos - detritos radioativos já se tornava mais conhecido, observa-se o surgimento de trabalhos visando à elaboração de uma classificação e de uma definição adequada para esses materiais. Entre esses estudos, destaca-se o de PILKEY, PLATT e ROHRMANN / 77 /, no

qual os autores definem os resíduos radioativos de alta atividade como sendo "soluções concentradas ácidas ou alcalinas, - perigosas a todos os organismos vivos devido à sua intensa radioatividade e capazes de entrar em auto-ebulição em decorrência da absorção de sua própria energia". BRUCE /21 / descreve as características dos detritos radioativos a serem gerados no Programa Nuclear Norte-Americano. ROGERS, /81/ em estudo semelhante, salienta as peculiaridades dos detritos contaminados, produzidos em instituto de pesquisa, em hospitais, na indústria e em instalações que se utilizam da radioatividade para outros fins que não a geração de energia elétrica.

Em 1959, GUIRLET e LAVIE /50 / publicam um dos primeiros estudos sobre a previsão da quantidade de detritos radioativos a ser gerada em um programa nuclear. Nesse trabalho eles utilizam-se da fórmula de Wiger e Way, que prediz, teoricamente, a atividade de uma mistura complexa de produtos de fissão. Os resultados obtidos, no entanto, de acordo com GUIRLET e LAVIE (op.cit.), devem ser entendidos apenas como uma aproximação da realidade. Os autores prevêm, ainda, que o problema dos detritos radioativos seria, no futuro, um dos mais importantes a serem enfrentados pelo homem. BRUCE (op.cit.) no mesmo ano, faz um estudo de previsão semelhante ao anterior. De acordo com BRUCE (op.cit.), a composição dos resíduos radioativos depende de dois fatores essenciais: o método de tratamento empregado na recuperação do combustível e a compo-

sição inicial do rejeito a ser tratado. O autor estimou em $2,7 \times 10^7$ e o volume dos detritos radioativos, nos Estados Unidos, no ano de 1970. A atividade correspondente seria de 3×10^9 Ci. Segundo BRUCE (op.cit.), seriam produzidos 5 litros de resíduos líquidos de alta e média atividade para cada kg de U processado e a razão entre o rejeito de alta e média atividade seria de 1 para 5, em volume. Essa mesma razão, entre os detritos de alta e baixa atividade, seria de 1 para 10.

KENY / 57 / publica trabalho semelhante em relação à Inglaterra. Nesse estudo, o autor determina a composição, a quantidade de calor gerado e outras propriedades do material obtido no processamento do combustível irradiado do reator de Calder Hall.

Ainda no fim da década de 50, os cientistas continuam fazendo pesquisas no sentido de encontrar um método seguro e economicamente aplicável para o tratamento do rejeito radioativo. Nesse campo, encontramos os trabalhos de BAESTSLE / 5 /, CERRE / 24 /, COHEN e GAILLEDREAU / 31 /, todos eles descrevendo métodos de tratamento dos radionuclídeos, bem como a experiência adquirida nesse assunto, em cada país. POMAROLA e SAVOUYAUD / 78 /, elaboraram, na mesma época, um trabalho abordando os problemas de transporte dos detritos. Aí, apresentam um projeto de um veículo dotado de um tanque especialmente construído para o transporte dos resíduos líquidos, com

atividades específicas de até 1000 Ci/g . Deve-se notar que, ainda não se havia chegado a uma conclusão sobre a melhor forma de transporte do rejeito. Porém, assim como existiam pesquisadores adeptos da idéia do transporte na forma líquida, WATSON, AIKIN e BANCROFT / 97 / eram partidários da incorporação dos resíduos em vidros. O processo tem, como produto, um material cuja atividade é de 50 Ci/kg. ZINAKOV e KOLICHEV /101/ apresentam as vantagens dos métodos de vitrificação em relação às demais técnicas de redução de volume.

Os métodos de armazenamento temporário também continuam a ser discutidos, como por DUNSTER e WIX /37 /, autores que apresentam um projeto de um tanque especialmente desenhado para o armazenamento dos resíduos. BURNS / 23 /, ao contrário, defende a colocação dos detritos no mar, discordando das técnicas de armazenamento temporário. Note-se que, nessa época, 1959, não se havia chegado ainda a um acordo quanto à utilização do mar como repositório dos detritos radioativos.

Um dos primeiros trabalhos abordando os aspectos legais da questão dos resíduos foi aquele apresentado por HYDEMAN e BERMAN / 53 /. Esses autores apresentam sugestões para o controle internacional do armazenamento dos detritos radioativos no mar e ainda analisam, sob vários aspectos, a

legislação existente sobre os poluentes.

Com o passar do tempo, a idéia da estocagem dos resíduos nucleares na forma líquida foi sendo abandonada. BELTER /14 / enumerou, já no início da década de 60, uma série de restrições ao armazenamento dos rejeitos líquidos, defendendo a transformação desses materiais em sólidos. Nesse trabalho é feita uma previsão da quantidade de resíduos radioativos que seria gerada, nos Estados Unidos, nos anos de 1980 e 2000. Os valores são 136 milhões e 1 bilhão de litros, respectivamente. Note-se que, em 1962, segundo esse autor, já existiam 284 milhões de litros de líquidos contaminados, armazenados em 200 tanques subterrâneos.

Na década de 50, os métodos de solidificação evoluíram bastante / 22 / e assim, no início dos anos 60, uma série de trabalhos foram publicados sobre o assunto. BUCKHAM e Mc BRIDGE /22 / apresentaram um trabalho muito bem elaborado sobre a calcinação em leitos fluidizados. O método proposto, embora se restringisse a pequenas quantidades de detritos, poderia, com algumas modificações, tornar-se aplicável às operações comerciais. De acordo com os autores, a capacidade de 5 mil litros por hora seria facilmente atingida com o processo em questão. HOLMES, BALNCO, BLOMEKE, CLARK, GODBEE, HANCHER, SUDDATH e WATLEY / 52 / apontam as vantagens e desvantagens dos processos de calcinação não contínuos. WINSHE, DAVIS, -

GOODLETT , OCCHIPINTI e WEBSTER / 99 / propõem um método de calcinação envolvendo o enxofre, no estado fundido. ALLEMAN , MOORE e UPSON / 2 / apresentam os resultados dos métodos de calcinação usados na escala comercial, em Hanford (Washington, EUA).

A economicidade dos processos de calcinação foi discutida, em 1962, no trabalho de PERSONA, BRADSHAW, ROBERTS e BLOMEKE / 76 /, onde são calculados os custos do processo. Esses autores analisam, ainda, os preços do armazenamento provisório, em períodos de 10 a 20 anos, e os custos de transporte de materiais residuais radioativos. Os resultados obtidos mostram que os investimentos representam uma fração mínima do custo da energia nucleoeleétrica.

A vitrificação também continua, nos anos 60, a ser estudada profundamente. Para ZIMAKOV, KOLYCHEV, KOLICHENKO e MARTINOV /101/ a vitrificação era o método mais seguro de isolamento. Os trabalhos de pesquisa desenvolvidos por esses autores resultaram na determinação da composição ideal dos vidros e do efeito de vários componentes na estabilidade e na durabilidade desses materiais.

Mesmo com o desenvolvimento das técnicas de solidificação, o armazenamento, na forma líquida, ainda encontra alguns defensores como CLEELAND / 28 /, segundo o qual os problemas existentes na época, associados à vitrificação, não

permitted a construction of a commercial scale plant for the application of these techniques. This idea, however, is contemplated by other authors, such as DUHAMEL /34/, who suggests the immediate, in 1962, of vitrification on a large scale, to avoid the problems inherent in the storage of waste in liquid form.

The possibility of the occurrence of an accident with the storage tanks of high activity residues begins to be addressed and SPITSYN, BALUKOVA and ERMAKOVA /87 / present a very interesting work on the migration of radionuclides in the soil although this study has been done in the laboratory, the conditions of the tests were very similar to the real ones.

The packaging of residues passes, still in the beginning of 1960, to be the subject of several works. ZAHN, SMITH and JUNKINS /100/ discuss the problem of conditioning of debris before transport. CERRE, MESTRE and LEBRAUM /25 / describe a transport system in liquid form.

In the 60s decade, a series of treatment plants of medium and low grade residues were built. SPITSYN KOLYCHEV and SEDOV /88 / describe a treatment unit, combining flocculation, ion exchange and distillation. KENY and MITCHEL /58 / propose a legislation for the control of storage of debris in England. The proposed laws reach

quase todos os materiais radioativos produzidos, seja na indústria nucleoeleétrica, na agricultura, nos hospitais, ou em outros locais. AURAND, SCHWIBACH VOLTER e KRAUSE / 4 / comentam a legislação alemã sobre os detritos. De acordo com BARBOUR / 12 /, na África do Sul não existiam, até 1965, leis que regulassem os resíduos radioativos. THOMAS / 93 / e MENCHERO / 68 / descrevem os aspectos gerais dos programas de tratamento de resíduos, respectivamente na Índia e na Bélgica.

Em 1970, a Áustria, iniciando suas atividades nucleares, publicou um estudo, da autoria de OSZUSKY e SHLOSSER / 71 /, sobre os resíduos que seriam produzidos em sua primeira usina nuclear. Esse trabalho tem uma certa importância em relação ao caso brasileiro, uma vez que a usina da Áustria é do mesmo porte de Angra I. Outro trabalho de interesse para o caso do Brasil foi o apresentado por BOCHEREL e AROD / 18 /, sobre o tratamento da água dos tanques de armazenamento do combustível irradiado. A importância desse estudo em relação ao nosso país reside no fato de que teremos de armazenar o combustível irradiado de Angra I, II e III pelo menos até meados da década de 90, quando, possivelmente, serão iniciadas as operações de reprocessamento. De acordo com BOCHEREL e AROD (op. cit.), as maiores fontes de contaminação desses tanques são o ^{124}Sb ; o ^{60}Co , o ^{54}Mn , o ^{95}Zr , o ^{95}Nb , o ^{137}Cs e o ^{90}Sr .

Os Centros de Pesquisas Nucleares, nas décadas de

60 e 70, também desenvolveram trabalhos sobre a administração dos detritos radioativos. SANTOS e MACHADO /84/ apresentaram os métodos de tratamento de resíduos mais comumente usados - no Brasil. BARBEAU, MARCAILLON, PINTO, RANCON e MERRY /11/ - descrevem os detritos produzidos em Cadarrache (França) e - propõem uma classificação dos detritos em incineráveis e não incineráveis e em compressíveis e não compressíveis.

Na década de 70, várias usinas de tratamento de detritos, de porte comercial, foram construídas. BAHR, HEMPEL MAN, KRAUSE e NENTWICH /9/ descrevem a experiência alemã na operação de uma usina de tratamento de rejeitos radioativos. Nesse trabalho, comparam-se custos e processos de tratamento.

No campo do armazenamento dos detritos, as pesquisas prosseguem nos anos 70 e BARBEAU, BARDET, ESCALIER des ORRES, JOUNDE, SCHEIDHAUER e SOUSSELIER /10/ descrevem a - experiência adquirida nas instalações francesas de estocagem de detritos, localizadas na Normândia (La Hague).

No campo do tratamento de detritos, GOFREY, HANSON e SMITH /48/ descrevem os 3 tipos de evaporadores usados em Hanford. Inúmeros trabalhos sobre o desenvolvimento das - técnicas de tratamento dos resíduos líquidos foram apresentados na década de 70. Entre eles, podemos citar os estudos de VAN de VOORDE e PEETERS/94/, LEFÈVRE /63/, EMELITY e CHRISTENSON /38/, e VOLKOVA, ZAKHAROVA, KULICHENKO e KONDAFIEV - /96/. A colocação dos resíduos em minas de sal -

é uma idéia cada vez mais difundida e ALBRECHT, KUHN, PERZL, DIETFENBACHER, HEIL, KRAUSE e SCHUCHARDT / 1 / apresentam a experiência alemã no assunto e ainda uma série de considerações técnicas sobre a instalação de sistemas de transporte - no interior das minas.

No início da década de 70, praticamente a maioria dos problemas relacionados com os resíduos de média e baixa atividade encontravam-se solucionados. Os esforços mundiais, concentravam-se no problema do rejeito de alta atividade. SOUSSELIER, PRADEL e COSIN / 86 / propunham que esses resíduos fossem solidificados, logo após sua geração.

Os gases continuam sendo liberados na atmosfera, porém, TAKASHIMA, SEGAWA, TSUTSUMI, YUSA, NISHIZAWA e OHNO - / 90 / descrevem um método criogênico aplicável à recuperação dos gases nobres.

Com menos frequência, encontramos, na literatura internacional especializada, trabalhos sobre os componentes estruturais do reator, os quais, depois de inutilizados, tornam-se também parte do rejeito radioativo. Na Índia, BALU, RAMA, RAMACHADRAN e JAIN / 7 / estudaram o problema e apresentaram os resultados em 1976. Estudo semelhante foi feito por DILLON, GRIGGS, KEMPER e NELSON / 33 /, nos Estados Unidos.

Além desses trabalhos, apresentados em Congressos e Simpósios internacionais, existe uma vastíssima literatura

tura sobre detritos, publicada na forma de relatórios técnicos, nos diversos países onde já se utiliza a energia nuclear. Evidentemente, não há possibilidade de reportarmo-nos a toda ela, mas, queremos ressaltar dois trabalhos de grande importância no campo dos resíduos radioativos. São eles: ERDA-76-43, UC 70 "Alternatives for Managing Wastes from Reactors and Post-Fission Operations in the LWR Fuel Cycle" / 39 / e NUREG-0116 - "Environmental Survey of the Reprocessing and Waste Management Portions of the LWR Fuel Cycle" / 40 /, este editado por BISHOP e MIRAGLIA Jr. Ambos os relatórios foram publicados em 1976 e trazem descrições bastante elaboradas sobre os diversos resíduos radioativos, produzidos no ciclo do combustível nuclear dos reatores LWR.

Antes de finalizarmos esta secção, queremos mencionar os trabalhos de COHEN /29, 30 /, os quais descrevem as diversas propriedades físicas dos resíduos produzidos na usina de reprocessamento.

CAPÍTULO II

FONTES DO REJEITO RADIOATIVO

O ciclo do combustível é o sistema de operações e de instalações empregadas na preparação, utilização e reconstituição do combustível nuclear. No caso dos reatores de potência do tipo LWR, suas etapas principais são:

1. Mineração do urânio.
2. Beneficiamento do minério de urânio (concentração e purificação).
3. Conversão do concentrado de urânio (U_3O_8) em hexafluoreto de urânio (UF_6).
4. Enriquecimento.
5. Conversão do hexafluoreto de urânio enriquecido (UF_6) em óxido de urânio (UO_2).
6. Fabricação dos elementos combustíveis.
7. Irradiação do combustível no reator.
8. Reprocessamento.

O reprocessamento pode ou não fazer parte do ciclo, dependendo da maneira como ele é operado. O transporte, o tratamento e a estocagem de materiais radioativos também são considerados partes do ciclo do combustível. Caso haja reciclagem do plutônio, a fabricação de óxidos mistos de urânio e plutônio deve ser acrescentada às oito operações mencionadas.

O capítulo II descreve o ciclo do combustível nuclear sob o ponto de vista da geração dos resíduos radioativos.

Vários ciclos alternativos têm sido adotados nos países onde já se utiliza a energia nuclear. Escolheu-se um ciclo padrão que apresenta as etapas mais importantes da utilização e reutilização do combustível nuclear. O ciclo padrão não é necessariamente idêntico àquele adotado no Programa Nuclear Brasileiro, embora, sempre que possível, tenhamos incluído informações aplicáveis ao Brasil. No entanto, ele mostra as principais operações onde são gerados detritos radioativos, permitindo a descrição de suas fontes, tipos e características, as quais constituem o objeto principal desse capítulo. Não se pretende indicar a melhor tecnologia ou a maneira mais conveniente de operar-se o ciclo do combustível, mas sim caracterizar os principais aspectos da geração do rejeito e as maneiras usuais de administrá-lo.

As características e as quantidades dos resíduos radioativos dependem fundamentalmente do modo de operação do ciclo e da tecnologia empregada no tratamento do rejeito.

As três alternativas básicas, mais comuns, de operar-se o ciclo do combustível nuclear são:

- Alternativa I - Operação do ciclo do combustível sem reciclagem do urânio e do plutônio (Figura 2.1)
- Alternativa II - Operação do ciclo do combustível com reciclagem do urânio (Figura 2.2)
- Alternativa III- Operação do ciclo do combustível com reciclagem do urânio e do plutônio. (Figura 2.3).

As principais diferenças entre as alternativas I, II e III - ocorrem após a irradiação. O material irradiado contém concentrações modestas de isótopos físséis (^{235}U , ^{239}Pu e ^{241}Pu) e concentrações significantes de isótopos férteis. Ao sair do reator, o combustível pode ser transferido para a usina de reprocessamento (alternativas II e III) ou ser armazenado (alternativa I). O plutônio separado no reprocessamento pode ser tratado como rejeito (alternativa II), ou transformado em óxidos mistos de urânio e plutônio, ou ainda ser usado como combustível em reatores rápidos (alternativa III). As operações executadas em cada uma das três alternativas são descritas a seguir.

2-1 ALTERNATIVAS DE OPERAÇÃO DO CICLO DO COMBUSTÍVEL NUCLEAR

- ### 2.1.1 Alternativa I - Operação do Ciclo do Combustível - sem Reciclagem do Urânio e do Plutônio(Figura 2.1).

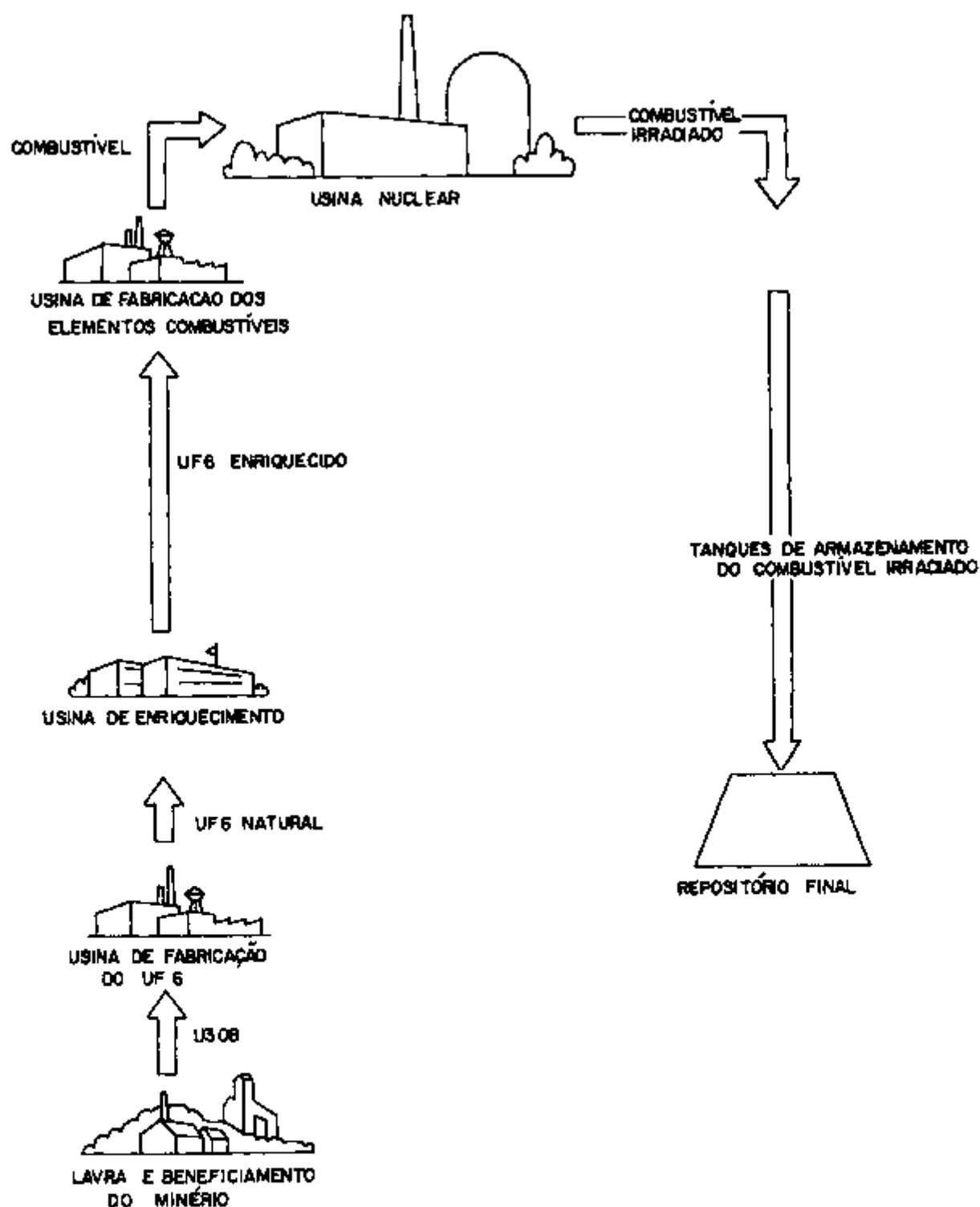


Figura 2.1 - Alternativa 1 - Operação do ciclo do combustível nuclear, sem reciclagem do urânio ou do plutônio.

A alternativa I representa a maneira mais simples de operação do ciclo e aquela na qual são geradas as menores quantidades de resíduos radioativos.

O minério lavrado é retirado da mina e transferido à usina de beneficiamento, onde é fabricado o concentrado de urânio. Esse material é levado, em seguida, à usina de conversão e transformado em hexafluoreto de urânio. Esse composto é enviado à usina de enriquecimento, onde a concentração do isótopo ^{235}U é aumentada. Posteriormente, o hexafluoreto enriquecido é transformado em dióxido de urânio e finalmente em elementos combustíveis. O combustível é colocado no reator, onde se dá a irradiação e a produção de energia. Posteriormente, os elementos combustíveis são retirados do reator e colocados em reservatórios de água para permitir a diminuição da radioatividade (principalmente daquela devida aos núclídeos de meia vida curta) e da taxa de geração de calor. Em seguida, o combustível é acondicionado em recipientes próprios e transferido para um local adequado à armazenagem temporária, ou diretamente ao repositório final.

As principais fontes do rejeito radioativo da alternativa I são a usina nuclear e as instalações de armazenagem do combustível irradiado. Os resíduos gerados em ambos os casos serão descritos mais adiante.

2.1.2 Alternativa II - Operação do Ciclo do Combustível com Reciclagem do Urânio (Figura 2.2)

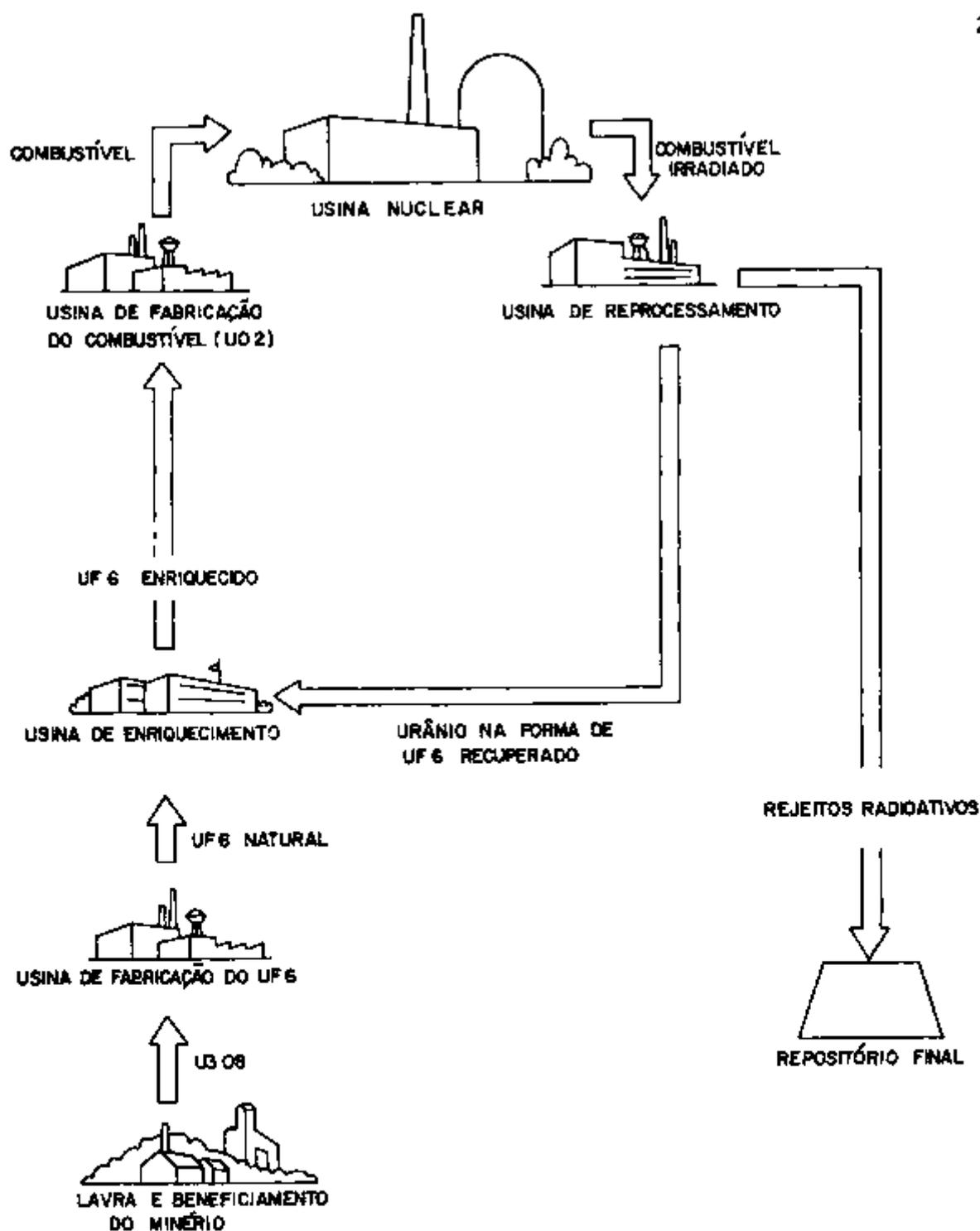


Figura 2.2 - Alternativa II - Operação do ciclo do combustível nuclear, com reciclagem do urânio.

Na alternativa II, a mineração, o beneficiamento e a conversão do concentrado em hexafluoreto de urânio são executados da mesma maneira que no caso anterior. Ocorrem apenas pequenas variações nas quantidades do material processado.

A primeira grande diferença entre as alternativas I e II encontra-se no processo de enriquecimento, onde o hexafluoreto de urânio natural é acrescido de uma certa quantidade de hexafluoreto de urânio levemente enriquecido, que foi recuperado na usina de reprocessamento. Ambos são submetidos ao enriquecimento e enviados à usina de fabricação de dióxido de urânio e dos elementos combustíveis. Como no caso anterior, após a irradiação, o combustível é estocado durante um certo tempo para permitir o decaimento dos núcleos de meia vida curta e a diminuição da quantidade de calor gerado. A seguir, os combustíveis são transferidos à usina de reprocessamento, onde o urânio (^{235}U) não fissionado é recuperado. O plutônio é tratado como rejeito e armazenado.

Os resíduos radioativos mais importantes na alternativa II são os de alta atividade, gerados na usina de reprocessamento. Tais detritos contêm a maioria dos produtos de fissão formados durante a irradiação. Em muitos casos, no tratamento de um determinado rejeito formam-se resíduos secundários. Estima-se que cerca de 70% dos detritos da usina de reprocessamento sejam contaminados com elementos transurânicos. Os outros materiais radioativos gerados durante o re

processamento serão descritos mais adiante. Os demais resíduos produzidos nessa alternativa são semelhantes aos da alternativa I.

2.1.3 Alternativa III - Operação do Ciclo do Combustível com Reciclagem do Urânio e do Plutônio. (Figura 2.3)

As operações de mineração, beneficiamento, conversão e enriquecimento são semelhantes aos casos anteriores. Nessa alternativa, parte do urânio natural da usina de conversão em hexafluoreto é enviado, na forma de UO_2 , à usina de fabricação de óxidos mistos de urânio e de plutônio, os quais serão usados posteriormente em outros reatores. Como na opção anterior, o urânio levemente enriquecido, recuperado no reprocessamento, é convertido em UF_6 e enviado à usina de enriquecimento. Em seguida, o material enriquecido é transformado em UO_2 e finalmente em elementos combustíveis, os quais são levados ao reator. Após a irradiação, é feito o reprocessamento do combustível e a recuperação do urânio (^{235}U) e do plutônio recém-formado.

Os resíduos gerados no reprocessamento são essencialmente os mesmos da alternativa II, com exceção do PuO_2 , o qual, ao invés de ser considerado rejeito, é enviado à usina de fabricação de óxidos mistos de urânio e plutônio. Nessa alternativa, forma-se uma quantidade maior de resíduos do

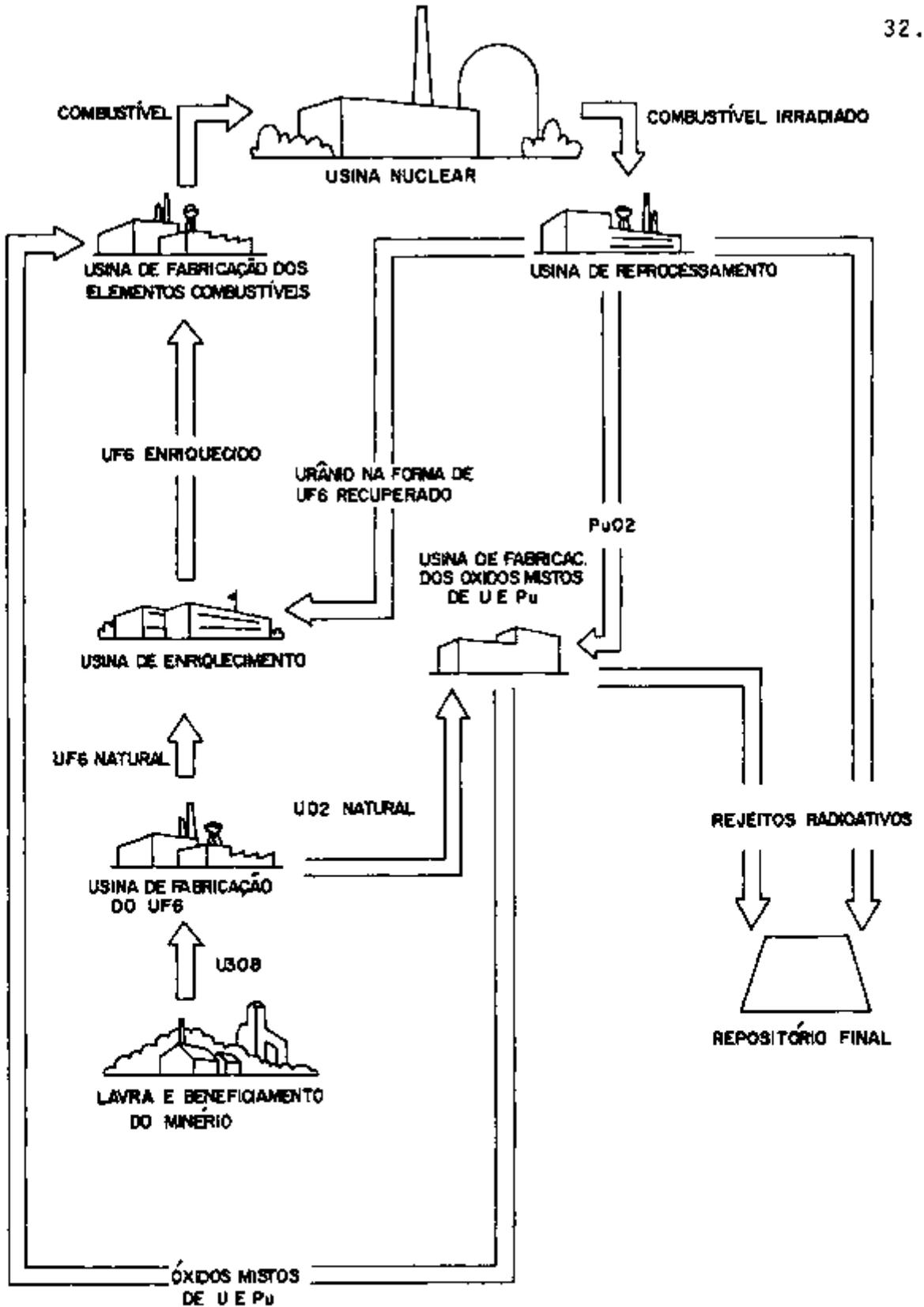


Figura 2.3 - Alternativa III - Operação do ciclo do combustível nuclear, com reciclagem do urânio e do plutônio.

que no caso anterior, devido a introdução da usina de fabricação de óxidos mistos de urânio e plutônio. Em princípio, todo o rejeito dessa usina é considerado contaminado com elementos transurânicos. Os demais resíduos gerados antes da irradiação são semelhantes àqueles produzidos nas alternativas anteriores.

2.2. FONTES DOS RESÍDUOS RADIOATIVOS NO CICLO DO COMBUSTÍVEL NUCLEAR.

Esta secção descreve as unidades do ciclo do combustível nuclear sob o ponto de vista da geração do rejeito radioativo.

2.2.1 MINERAÇÃO

A lavra do urânio pode ser feita a céu aberto ou subterraneamente. As operações subterrâneas envolvem a abertura de poços, galerias e túneis de acesso, a instalação de elevadores, a colocação de bombas para a retirada da água subterrânea e de outros equipamentos necessários a esse tipo de lavra. A extração do minério a céu aberto é bem mais simples e envolve grandes escavações, a remoção da cobertura de solo e a utilização de máquinas pesadas para a retirada do minério. Tanto na lavra a céu aberto como na subterrânea são produzidos resíduos radioativos sólidos, líquidos e gasosos.

Resíduos produzidos na mineração.

Os resíduos gasosos e os transportados pelo ar consistem de partículas de urânio em suspensão e do radônio e seus produtos de decaimento dispersos no ar. Acredita-se que, a 600 metros de distância do ponto de liberação, a radioatividade proveniente desses materiais esteja abaixo dos limites de detecção.

Os resíduos sólidos produzidos são principalmente a rocha estéril e a cobertura de solo. Em ambos os casos, a radioatividade é muito baixa. Apenas uma pequena quantidade de urânio é perdida nesses materiais.

O rejeito líquido proveniente da lavra a céu aberto consiste principalmente de água de drenagem da mina. Essa água contém urânio dissolvido e na forma de partículas, e outros sólidos em suspensão.

A radioatividade dos detritos sólidos, líquidos e gasosos produzidos na mineração é bastante baixa. Assim sendo, em seu tratamento podem ser usados os mesmos métodos empregados para materiais não radioativos. Nessa etapa do ciclo do combustível não existem problemas tecnológicos relevantes em relação aos resíduos.

2.2.2 BENEFICIAMENTO DO MINÉRIO (CONCENTRAÇÃO E PURIFICAÇÃO)

A função da usina de beneficiamento é extrair o urânio do minério por meio de processos químicos e mecânicos e transformá-lo em um produto semi-refinado denominado concentrado de urânio ("yellow cake").

Os dois métodos de lixiviação mais usados nos países produtores de urânio são:

- a. Método de Lixiviação Ácida.
- b. Método de Lixiviação com Carbonato de Sódio.

Restringimo-nos à descrição do 1º método, por ser o que está sendo usado, em Poços de Caldas, na extração do urânio.

Método de Lixiviação Ácida

As etapas básicas do processo de lixiviação ácida são:

- 1 - Trituração do minério e transferência do material moído e misturado com água para os tanques de lixiviação.
- 2 - Mistura do minério moído com ácido sulfúrico e mais um reagente oxidante, para que ocorra a lixiviação. Os resíduos são separados e o licor (material aproveitável) é enviado às unidades de extração com solvente.
- 3 - Extração com solvente, purificação e contração.
- 4 - Precipitação do urânio com amônia. O precipitado é transferido, na forma de uma pasta fluida, ao centrífugador.
- 5 - Centrifugação e separação da parte expressa mais pesada. O concentrado formado é transferido para o forno de cal

cinação.

6 - Calcinação e pulverização.

7 - Acondicionamento do concentrado de urânio, em pó, em embalagens apropriadas. (Nos Estados Unidos empregam-se recipientes de $0,2 \text{ m}^3$). Esse material possui, em média, 70 - 90% de U_3O_8 .

Resíduos produzidos no Beneficiamento do Minério

As operações de beneficiamento produzem resíduos na forma gasosa, líquida e sólida.

Os resíduos gasosos consistem principalmente de ar carregado de partículas em suspensão e de gases radioativos. A poeira contendo urânio e seus produtos de decaimento é liberada dos sistemas de ventilação e de retenção das impurezas dispersas na atmosfera interna da usina e dos materiais recém-lavrados. O urânio natural, na forma de partículas finas, também é liberado durante o acondicionamento do concentrado. O radônio emana das pilhas de minério, dos sistemas de ventilação dos tanques de lixiviação e dos sistemas de exaustão do local onde é feita a pulverização do concentrado de urânio. A concentração das partículas sólidas radioativas liberadas no meio ambiente é limitada por sistemas especiais que coletam e retêm tais impurezas.

Os resíduos líquidos do beneficiamento consistem em soluções

contendo produtos químicos provenientes dos processos de trituração, de lixiviação e da limpeza dos equipamentos. Se a concentração do ^{226}Ra e do ^{230}Th estiver acima de um determinado limite de segurança, a dispersão desses líquidos, no meio ambiente é evitada. Nesse caso, os líquidos contaminados são estocados em tanques especiais e posteriormente tratados.

Os resíduos sólidos do beneficiamento consistem principalmente de partículas de argila e de fragmentos dos minerais pertencentes à rocha geradora do minério. Associados a esse material, encontram-se ainda traços de produtos químicos usados. Esse rejeito recebe um tratamento especial para minimizar a concentração local de ^{222}Rn (produto do decaimento do ^{226}Ra) e para evitar que suas partículas dispersem-se no ar.

2.2.3 PRODUÇÃO DE HEXAFLUORETO DE URÂNIO

Antes do enriquecimento, o concentrado de urânio (U_3O_8) deve ser convertido no hexafluoreto de urânio (UF_6).

Dois processos são usados, com maior frequência, na produção do UF_6 . O primeiro deles compreende as seguintes etapas:

- 1 - Pesagem e amostragem inicial.
- 2 - Redução do U_3O_8 , em leito fluidizado, com amônia.

- 3 - Fluoração, em leito fluidizado, com HF anidro e formação do UF_4 .
- 4 - Destilação fracionada e formação do UF_6 refinado.

O segundo processo compreende as seguintes operações:

- 1 - Pesagem e amostragem inicial .
- 2 - Digestão, a quente, em ácido nítrico .
- 3 - Extração com tri-butil-fosfato (TBP).
- 4 - Reextração do urânio na forma de nitrato de urânio, em solução aquosa .
- 5 - Calcinação e formação UO_3 .
- 6 - Redução a UO_2 , em leito fluidizado, com amônia.
- 7 - Fluoração e formação do UF_4 , usando HF anidro.
- 8 - Formação do UF_6 , pela reação do UF_4 com flúor elementar.

A principal diferença entre os dois processos está em que o segundo processo começa com uma extração com solvente para purificar o concentrado de U antes da fluoração, enquanto que, no primeiro, o concentrado de U é convertido em UF_6 e posteriormente purificado por destilação fracionada.

Resíduos Gerados na Produção do Hexafluoreto de Urânio

Os detritos dos dois processos diferem substancialmente. No primeiro, os resíduos são sólidos e gasosos e no segundo os

resíduos possuem a forma líquida. Nesse último processo, os líquidos mais contaminados provêm da extração com solvente. Tais líquidos não são liberados diretamente no ambiente, ficando inicialmente armazenados em tanques, onde ocorre a evaporação. Os resíduos sólidos do primeiro processo são cinzas não voláteis, contendo ferro, cálcio, magnésio, cobre e alguns fluoretos não voláteis. A quantidade de cinzas produzidas atinge cerca de 40 toneladas/1000 MWe-ano. Esse material é embalado e enterrado.

2.2.4 ENRIQUECIMENTO DO URÂNIO

O processo de enriquecimento é usado para aumentar a concentração do isótopo ^{235}U no urânio natural. A concentração do ^{235}U encontrado na natureza é de cerca de 0,711% e a porcentagem necessária ao funcionamento dos reatores térmicos, moderados por a água leve, varia entre 2 e 4%.

Os dois métodos comercialmente utilizáveis para o enriquecimento são: a difusão gasosa e a ultra-centrifugação.

A difusão gasosa baseia-se no princípio de que a taxa pela qual um gás passa por um pequeno orifício está relacionada com a massa e com a velocidade das moléculas gasosas. O enriquecimento é feito usando-se barreiras porosas, através das quais as moléculas de gás se difundem.

A ultra-centrifugação fundamenta-se no princípio

de que o poder máximo de separação é proporcional à quarta potência da velocidade periférica, a qual, por sua vez, é limitada pelas características físicas do material usado em sua construção.

No Brasil será empregado um terceiro método de enriquecimento, denominado de jato-centrífugo. Na separação isotópica por esse processo é utilizado o campo centrífugo de um fluxo curvo obtido pelo desvio de um gás, contendo o isótopo a ser enriquecido, em uma parede curva. No fluxo curvo formam-se distribuições de isótopos que dependem, como na centrifugação, de seus pesos moleculares. O gás usado no enriquecimento pelo processo do jato centrífugo é uma mistura de UF_6 e hidrogênio.

Resíduos produzidos no processo de enriquecimento

Nos processos de separação isotópica, além do urânio enriquecido, são produzidas grandes quantidades de urânio empobrecido. A concentração do ^{235}U na parte empobrecida varia entre 0,2% a 0,3%. Esse material é armazenado em cilindros especiais, na forma de UF_6 , que, à temperatura ambiente, é sólido, ou na forma de UF_4 .

As quantidades de rejeitos gerados nos processos de difusão gasosa e de centrifugação são diferentes. No primeiro caso os resíduos provêm da limpeza dos equipamentos e da recuperação do urânio contido nas barreiras de difusão, danificadas. No processo de centrifugação, além desses detri-

tos, são produzidos grandes quantidades de peças quebradas e inutilizáveis. Estima-se que seja gerado, anualmente, 56 vezes mais rejeito em uma usina de centrifugação do que em uma usina de difusão gasosa de igual capacidade. No presente, ainda não se dispõe de informações dessa natureza em relação ao processo do jato-centrífugo.

Os resíduos líquidos produzidos na difusão gasosa e na centrifugação provêm da limpeza dos equipamentos e contêm fluoretos, nitratos e cloretos contaminados com urânio.

Os resíduos sólidos, nos processos mencionados, - consistem de partículas dispersas nos líquidos usados na limpeza da usina e nos equipamentos danificados durante o enriquecimento. Esses materiais normalmente são embalados e enterrados em local próximo à usina.

2.2.5 FABRICAÇÃO DO COMBUSTÍVEL

Na usina de fabricação dos elementos combustíveis são realizadas as seguintes operações:

1. O hexafluoreto de urânio, UF_6 , é convertido em dióxido de urânio, UO_2 .
2. O dióxido de urânio é transformado em pastilhas e sinterizado.
3. As pastilhas são colocadas em tubos de "zircaloy".
4. Os tubos de "zircaloy" são selados, soldados nas extremidades, formando as varetas de combustível.

5. As varetas de combustível são montadas em grupos, denominados conjuntos combustíveis.

Além dessas operações, são feitas a recuperação e a reutilização do urânio perdido durante a fabricação.

As principais etapas do processo de conversão do UF_6 em UO_2 são:

1. Aquecimento, transformação do UF_6 em gás e transferência desse material para um reator, onde é feita a hidrólise.
2. Hidrólise do UF_6 pela interação do gás com água, formando uma solução de UO_2F_2 .
3. Adição do hidróxido de amônio e precipitação do diuranato de amônio (DUA).
4. Centrifugação do precipitado de diuranato de amônio.
5. Aquecimento e secagem do composto.
6. Calcinação do diuranato de amônio e formação do dióxido de urânio (UO_2), em pó, em atmosfera redutora (hidrogênio e nitrogênio).

As principais etapas executadas na fabricação dos elementos combustíveis, após a obtenção do UO_2 , são:

1. Compactação de pó de UO_2 até a consistência desejada.
2. Transformação em pastilhas.
3. Sinterização.
4. Desgaste das pastilhas até que estas tomem as dimensões adequadas.
5. Lavagem.
6. Colocação das pastilhas em tubos metálicos. Soldagem das

tampas.

7. Montagem das varetas combustíveis nos conjuntos combustíveis.

Durante todo o processo de fabricação, são feitos testes rigorosos de controle da qualidade. Os materiais defeituosos voltam à linha de fabricação, até que se encontrem perfeitamente dentro das normas técnicas apropriadas. A recuperação do urânio contido em materiais danificados durante a fabricação dos elementos combustíveis é feita nas seguintes etapas:

1. Dissolução do urânio em ácido nítrico, formando o nitrato de urânio.
2. Purificação do urânio por extração com solvente.
3. Precipitação do óxido de urânio hidratado com hidróxido de amônio e peróxido de hidrogênio.
4. Secagem e formação do U_3O_8 .
5. Redução do U_3O_8 a UO_2 , na forma de pó.

O urânio recuperado é transformado em pastilhas, - voltando à linha de produção dos elementos combustíveis.

Durante a fabricação do combustível e nas operações de limpeza dos equipamentos da usina, são produzidos resíduos nas formas sólidas, líquida e gasosa.

Resíduos Produzidos na Fabricação do Combustível

Os resíduos gasosos consistem do ar carregado de partículas provenientes do processo de conversão do UF_6 em UO_2 e das

operações de recuperação do urânio contido nos equipamentos danificados. Antes de ser liberado na atmosfera, o ar passa por meios filtrantes que retiram as partículas em suspensão, como por exemplo, os filtros de alta eficiência para partículas. ("HEPA filters-high efficiency particulate air filters").

Os resíduos radioativos líquidos provêm do processo de conversão do UF_6 em UO_2 e das operações de limpeza dos equipamentos. Esse rejeito consiste principalmente de líquidos contendo urânio e $^{234}T\ddot{h}$ ório. O ^{234}Th é produto de decaimento do ^{238}U e possui uma meia vida de 24 dias. Assim sendo, sua quantidade vai aumentando vagarosamente à medida que o combustível vai sendo produzido.

Estima-se que a atividade proveniente do urânio seja cerca de 20 mCi/1000 MWe-ano e a do tório 10 mCi/1000MWe-ano.

Os resíduos sólidos da fabricação do combustível consistem principalmente de CaF_2 contaminado. O precipitado de fluoreto de cálcio é obtido no tratamento dos líquidos provenientes do processo de conversão de UF_6 em UO_2 e nas operações de recuperação do urânio contido nos materiais danificados no processo de produção. Normalmente o CaF_2 contaminado é acondicionado e enterrado no próprio local da usina. A quantidade de resíduos sólidos produzidos é estimada em 26 toneladas/1000 MWe-ano, contendo a atividade de 0,06 Ci de U.

2.2.6 IRRADIAÇÃO NO REATOR

Depois de fabricados, os elementos combustíveis são inspecionados, testados quanto à sua integridade e colocados no reator. O tempo de irradiação, a taxa de queima, o enriquecimento e a fração dos elementos combustíveis a ser substituída periodicamente são determinados depois de considerações técnicas e econômicas envolvendo todo o ciclo do combustível.

Após a irradiação, o combustível é retirado do reator e armazenado por 120 a 180 dias em tanques especiais, para permitir o decaimento dos núclídeos de meia-vida curta e a diminuição da quantidade de calor gerado. Após esse período, o combustível é transportado à usina de reprocessamento ou a um local apropriado à estocagem definitiva. Assim sendo, a maioria da radioatividade gerada não permanece no local da usina, senão temporariamente.

A maior parte das substâncias radioativas presentes em uma usina nuclear foram originalmente geradas no circuito primário, ou formadas nas suas proximidades. Em condições normais de operação, esses materiais ficam retidos no moderador ou nos sistemas de purificação a ele associados. Caso ocorram falhas nesses sistemas, as substâncias radioativas serão liberadas e coletadas em outras instalações da usina.

No tratamento e purificação do moderador, nas operações de manutenção da usina e na substituição dos equipamentos danificados produzem-se diversos tipos de resíduos radioativos. A figura 2.4 apresenta um fluxograma típico do tratamento do

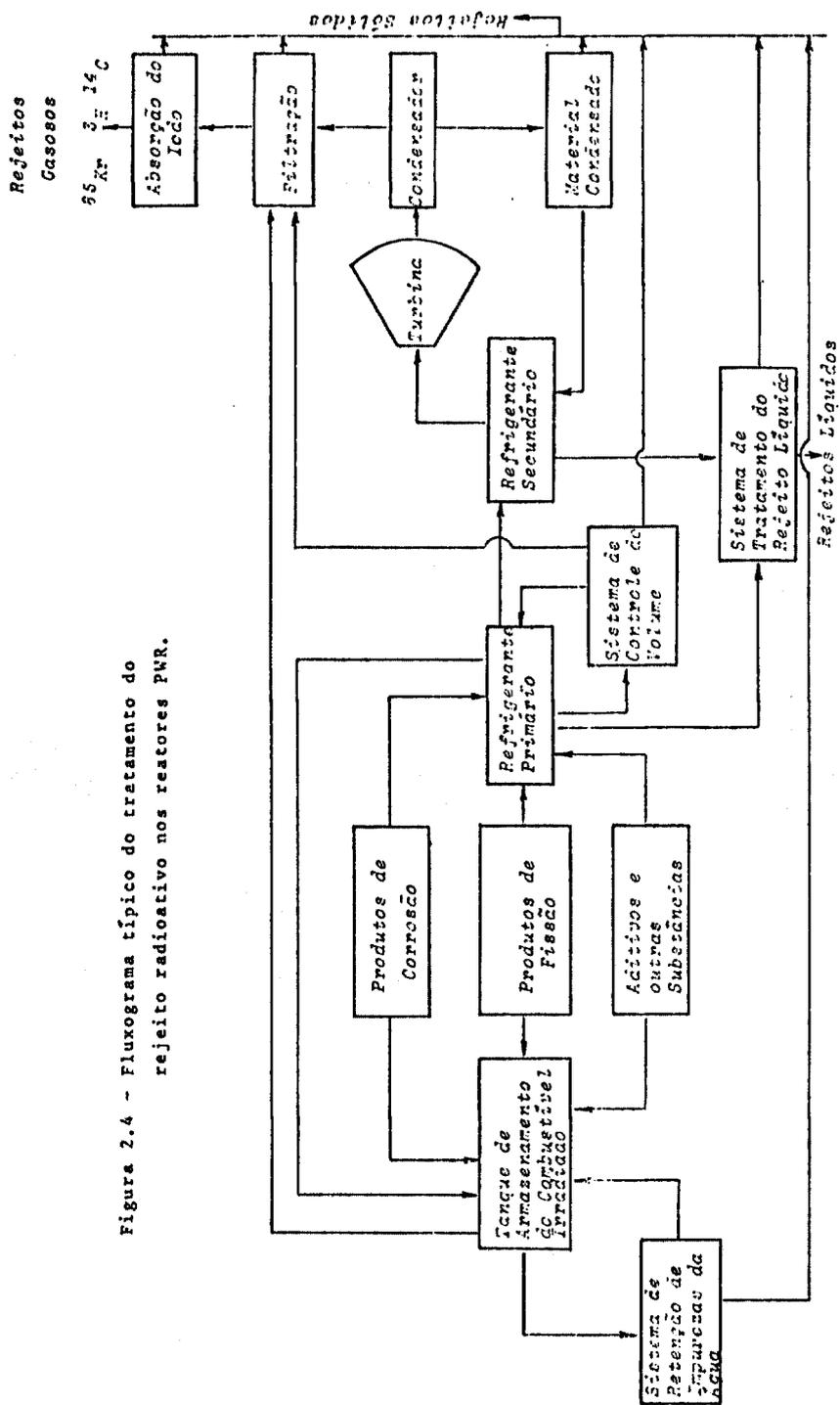


Figura 2.4 - Fluxograma típico do tratamento do rejeito radioativo nos reatores PWR.

rejeito radioativo nos reatores PWR.

A Radioatividade Gerada no Circuito Primário de Refrigeração

Uma série de materiais radioativos encontram-se dispersos no circuito primário. Os principais são os produtos de fissão e de ativação.

Os Produtos de Fissão

Uma pequena fração dos elementos combustíveis, durante a operação das centrais nucleares, apresenta defeitos, os quais - permitem o escape de produtos de fissão no circuito primário de refrigeração. Os nuclídeos mais importantes, nesse caso, são os isótopos de xenônio, criptônio e iôdo. A tabela 2.1 - mostra a atividade esperada no moderador do reator Angra II devida aos produtos de fissão. A concentração de radioatividade no circuito primário depende não apenas da taxa de liberação dos produtos de fissão, mas também da eficiência dos sistemas de purificação disponíveis. Na tabela 2.1 considera-se que 10% e 20% do moderador são tratados por hora.

Outro nuclídeo bastante importante é o trítio, produzido no combustível por fissão ternária. O trítio possui - uma meia-vida de 12,4 anos e emite radiação beta com energia máxima de 18 KeV. Para a usina Angra II, espera-se uma concentração de 0,1 Ci/t de trítio formado por fissão ternária. Acredita-se que 1% do trítio formado, dessa maneira, escape

TABELA 2.1 Atividade dos produtos de fissão no Sistema Primário de Refrigeração de Angra II.

Nuclídeos	meias-vidas	Atividade em Ci/t para as taxas de purificação de	
		32t/h	66t/h
^{85m}Kr	4,4 h	0,97	0,67
^{85}Kr	10,3 a	$3,5 \times 10^{-3}$	$1,7 \times 10^{-3}$
^{87}Kr	1,3 h	1,6	1,3
^{88}Kr	2,8 h	2,5	1,8
^{133}Xe	5,3 d	1,9	0,93
^{135}Xe	9,1 h	4,1	2,7
Total (gases inertes)		11	7,4
^{131}I	8,1 d	0,86	0,42
^{132}I	2,3 h	3,4	2,6
^{133}I	21,0 h	4,7	2,6
^{134}I	0,9 h	4,2	3,7
^{135}I	6,7 h	4,9	3,2
Total (Iodo)		18	12,5
^{90}Sr	28 a	$9,0 \times 10^{-5}$	$4,3 \times 10^{-5}$
^{137}Cs	27 a	-	-

dos elementos combustíveis.

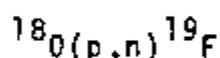
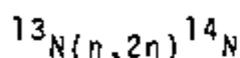
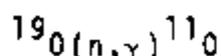
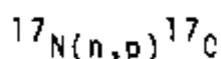
Pequenas quantidades de produtos de fissão formam-se diretamente no moderador devido a contaminação pelo urânio das partes externas dos elementos combustíveis.

Os Produtos de Ativação

O campo de radiação existente nas imediações do cerne do reator pode provocar a ativação dos elementos químicos formadores do moderador e dos materiais estruturais.

Sob o ponto de vista de blindagem, o produto de ativação mais importante é o ^{16}N , formado pela reação $^{16}\text{O}(n,p)^{16}\text{N}$. O decaimento do ^{16}N é acompanhado pela emissão de radiação gama intensa, com energia de 6 a 8 Mev. A meia-vida desse nuclídeo é 7,35s e, conseqüentemente, sua concentração nos sistemas de tratamento do moderador é negligenciável.

Outros radioelementos de meia-vida curta, produtos de ativação, são o ^{17}N , ^{19}O , e o ^{13}N formados pelas reações:



A atividade desses nuclídeos é de pouca importân-

cia, face à atividade total do moderador.

A maior parte do trítio existente no circuito primário é produzida pela ativação do boro que é misturado ao moderador para facilitar o controle do reator. O ^{10}B captura os neutrons rápidos e decai em duas partículas α e um núcleo de trítio. Esse elemento ainda é produzido pela ativação do ^{11}B , do lítio e do deutério existentes na água de refrigeração. A atividade total estimada para o trítio formado dessa maneira, para Angra II, é 0,6 Ci/t.

O ^{14}C é formado durante a irradiação e pode também escapar dos elementos combustíveis e vir a misturar-se no circuito primário. Esse elemento pode ser produzido de três maneiras diferentes. A primeira é pela reação $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ com as impurezas de nitrogênio do combustível. A segunda com o oxigênio do material cerâmico. A última reação, $^{13}\text{C}(n,\gamma)^{14}\text{C}$, dá-se com as impurezas de carbono do combustível e constitui uma fonte negligenciável de ^{14}C , uma vez que a seção de choque do ^{13}C para a reação é muito baixa.

Durante a operação do reator, algumas partes do circuito primário sofrem corrosão. Os elementos provenientes da corrosão dos equipamentos e dos materiais estruturais do reator tornam-se ativados quando submetidos à radiação emitida no cerne. Os produtos de corrosão mais importantes são: ^{51}Cr , ^{54}Mn , ^{54}Fe , ^{59}Fe , ^{58}Co , ^{60}Co e o ^{95}Zr . A tabela 2.2 apresenta a atividade esperada dos principais produtos de

corrosão, no reator Angra II.

Tabela 2.2 Atividade dos Produtos de Corrosão Mais Importantes no Sistema Primário de Refrigeração de Angra II.

Nuclídeo	Meia-Vida	Atividade Ci/t
^{51}Cr	27,8 d	2×10^{-3}
^{54}Mn	303 d	2×10^{-4}
^{59}Fe	45 d	2×10^{-4}
^{58}Co	71 d	2×10^{-3}
^{60}Co	5,2 a	6×10^{-4}
^{95}Zr	65 d	$\frac{1 \times 10^{-4}}{}$
<u>Total</u>		5×10^{-3}

A purificação do circuito primário é feita, no Sistema de Controle do Volume ("Volume Control System"), por meio de um trocador iônico e de um extrator de gases. O trocador iônico é dotado de duas resinas, uma contendo Li^+ e a outra H^+ . A primeira é a mais usada e a que possui maior eficiência para os nuclídeos radioativos, com exceção do césio (fator de descontaminação de 10-1000). A segunda resina é usada quando se deseja reduzir a concentração de césio e de lítio no arrefecedor. A tabela 2.3 mostra a atividade esperada associada às resinas, para Angra II, depois de seis meses de

utilização.

Tabela 2.3 Atividade das resinas de troca iônica
depois de 6 meses de utilização.

Nuclídeo	Atividade das Resinas em Ci, depois dos períodos de decaimento, em meses, indicados.				
	0	1	3	6	12
^{51}Cr	60	30	6	0,6	7×10^{-3}
^{54}Mn	23	20	18	15	9,5
^{59}Fe	10	6	2,3	0,6	0,04
^{58}Co	130	97	54	22	3,7
^{60}Co	80	80	80	76	70
^{95}Zr	6	4	2,3	1	0,1
^{131}I	7700	560	3	0	0
^{132}I	350	0	0	0	0
^{133}I	4500	0	0	0	0
^{134}I	170	0	0	0	0
^{135}I	1500	0	0	0	0
^{90}Sr	12	12	12	12	12
^{137}Cs	220	220	220	220	220
Total	15000	1000	400	350	310

Resíduos Radioativos Produzidos na Usina Nuclear

Resíduos gasosos

Além dos produtos de fissão e de ativação gasosos, anteriormente mencionados, outros nuclídeos na forma gasosa podem - causar a contaminação das instalações da usina nuclear e consequentemente vir a tornar-se parte do rejeito radioativo.

A contaminação do ar no prédio do reator pode de- ver-se a duas causas. A primeira é a ativação do ar, próxi- mo ao vaso de pressão. A segunda é o escape de substâncias radioativas, na forma gasosa, decorrente de falhas no circuito primário.

A ativação do ar ocorre apenas no espaço existen- te entre o vaso de pressão e a blindagem. O principal nuclíideo formado no processo é o ^{41}Ar . Como esse compartimento é isolado das demais instalações da usina, a probabilidade de contaminação é pequena.

As substâncias radioativas que escapam do circui- to primário ficam retidas nas instalações da usina. O ar dessas instalações é continuamente filtrado, diluído e liberado na atmosfera. O fator de retenção dos filtros é cerca de 99% para halogênios e 99,9% para outros nuclídeos, com exce- ção dos gases inertes e do trítio.

Os produtos de fissão gasosos extraídos do moderador, no sistema de controle do volume ("Volume Control System"), passam por filtros de carvão, são retidos durante

algum tempo e, em seguida, liberados na atmosfera. Durante o período de retenção, ocorre o decaimento dos isótopos do criptônio e do xenônio, de meia-vida curta. A concentração de ^{133}Xe é substancialmente diminuída. O ^{85}Kr , devido à sua longa meia-vida, não atinge o equilíbrio, nem no combustível e nem no moderador. Assim sendo, esse isótopo é liberado no ambiente sem redução em sua concentração. O trítio presente no circuito primário também é liberado no meio.

Resíduos Líquidos

O sistema de tratamento dos resíduos líquidos é composto por evaporadores, filtros e trocadores iônicos. Os efluentes líquidos depois de passarem por esses equipamentos são coletados em tanques de monitoração, onde a atividade é medida. A liberação desses líquidos no ambiente só é feita se suas atividades não excederem $0,5 \text{ mCi/m}^3$ e, caso contrário, os efluentes voltam ao sistema de tratamento. A tabela 2.4 apresenta algumas informações sobre os resíduos, na forma líquida, que serão produzidos em Angra II.

Resíduos Sólidos

Os resíduos sólidos produzidos nas usinas nucleares consistem, principalmente, das resinas de troca iônica usadas na purificação do moderador, das substâncias concentradas no evaporador, dos materiais usados na limpeza e na descontamina-

Tabela 2.4 - Resíduos, na forma líquida, que serão produzidos em Angra II.

DESCRIÇÃO	Quantidade (m ³ /dia)	Atividade (Ci/m ³)
Água contaminada com elementos radioativos provenientes dos diversos compartimentos da usina	0 a 2	10 ⁻⁴ a 1,0
Líquidos provenientes dos laboratórios	0,5 a 1	10 ⁻⁵ a 10 ⁻²
Líquidos provenientes das operações de descontaminação	1 a 5	10 ⁻⁴ a 10 ⁻²
Líquidos provenientes do Sistema de Tratamento do Moderador	6	10 ⁻⁶ a 10 ⁻³
Líquidos provenientes da lavanderia	5 a 10	10 ⁻⁶ - 10 ⁻⁴

ção da usina (papéis, plásticos, etc.) e nos detritos produzidos na lavanderia.

As resinas, depois de retiradas do reator, são armazenadas durante 6 meses e, em seguida, recolhidas definitivamente a um local apropriado. As substâncias concentradas no evaporador e aquelas retidas nos filtros são tratadas de maneira análoga. Os demais materiais contaminados (roupas, papéis, plásticos etc.) são prensados, embalados e armazenados. Os filtros, quando imprestáveis, são colocados em recipientes especiais e enviados ao repositório final.

Alguns materiais de grande porte, como as barras de controle, as guias das barras de controle e outros componentes estruturais, quando danificados, são cortados em partes menores, descontaminados, embalados e armazenados.

2.2.7 ARMAZENAMENTO DO COMBUSTÍVEL IRRADIADO

As operações executadas nas instalações de estocagem dos elementos combustíveis são a armazenagem, a refrigeração, a inspeção e o controle dos materiais radioativos liberados dos elementos combustíveis danificados.

Nos tanques de armazenamento é gerada uma série de resíduos radioativos que carecem de operações especiais de tratamento. O rejeito é composto dos materiais em

pregados na remoção da radioatividade introduzida, na água dos tanques, pelos elementos combustíveis irradiados.

Os tanques de armazenamento são construídos normalmente no próprio local do reator, ou nas usinas de reprocessamento. As operações executadas na remoção da radioatividade - são semelhantes nos dois casos e serão descritas conjuntamente mais adiante.

Características dos Tanques de Armazenamento do Combustível Irrradiado nas Usinas Nucleares.

Os tanques existentes nas usinas PWR de 1000 MWe - normalmente possuem a capacidade de armazenar o material contido em 1,5 cerne. Atualmente, eles vem sendo reprojctados para comportar de 3 a 5 vezes a quantidade de combustível existente no núcleo do reator. Em algumas usinas, a transferência do combustível, do cerne para o tanque, é feita por um canal que liga esses dois locais. Nessa operação, a água dos tanques mistura-se ao moderador tornando-se contaminada.

Características dos Tanques de Armazenamento do Combustível Irrradiado nas Usinas de Reprocessamento.

A capacidade desses tanques de armazenamento varia de acordo - com as dimensões da usina. Nos EUA, a usina de Barnwell possui tanques com capacidade para receber 360 toneladas de material pesado. Os da usina de Midwest podem armazenar 90 toneladas de metal pesado.

Ao chegarem na usina de reprocessamento, os recipientes contendo os combustíveis irradiados são inspecionados e monitorados. Caso não haja contaminação, a embalagem é lavada fora da usina e, caso contrário, no interior da mesma. Os efluentes usados na lavagem são enviados ao sistema de tratamento de líquidos. As embalagens, em seguida, são descontaminadas e secadas. O ar usado no processo é enviado ao sistema de tratamento do rejeito gasoso. O refrigerante dos elementos combustíveis é retirado e transferido ao sistema de tratamento do rejeito líquido. As embalagens são abertas, os elementos combustíveis retirados, colocados em recipientes especiais e armazenados. Os recipientes usados no transporte são descontaminados, colocados nos veículos de carga e enviados novamente às usinas nucleares.

As maiores fontes de contaminação da água dos tanques de armazenagem, nas usinas de reprocessamento, são os materiais radioativos que se aderem à superfície dos encamisamentos. Esses depósitos consistem de produtos de corrosão ativados e de pequenos pedaços dos elementos combustíveis danificados. Os principais produtos de corrosão radioativos são: ^{58}Co , ^{60}Co , ^{54}Mn , ^{51}Cr , ^{51}Fe e ^{95}Zr . Os produtos de fissão mais importantes, sob o ponto de vista de contaminação, são: ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{106}Ru - ^{106}Rh , ^{95}Zr - ^{95}Nb , ^{124}Sb , ^{144}Ce , ^{129}I e ^{131}I .

As operações executadas para remover a radioati-

vidade da água dos tanques de armazenamento são, principalmente, a filtração e a troca iônica. Tais operações são feitas para diminuir o nível de radiação próximo aos tanques e manter a água suficientemente limpa, para permitir a observação dos trabalhos submersos executados.

A circulação do ar nas instalações dos tanques é feita por meio de circuladores e aparelhos de ar condicionado. O ar usado na secagem das embalagens empregadas no transporte, antes de ser liberado no ambiente, passa por um sistema de exaustão dotado de filtros ("HEPA filters") de alta eficiência para partículas e por meios absorvedores de iodo.

Os resíduos provenientes da operação dos tanques de armazenamento são os materiais retidos nos diversos meios absorvedores. Os filtros, as resinas de troca iônica e os leitos absorvedores de iodo, quando danificados, tornam-se também parte do rejeito.

2.2.8 REPROCESSAMENTO

Os resíduos radioativos de maior atividade, no ciclo do combustível nuclear, são gerados no processo de recuperação do urânio e separação do plutônio, nas usinas de reprocessamento.

As operações de reprocessamento iniciam-se com a recepção do combustível e terminam com a fabricação e o acon

dicionamento do dióxido de plutônio e do hexafluoreto de urânio. O processo "Purex", por ser o mais conhecido, foi usado na descrição das operações e dos resíduos gerados na usina.

As principais operações executadas na usina de reprocessamento são:

1. Recepção do combustível.
2. Armazenamento temporário do combustível.
3. Desmontagem dos conjuntos combustíveis e retalhamento em pequenos pedaços.
4. Lixiviação do combustível com ácido nítrico.
5. Preparação da solução ácida alimentadora do processo de extração com solvente.

As etapas mais importantes do Processo Purex são:

1. Separação do urânio e do plutônio, dos produtos de fissão, por extração com solvente
2. Purificação do urânio e do plutônio.
3. Fabricação do UF_6 e do PuO_2 .

Durante o reprocessamento, ainda são feitos o tratamento do rejeito radioativo, a manutenção, a descontaminação da usina, os serviços analíticos, além de outras atividades de menor importância. A figura 2.5 apresenta as principais etapas do reprocessamento.

Operações Iniciais

As primeiras operações executadas na usina de reprocessamento

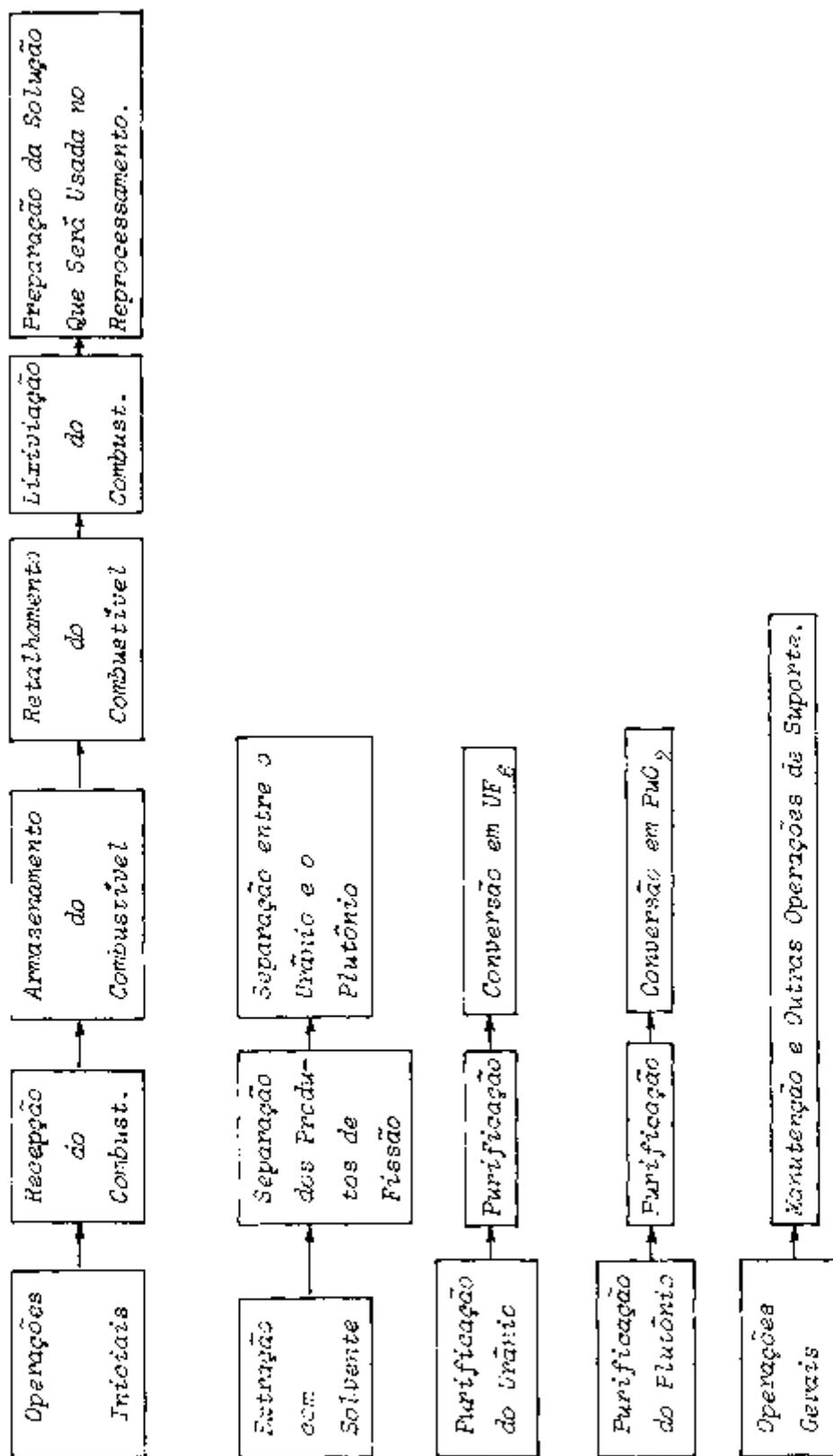


Figura 2.5 - Etapas principais executadas no reprocessamento.

consistem na lavagem das embalagens dos elementos combustíveis e na colocação das mesmas nos tanques de armazenamento. Os detritos radioativos desse estágio inicial foram descritos em 2.2.7.

Após um determinado tempo de decaimento, normalmente de 120-180 dias, os conjuntos combustíveis são introduzidos na parte principal da usina de reprocessamento e desmontados. A desmontagem e a remoção do material metálico de grande porte - produz a redução de 10-15% na massa metálica do rejeito. Alternativamente, os conjuntos podem não ser desmontados. Esse procedimento reduz o número de operações a serem executadas e o número de tipos diferentes de rejeito. Os elementos combustíveis são retalhados em pequenos pedaços de 1-8cm, por cortadores mecânicos e introduzidos no vaso de dissolução, onde são tratados com ácido nítrico concentrado, em alguns casos - misturado com venenos neutrônicos. O material irradiado dissolve-se e passa à solução. O "Zircaloy", o aço inoxidável e o "Inconel" não são atacados no processo. Durante a dissolução, os gases nobres, os isótopos de iodo e o trítio são liberados, recolhidos e tratados pelo sistema de tratamento de resíduos gasosos. Em seguida, a solução é centrifugada e os sólidos em suspensão são removidos. Esses sólidos, na forma de uma pasta de materiais insolúveis, constituem o rejeito dessa etapa. A figura 2.6 ilustra as operações iniciais executadas no reprocessamento.

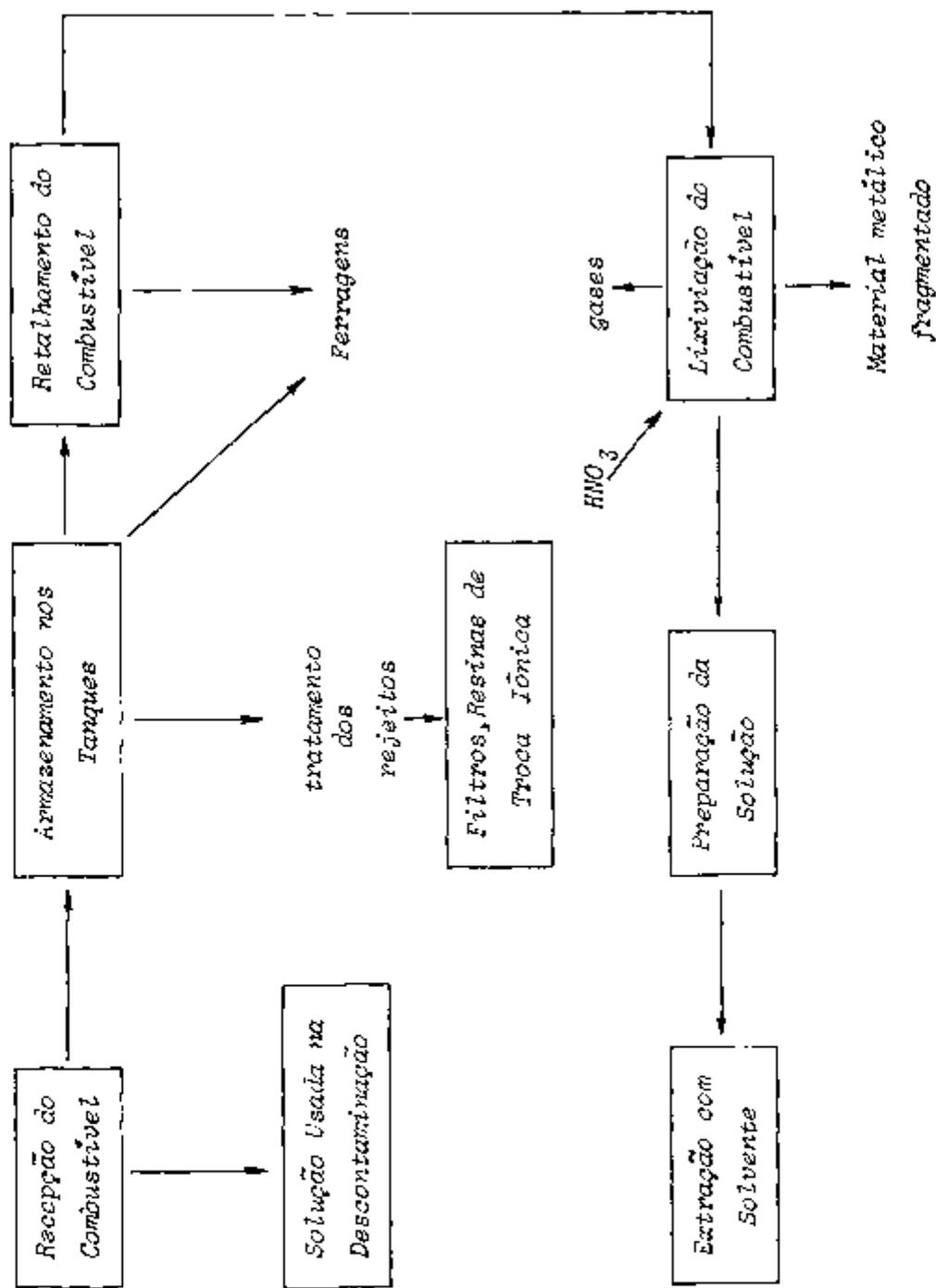


Figura 2.6 - Operações iniciais executadas no reprocessamento.

Extração com Solvente

No processo de extração com solvente, inicialmente o urânio e o plutônio são transferidos para a fase orgânica, deixando, na fase aquosa, os produtos de fissão, e pequenas quantidades de urânio e plutônio não separadas. Essa solução recebe o nome de rejeito líquido de alta atividade. Posteriormente, o urânio é separado do plutônio, ficando o primeiro na fase orgânica e o segundo na fase aquosa. Finalmente, o urânio é transferido também para a fase aquosa completando o processo de separação. Os resíduos produzidos nessa etapa são: o rejeito de atividade alta, o rejeito gasoso, o rejeito produzido nas operações de limpeza dos solventes e o formado durante a incineração dos solventes imprestáveis.

Na primeira fase da extração, a solução proveniente da centrifugação é misturada com tri-butil-fosfato (TBP). As condições de extração são ajustadas para que ocorra a transferência do U e do Pu para a fase orgânica. Nessa etapa, 99% dos produtos de fissão são separados e uma quantidade apreciável de gases radioativos são retidos no sistema de tratamento do rejeito gasoso. Posteriormente, a fase orgânica contendo o U e o Pu é misturada com ácido nítrico, ocorrendo a transferência do Pu novamente para a fase aquosa. O U permanece na fase orgânica. O último estágio do processo é a reextração do urânio dessa fase.

Após a realização das operações descritas, há neces

sidade de limpar-se o solvente orgânico usado no processo. A alta atividade dos produtos de fissão danifica parte do TBP e o torna inoperante nas extrações subsequentes. O sistema de limpeza do solvente utiliza um processo no qual a fase orgânica é tratada alternadamente com solução de Na_2CO_3 diluído e com ácido nítrico, para remover o material decomposto pela radiação. O rejeito desse processo é descrito mais adiante. O solvente, depois de ter sido extensivamente usado, torna-se também rejeito. Esse material pode ser misturado com um sólido e enterrado, ou ainda incinerado. Os gases provenientes da combustão são tratados pelo sistema de tratamento do rejeito gasoso. A figura 2.7 ilustra as etapas executadas na extração com solvente.

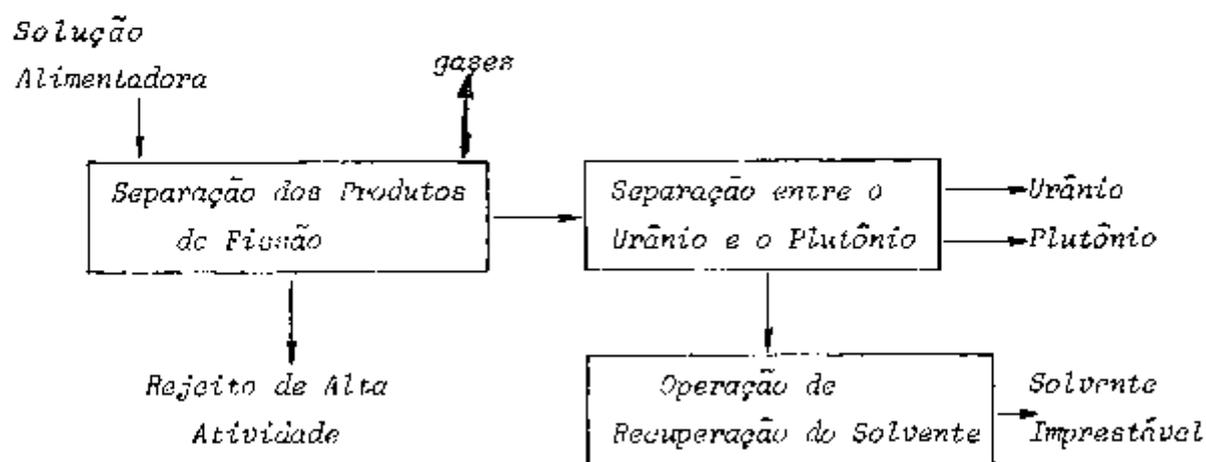


Figura 2.7 - Etapas principais executadas na operação de extração com solvente.

Purificação do urânio e fabricação do UF₆

A purificação do urânio envolve operações de extração com solvente semelhantes àquelas já descritas. Os resíduos dessa etapa são produzidos principalmente na limpeza e regeneração dos solventes e no tratamento dos materiais na forma gasosa.

A solução aquosa nítrica de urânio, obtida na separação entre o U e o Pu, contém impurezas de produtos de fissão que devem ser eliminadas antes da fabricação do UF₆. Para tanto, essa solução é misturada com tri-butil-fosfato, em condições apropriadas à transferência do U da fase aquosa para a fase orgânica, ficando, na primeira, as impurezas de produtos de fissão. A solução impura é concentrada e combinada com os demais resíduos aquosos contendo produtos de fissão. As condições de extração são reajustadas e o urânio é novamente transferido a uma outra solução nítrica. O processo é repetido várias vezes, até que sejam removidos os resíduos de produtos de fissão e seja produzida uma solução ácida contendo urânio com pureza suficiente para ser usada no processo de fabricação do UF₆.

Na produção do UF₆, a solução ácida de urânio é desidratada e aquecida. No aquecimento, o nitrato de urânio é transformado em trióxido de U e, em seguida, reduzido a dióxido de urânio. O UO₂ é convertido em UF₄ e posteriormente em UF₆, usando-se o F elementar. Os resíduos des-

As operações possuem radioatividade modesta, principalmente porque a solução alimentadora do processo foi submetida a uma purificação intensa. O rejeito gerado consiste principalmente nos gases, filtros, partes danificadas do sistema de tratamento de gases e uma miscelânea de sólidos coletados nos diversos meios absorvedores da usina. A figura 2.8 ilustra o processo de purificação do U.

Purificação do Plutônio e Fabricação do PuO_2

A purificação do Pu é feita por extração com solvente do nitrato de plutônio. O PuO_2 é fabricado pela calcinação de oxalato insolúvel de Pu.

Os resíduos do processo provêm, principalmente, das operações de limpeza dos solventes usados na extração. Os gases liberados durante a purificação do Pu são recolhidos e enviados ao sistema de tratamento do rejeito gasoso. Nesse sistema, são gerados alguns resíduos sólidos, notadamente os filtros e as partículas coletadas nos mesmos.

A solução nítrica obtida no processo de separação entre o U e Pu, não é suficientemente pura para ser usada na fabricação do PuO_2 . Na sua purificação normalmente são usados dois ciclos de extração com solvente. O sistema de extração é semelhante àquele descrito anteriormente e consiste em misturar a solução contendo Pu com o tri-butil-fosfato (TBP), sob condições adequadas. A retenção do Pu na fase

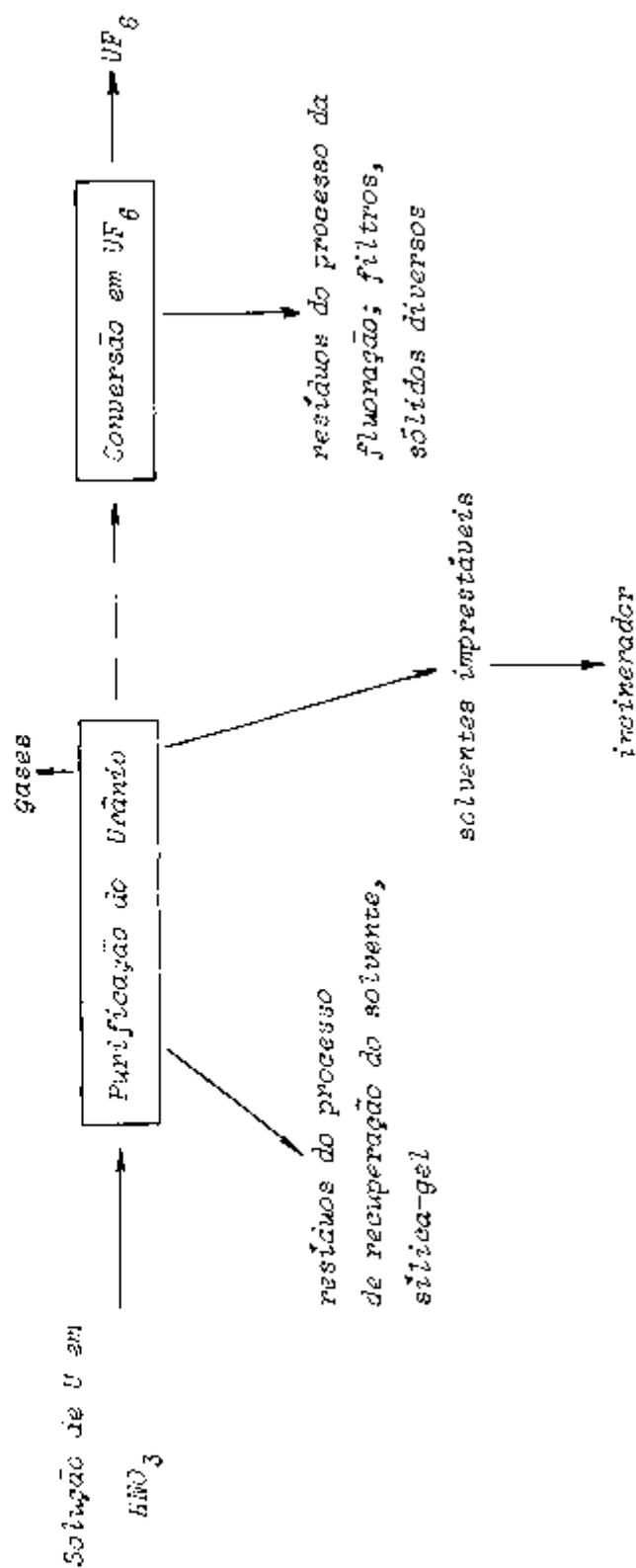


Figura 2.8 - O processo de purificação do urânio e os resíduos gerados no mesmo.

orgânica possibilita a separação dos produtos de fissão. Com uma variação nas condições de extração, o plutônio passa novamente à fase aquosa. A extração é repetida. A solução de nitrato de plutônio, suficientemente pura, é usada na produção do dióxido de plutônio.

A fabricação do PuO_2 envolve a obtenção, a filtração e a calcinação do oxalato insolúvel de Pu. No processo, são produzidos poucos resíduos contaminados, uma vez que, as perdas significativas de Pu são evitadas ao máximo, dado seu alto valor comercial.

Na recuperação das sobras de PuO_2 , o dióxido é dissolvido e, em seguida, purificado pelo método de extração com solvente. Nessa etapa, formam-se poucos detritos contaminados, em sua maioria aquosos.

Os gases produzidos no processo são recolhidos e enviados ao sistema de tratamento do rejeito gasoso. Os resíduos gerados nesse sistema consistem em soluções aquosas com pequenas quantidades de sólidos dissolvidos. A figura 2.9 ilustra o processo.

Outras operações como a manutenção geral, limpeza das áreas contaminadas, a preparação e o reaproveitamento de reagentes, etc. são feitas na usina de reprocessamento. Em tais operações produzem-se resíduos radioativos como filtros,

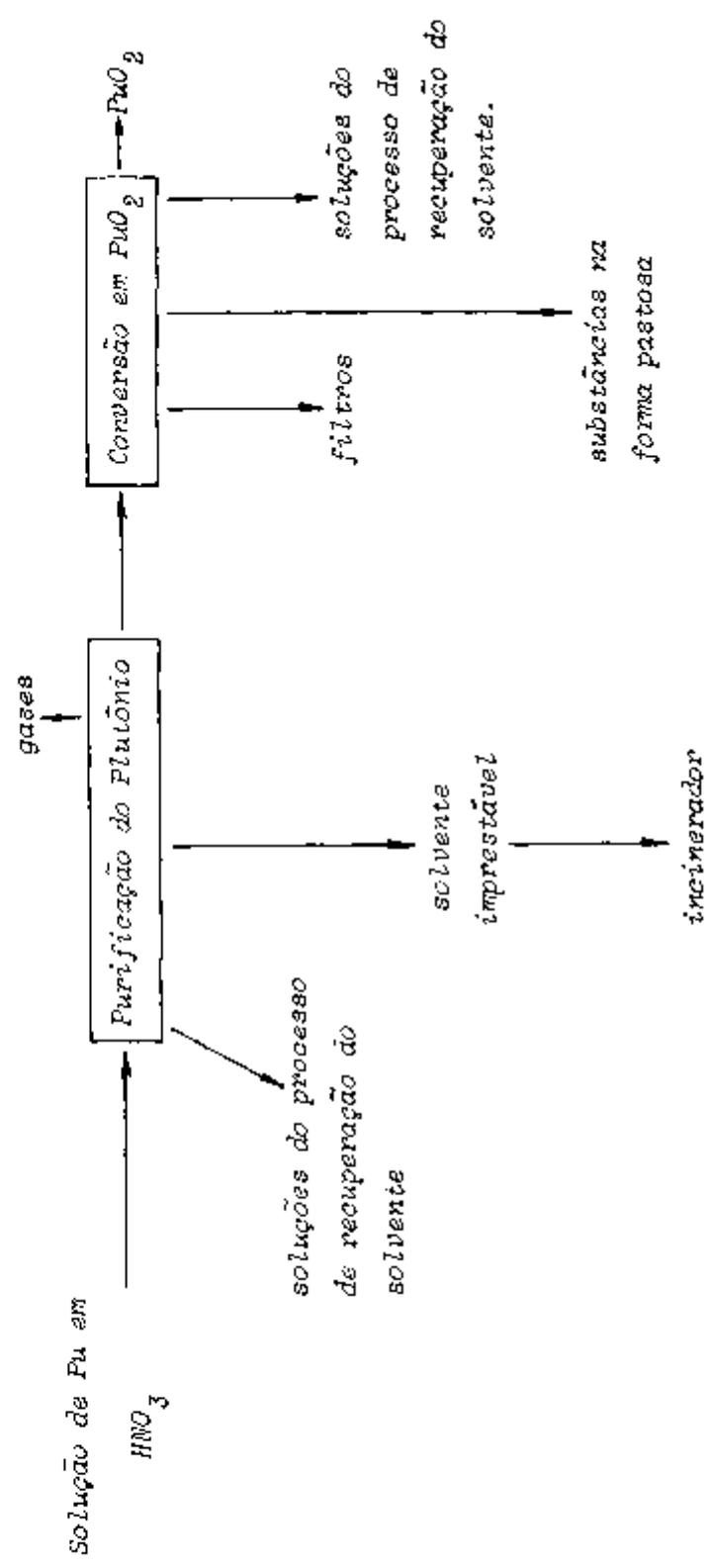


Figura 2.9 - O processo de purificação do plutônio e os resíduos gerados no mesmo.

materiais não combustíveis, líquidos provenientes dos laboratórios, vidros, equipamentos danificados, etc, os quais são acondicionados e armazenados em tambores especiais.

Resíduos Produzidos no Reprocessamento

Apenas para efeito de descrição, os resíduos radioativos gerados nas usinas de reprocessamento foram divididos em cinco categorias principais. As figuras 2.10, 2.11 e 2.12 ilustram os detritos radioativos produzidos.

1. Rejeito de atividade alta.
2. Rejeito de atividade intermediária.
3. Rejeito de atividade baixa.
4. Rejeito na forma gasosa.
5. Rejeito sólido contaminado.

Rejeito de alta atividade

Os resíduos de alta atividade são definidos como "aqueles provenientes do primeiro ciclo de extração com solvente, associados aos resíduos concentrados dos demais ciclos, em uma usina de reprocessamento"/40 / Mais de 99% dos produtos de fisão encontram-se nesse material.

O rejeito de alta atividade é coletado e armazenado na forma líquida, durante um certo período de tempo, geralmente de 1 a 5 anos e, em seguida, deve ser solidificado. A composição e demais características desse tipo de rejeito

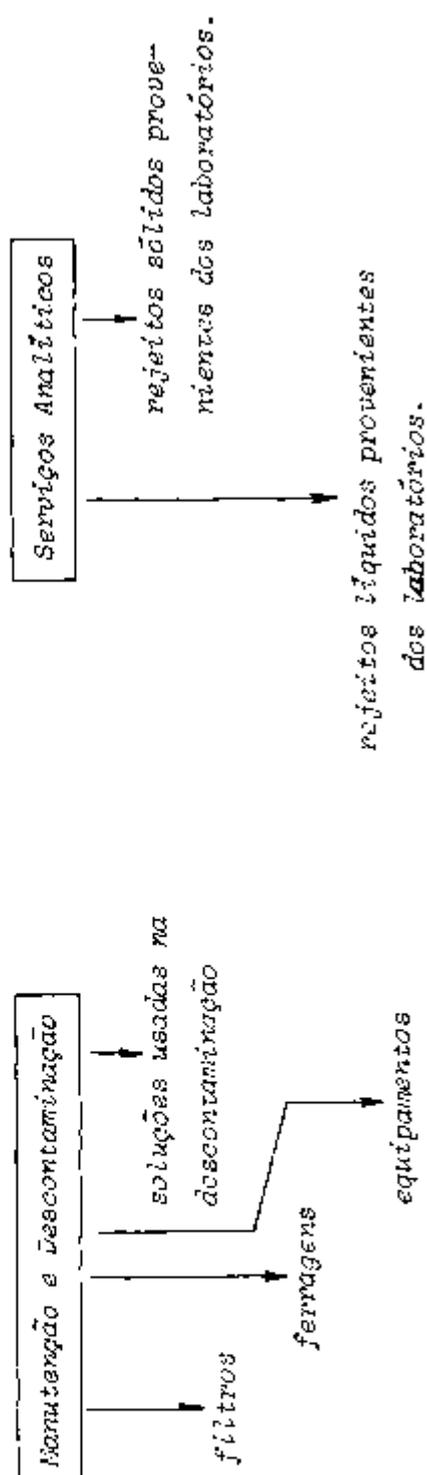


Figura 2.10 - Resíduos produzidos no reprocessamento I.

serão apresentadas pormenorizadamente no capítulo IV.

Rejeito de Atividade Intermediária

Nos resíduos de atividade intermediária incluem-se as soluções provenientes do sistema de tratamento do rejeito gasoso, a água dos tanques de armazenagem do combustível, as soluções usadas na descontaminação de diversas partes da usina, especialmente das embalagens empregadas no transporte do combustível irradiado, as soluções utilizadas na lavagem e regeneração dos solventes, as soluções provenientes das operações de limpeza da usina durante a manutenção, e ainda os líquidos inaproveitáveis produzidos nos laboratórios. Todos esses resíduos são coletados e enviados ao sistema de tratamento do rejeito de atividade intermediária. Esse conjunto de detritos são neutralizados e concentrados no evaporador. A solução concentrada é transferida aos tanques de armazenamento. Durante o período de estocagem, uma série de sais cristalizam-se e precipitam-se. O material não precipitado volta novamente ao concentrador, retornando, em seguida, aos tanques. O rejeito de atividade intermediária é estocado na forma de um sal, em tanques blindados. Outra alternativa é misturá-lo e solidificá-lo juntamente com o rejeito de atividade alta.

Rejeito de Atividade Baixa

O rejeito de atividade baixa consiste, principalmente, dos e-

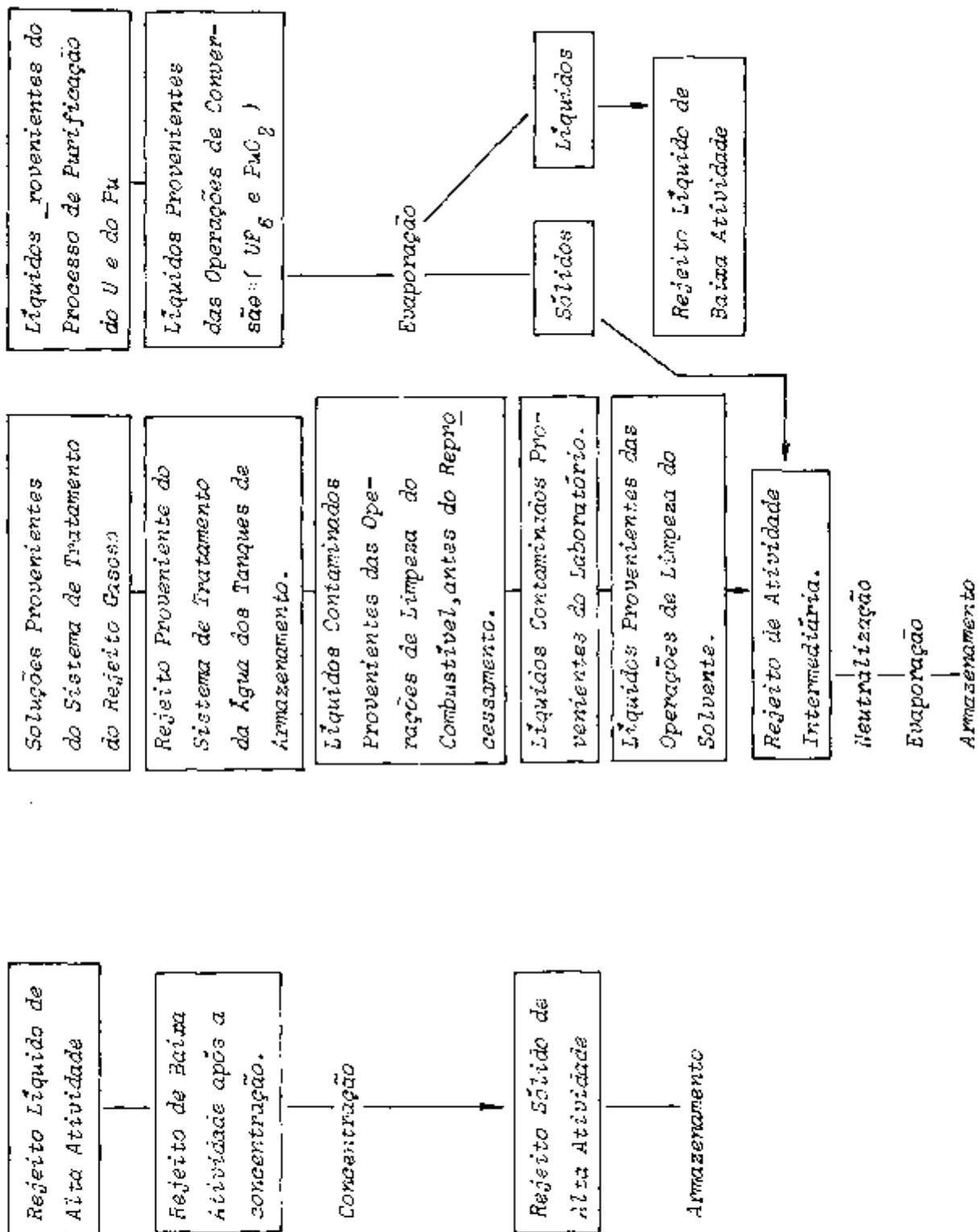


Figura 2.11 - Resíduos produzidos no reprocessamento II.

fluentes gerados no segundo e no terceiro ciclo de extração, com solvente, no estágio de separação entre o urânio, o plutônio e os produtos de fissão, dos vapores condensados provenientes dos concentradores e do sistema de tratamento de gases, e dos líquidos usados na limpeza dos solventes empregados durante a purificação do plutônio. Esses resíduos são coletados e enviados ao sistema de tratamento do rejeito de atividade baixa. Nesse sistema, eles são concentrados e transferidos aos tanques de armazenamento do rejeito de atividade alta. Os vapores formados no processo são liberados por uma chaminê.

O nuclídeo mais importante nessa categoria de rejeito é o trítio, presente na água sob a forma de HTO. A composição estimada do rejeito é apresentada na tabela 2.5.

Tabela 2.5 - Composição Estimada do Rejeito de Baixa Atividade

<u>Radionuclídeo</u>	<u>Atividade $\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$</u>
^3H	10
^{90}Sr	6×10^{-7}
^{106}Ru	3×10^{-6}
^{131}I	5×10^{-6}
^{129}I	6×10^{-7}
^{137}Cs	8×10^{-7}
^{144}Ce	6×10^{-6}
Pu (α)	3×10^{-8}
^{241}Pu	1×10^{-6}
^{241}Am	2×10^{-9}

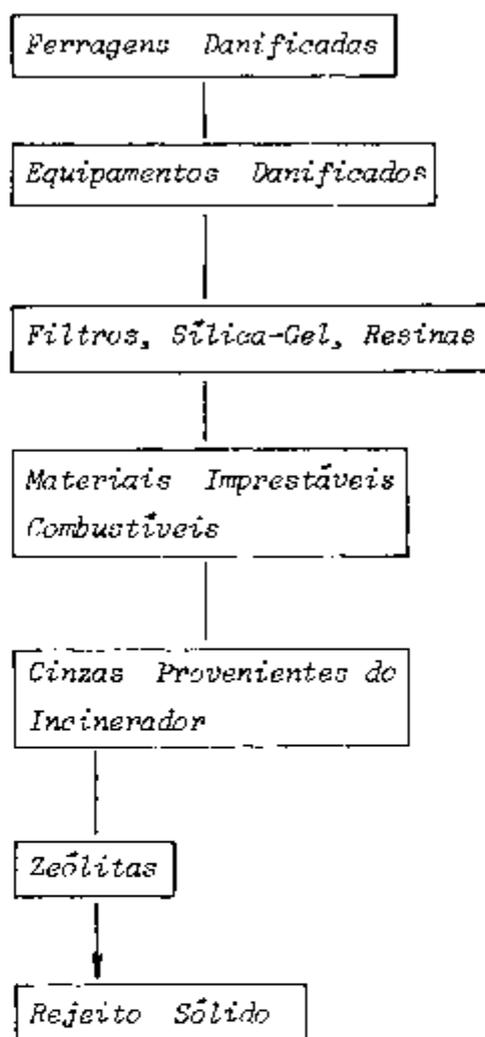


Figura 2.12 - Resíduos produzidos no reprocessamento - III.

Rejeito na Forma Gasosa

Os resíduos gasosos provêm de todos os sistemas de coleta e tratamento de gases da usina. Nessa categoria, incluem-se os efluentes gasosos produzidos no tanque de dissolução, durante a extração com solvente, e nos sistemas de ventilação da usina. Esses efluentes passam por meios absorvedores de iodo e por filtros de alta eficiência para partículas ("HEPA filters - High Efficiency Particulate Air Filters"), antes de serem eliminados, pela chaminé, no meio ambiente. Todo o xnônio e o criptônio são também liberados dessa maneira. Os filtros e os meios absorvedores de iodo, depois de terminadas suas vidas úteis, são tratados como rejeito sólido.

O carbono 14 (^{14}C) resulta da reação $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ com as impurezas do N no combustível e da reação $^{17}\text{O}(n,\alpha)^{14}\text{C}$ com o O existente nas pastilhas cerâmicas. As impurezas de C representam uma fonte negligenciável de ^{14}C , uma vez que a seção de choque da reação $^{13}\text{C}(n,\gamma)^{14}\text{C}$ é excessivamente baixa. Estima-se que 25ppm de impurezas de nitrogênio resultam na produção de 20 Ci de ^{14}C por 1000 MWe-ano.

Rejeito Sólido

Os resíduos sólidos formados no reprocessamento são: ferragens e demais materiais estruturais dos conjuntos combustíveis, fragmentos dos encamisamentos dos elementos combustíveis,

veis, diversos tipos de filtros, resinas de troca iônica usadas na purificação da água dos tanques de armazenamento, sílica gel do estágio final de purificação do urânio, materiais retidos - nos filtros do sistema de tratamento do rejeito líquido, equipamentos danificados, filtros dos sistemas de ventilação, cinzas do processo de fluoração de urânio, cinzas dos fornos de incineração, leitos de zeólita usados na absorção do iodo, borracha, papéis, roupas etc.

As quantidades desses resíduos variam principalmente de acordo com as características técnicas e a maneira como a usina é operada.

O rejeito sólido combustível é colocado em fornos e incinerado. Os demais resíduos não combustíveis são acondicionados em embalagens seladas e armazenados.

Os fragmentos dos elementos combustíveis, dos espaçadores e demais componentes estruturais, o material fino proveniente da operação de retalhamento do combustível, as peças metálicas maciças desmontadas durante a recepção do combustível e os outros equipamentos metálicos de grande porte são cortados, quando necessário, e colocados em recipientes próprios para o armazenamento.

2.2.9 FABRICAÇÃO DE ÓXIDOS MISTOS DE URÂNIO E PLUTÔNIO

A produção de óxidos mistos de urânio e plutônio é

feita combinando-se o urânio natural com o plutônio recuperado na usina de reprocessamento.

Ao chegar à usina, o plutônio e o urânio, na forma de PuO_2 e UO_2 , respectivamente, são colocados em compartimentos isolados das demais dependências da usina, onde são executadas as seguintes operações:

1. Mistura dos póis de UO_2 e PuO_2
2. Compressão .
3. Fabricação das pastilhas .
4. Sinterização das pastilhas em alta temperatura .
5. Retificação das pastilhas sinterizadas .
6. Limpeza e inspeção .
7. Colocação das pastilhas nos encamisamentos .
8. Soldagem das tampas e descontaminação dos elementos combustíveis .

Em seguida, o combustível é retirado das celas isoladas e submetido às operações que se seguem.

1. Limpeza e remoção dos materiais graxos, eventualmente aderidos à superfície
2. Lavagem .
3. Inspeção com raios X .
4. Testes de vedação .
5. Verificação das dimensões .
6. Acondicionamento, armazenagem e transporte .

Na usina de fabricação dos óxidos mistos, os mate

riais contaminados com elementos transurânicos podem ser divididos em resíduos combustíveis e não combustíveis.

Resíduos Produzidos na Fabricação dos Óxidos Mistos de Urânio e Plutônio

Resíduos combustíveis contaminados com elementos transurânicos

O rejeito combustível é gerado tanto no interior dos compartimentos isolados, onde os óxidos mistos são produzidos, como nas demais áreas da usina. Os resíduos gerados são: neoprene, látex, cloreto de polivinil, polietileno, roupas, papel etc. Estima-se que a atividade proveniente dos elementos transurânicos contidos nesses materiais seja $7\mu\text{Ci}$ (atividade de α), ou $0,3 \text{ mCi}$ (atividade α e β), por grama de rejeito.

Para a produção de 1000 MWe-ano de energia são necessárias 13,7 t de óxidos mistos. Estima-se que, na produção dessa quantidade de combustível, sejam gerados 60 m^3 de resíduos combustíveis contaminados.

Resíduos não combustíveis contaminados com elementos transurânicos.

Os resíduos não combustíveis são produzidos nas áreas de operação da usina e no interior dos compartimentos isolados. Os primeiros consistem principalmente de metais e vidros quebrados. A atividade estimada, neste caso, é $1,5\mu\text{Ci}$ (alfa) ou

54 μ Ci (alfa e beta), por grama de rejeito. Os resíduos produzidos no interior das celas isoladas são recipientes, equipamentos metálicos e encamisamentos danificados.

Na usina de fabricação de óxidos mistos de urânio e plutônio, os efluentes líquidos gerados são: a água usada na lavagem das pastilhas combustíveis, os líquidos empregados na descontaminação e na limpeza dos encamisamentos e demais fluidos usados na limpeza de outras instalações da usina, eventualmente contaminadas.

Avalia-se que sejam produzidos 800 \times de rejeito por 1000 MWe-ano. A radioatividade é de 0,4 Ci (alfa), ou de 14 Ci (alfa e beta), por litro de resíduo.

Os efluentes líquidos são evaporados e o material concentrado, resultante do processo, é secado e tratado, juntamente com o rejeito não combustível contaminado, descrito anteriormente.

CAPÍTULO III

A CLASSIFICAÇÃO DO REJEITO RADIOATIVO

Generalidades

A padronização das categorias dos resíduos radioativos é um assunto complexo. Os mais variados e conflitantes pontos de vista são encontrados, quando o problema é analisado no âmbito internacional. Até o presente, muitas classificações já foram propostas, sem que se tenha chegado a um consenso amplamente aceito.

A terminologia usada para descrever o rejeito radioativo varia bastante de um país para outro, em função das condições de operação do ciclo do combustível nuclear e da tecnologia empregada no tratamento e no transporte do material radioativo. As expressões "resíduos de alta atividade", "resíduos de atividade intermediária" e "resíduos de atividade baixa" tornaram-se consagradas na literatura mun-

dial dedicada ao estudo dos detritos radioativos. Por não possuírem definições quantitativas internacionalmente aceitas, esses termos vêm sendo usados para descrever as mais - variadas concentrações de material radioativo.

Encontramos o rejeito radioativo classificado - em combustíveis e não combustíveis, em compressíveis e não compressíveis, em alfa e alfa-beta-gama, em sólido, líquido e gasoso, em úmidos e secos, etc, sem que se possa fixar uma norma geral. Uma vez estabelecidas as unidades do ciclo do combustível, cada país adota a classificação que melhor se a dapte à tecnologia empregada.

Nesta seção é analisado o problema da classificação do rejeito radioativo e escolhido um padrão para ser usado, nos capítulos IV e V.

3.1 ESTADO ATUAL DA CLASSIFICAÇÃO DO REJEITO RADIOATIVO

A maneira mais simples de classificar-se o rejeito radioativo é em função do seu estado físico. A primeira classificação surgida dividia os resíduos em três grandes grupos: os gasosos, os líquidos e os sólidos. Posteriormente, essas categorias foram sub-divididas com base em diversos parâmetros, como, por exemplo, a atividade por unidade de volume (Ci/m^3), ou a dose de radiação na superfície do rejeito (R/h).

3.1.1 REJEITO GASOSO

Os resíduos radioativos gasosos não possuem uma classificação unanimemente aceita. A composição e a atividade dos efluentes gasosos gerados no ciclo do combustível nuclear - são bastante variadas, tornando-se difícil a elaboração de um padrão que abranja todos os tipos de resíduos. Por esse motivo, na maioria dos países, o rejeito gasoso não é classificado, mas apenas descrito pela atividade total liberada no meio, ou ainda pela atividade por unidade de volume.

3.1.2 REJEITO LÍQUIDO

No ciclo do combustível nuclear, na grande maioria dos casos, os efluentes radioativos líquidos são classificados em três categorias: os de alta atividade, os de atividade intermediária e os de atividade baixa. A unidade mais usada é o Ci/unidade de volume.

Normalmente, a expressão "rejeito líquido de alta atividade" refere-se apenas aos efluentes radioativos produzidos nas usinas de reprocessamento. Nos Estados Unidos, o rejeito líquido de alta atividade é definido como sendo os resíduos aquosos resultantes da operação do primeiro ciclo de extração com solvente, ou equivalente, acrescidos dos resíduos concentrados dos demais ciclos, na usina de reprocessamento do combustível irradiado/40/A expressão "rejeito líquido de atividade intermediária" tem sido usada para

designar uma sêrie de líquidos gerados no reprocessamento, como, por exemplo, aqueles provenientes da descontaminação das embalagens usadas no transporte dos elementos combustíveis irradiados. A denominação "rejeito líquido de baixa atividade" é usada, em quase todas as unidades do ciclo do combustível nuclear, para referenciar os efluentes que requerem operações de tratamento relativamente simples.

Uma pesquisa da Agência Internacional de Energia Atômica, feita em 1967, mostrou que os limites quantitativos entre as três categorias de rejeito variam bastante de país para país. A figura 3.1 apresenta os resultados obtidos pela Agência / 56 /.

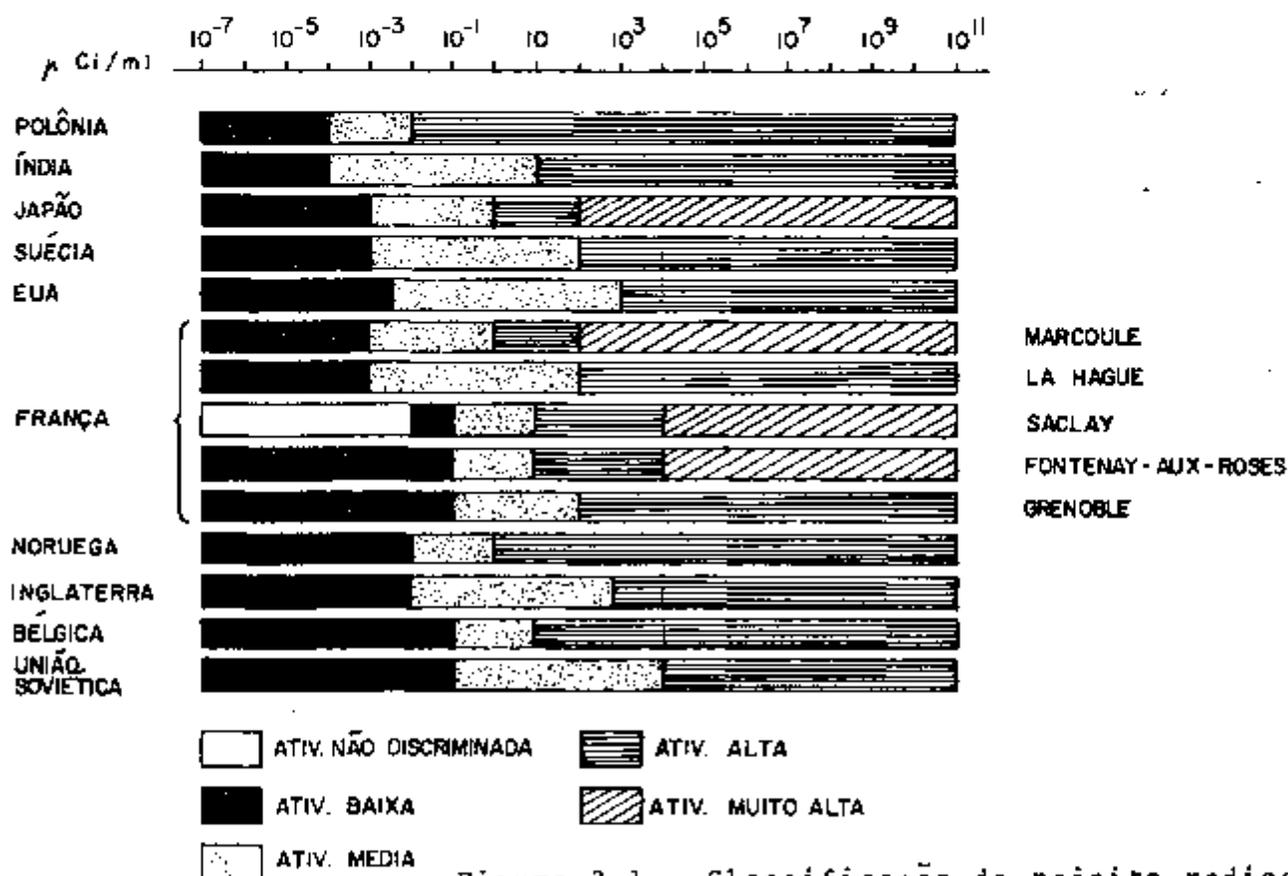


Figura 3.1 - Classificação do rejeito radioativo líquido, em vários países.

Pode-se verificar que as opiniões internacionais sobre o assunto são bastante divergentes. Um material, considerado como sendo de atividade intermediária na União Soviética, é tido como de atividade alta na França, no Japão, na Índia e na Polônia. Não há, portanto, um consenso sobre o problema.

3.1.3 REJEITO SÓLIDO

Diversas unidades têm sido usadas na classificação do rejeito sólido. A União Soviética utiliza a atividade por unidade de massa (Ci/kg). A França emprega um padrão baseado na atividade por embalagem em que o rejeito é armazenado. No Japão, a classificação baseia-se na atividade por unidade de volume (Ci/cm³), como mostra a tabela 3.1.

Tabela 3.1 - Classificação do rejeito radioativo sólido adotada no Japão.

Atividade (m Ci/cm ³)	Categoria
$A \geq 1$	alta
$1 < A \leq 10^{-3}$	intermediária
$10^{-3} \leq A < 10^{-6}$	baixa

Na Suécia e na Inglaterra, a classificação baseia-se na atividade por embalagem.

A não existência de uma terminologia unanimemente aceita tem dificultado bastante a comunicação entre os diversos centros onde se estuda o rejeito radioativo. Com o intuito de facilitar a troca de informações no campo dos detritos radioativos, a Agência Internacional de Energia Atômica propôs uma classificação baseada no estado físico do rejeito, a qual será objeto da próxima seção.

3.2 A CLASSIFICAÇÃO PROPOSTA PELA AGÊNCIA INTERNACIONAL DE ENERGIA ATÔMICA

A classificação criada pela Agência divide o rejeito em três grandes grupos, segundo seu estado físico /56/.

Grupo 1 - rejeito radioativo líquido

Grupo 2 - rejeito radioativo sólido

Grupo 3 - rejeito radioativo gasoso

Esses grupos são subdivididos em categorias numeradas de acordo com a atividade por unidade de volume, no caso dos líquidos e gases, e de acordo com a dose de radiação na superfície e com a atividade alfa emitida, no caso dos resíduos sólidos.

3.2.1 CATEGORIAS DO REJEITO LÍQUIDO

No caso dos resíduos líquidos, foram estabelecidos limites arbitrários entre as diversas categorias. Tais limites relacionam-se com a necessidade da utilização de blindagens

no manuseio dos detritos.

A classificação proposta possui 5 categorias. As atividades são expressas em $\mu\text{Ci/ml}$ ou Ci/m^3 .

Categoria 1

Compreende o rejeito líquido cuja atividade é igual ou menor que $10^{-6} \mu\text{Ci/ml}$ ($A \leq 10^{-6} \mu\text{Ci/ml}$). Estes líquidos podem ser liberados no ambiente sem tratamento prévio.

Categoria 2

Compreende o rejeito líquido cuja atividade está no intervalo entre $10^{-6} \mu\text{Ci/ml}$ e $10^{-3} \mu\text{Ci/ml}$ ($10^{-6} \mu\text{Ci/ml} < A \leq 10^{-3} \text{ Ci/ml}$): O rejeito deve ser tratado pelos métodos convencionais (evaporação, troca iônica, etc.). A blindagem é desnecessária.

Categoria 3

Compreende o rejeito líquido cuja atividade está no intervalo entre $10^{-3} \mu\text{Ci/ml}$ e $10^{-1} \mu\text{Ci/ml}$ ($10^{-3} \mu\text{Ci/ml} < A \leq 10^{-1} \text{ Ci/ml}$). O rejeito deve ser tratado pelos métodos usuais. A blindagem faz-se necessária em algumas partes do sistema de tratamento dos resíduos.

Categoria 4

Compreende o rejeito líquido cuja atividade está no intervalo entre $10^{-1} \mu\text{Ci/ml}$ e $10^4 \mu\text{Ci/ml}$ ($10^{-1} \mu\text{Ci/ml} < A \leq 10^4 \mu\text{Ci/ml}$). Os líquidos devem ser tratados pelos métodos convencionais e

a blindagem é necessária.

Categoria 5

Compreende os resíduos líquidos cuja atividade é maior que $10^4 \mu\text{Ci/ml}$. Neste caso, além da blindagem dos equipamentos usados no tratamento, é necessária a existência de um sistema de refrigeração para retirar o calor gerado pelo rejeito.

A tabela 3.2 apresenta as cinco categorias propostas para o rejeito líquido.

Tabela 3.2 - Categorias propostas pela AIEA para o rejeito radioativo líquido.

Categoria	Atividade ($\mu\text{Ci/ml}$)	Observações
1	$A \leq 10^{-6}$	tratamento dispensável
2	$10^{-6} < A \leq 10^{-3}$	blindagem desnecessária
3	$10^{-3} < A \leq 10^{-1}$	blindagem usada em algumas partes
4	$10^{-1} < A \leq 10^4$	blindagem necessária
5	$10^4 < A$	blindagem e refrigeração necessárias

3.2.2 CATEGORIAS DO REJEITO SÓLIDO

A Agência Internacional de Energia Atômica, considerando que as classificações baseadas na atividade por unidade de volume têm-se mostrado ineficientes na descrição do rejeito sólido, dada a heterogeneidade da composição, comum a esse tipo de material, recomendou, como critério de classificação, a dose de radiação na superfície dos resíduos. O rejeito sólido foi então dividido em 4 categorias. As categorias 1, 2 e 3 reúnem os detritos portadores de quantidades significantes de beta e gama emissores e quantidades subordinadas de alfa emissores. A quarta categoria foi reservada aos resíduos - nos quais predominem os emissores alfa e, subordinadamente, ocorram os emissores beta e gama. A classificação final ficou da seguinte maneira:

Categoria 1

Compreende o rejeito sólido contendo emissores beta e gama e quantidades insignificantes de emissores alfa, e cuja dose de radiação em sua superfície não exceda a 0,2 R/h. Tais resíduos podem ser manuseados e transportados sem precauções especiais.

Categoria 2

Compreende o rejeito sólido contendo emissores beta e gama e quantidades insignificantes de emissores alfa, e cuja dose

de radiação, em sua superfície, esteja entre 0,2 R/h e 2R/h. Esses resíduos devem ser transportados em recipientes blindados com chumbo ou concreto.

Categoria 3

Compreende o rejeito sólido contendo emissores beta e gama e quantidades insignificantes de emissores alfa, cuja dose de radiação na superfície seja maior que 2R/h. Estes resíduos devem ser manuseados e transportados somente em embalagens - fortemente blindadas.

Categoria 4

Compreende os resíduos radioativos sólidos contendo principalmente emissores alfa. A quantidade de emissores beta e gama deve ser insignificante. Neste caso, a atividade deve ser expressa em Ci/m³. Não devem ocorrer problemas de criticidade.

Tabela 3.3 - Categorias propostas pela AIEA para o rejeito sólido.

Categoria	Dose de radiação na superfície (R/h)	Observações
1	$D \leq 0,2$	predominância de beta
2	$0,2 < D \leq 2$	e
3	$2 < D$	gama emissores
4	atividade em Ci/m ³	predominância de alfa emissores

3.2.3 CATEGORIAS DO REJEITO GASOSO.

Na maioria dos países, o rejeito gasoso não é classificado. Para os resíduos gasosos, a classificação elaborada pela Agência Internacional de Energia Atômica baseia-se na atividade por unidade de volume e divide os gases radioativos em três categorias, como seguem:

Categoria 1

A categoria 1 reúne os efluentes gasosos cuja atividade não excede 10^{-10} Ci/m³. Esses gases normalmente não são tratados.

Categoria 2

A esta categoria pertencem os resíduos gasosos cuja atividade está entre 10^{-10} Ci/m³ e 10^{-6} Ci/m³. Normalmente, esses gases são filtrados antes de serem liberados no ambiente.

Categoria 3

Compreende os resíduos gasosos cuja atividade é maior que 10^{-6} Ci/m³. A filtração e outros métodos de descontaminação são usados no tratamento desses gases.

A tabela 3.4 apresenta as categorias do rejeito gasoso.

Tabela 3.4 - Categorias do rejeito gasoso propostas pela AIEA

Categoria	Atividade (Ci/m ³)	Observações
1	$A < 10^{-10}$	tratamento dispensável
2	$10^{-10} < A < 10^{-6}$	tratamento por filtração
3	$10^{-6} < A$	tratamento por filtração associada a outros métodos

Em trabalhos mais recentes sobre o rejeito radioativo, nota-se que, embora a classificação proposta pela Agência Internacional de Energia Atômica apresente padrões bastante razoáveis e bem fundamentados para a subdivisão dos resíduos nucleares, ela não vem sendo amplamente usada. Dessa maneira, persiste a dificuldade existente na troca de informações entre os vários centros que estudam os detritos radioativos. O principal motivo da sua não utilização é a dificuldade em converter o padrão usado em cada país naquele proposto pela Agência.

Verifica-se que as expressões "rejeito de alta atividade" e "rejeito de baixa atividade" continuam sendo largamente empregadas, mesmo sem possuírem uma definição quantitativa amplamente aceita.

Em alguns trabalhos publicados sobre o assunto nota-se uma tendência em dividir o rejeito radioativo em apenas dois grupos. O primeiro englobaria todos os resíduos por

tadores de produtos de fissão gerados no reprocessamento , mais os materiais contaminados com elementos transurânicos, e o segundo reuniria os demais detritos.

Nos centros de pesquisa alemães emprega-se a classificação proposta pela Agência Internacional de Energia Atômica.

3.3 A CLASSIFICAÇÃO USADA NESTE TRABALHO.

Conforme foi verificado, em alguns países são empregadas classificações bastante aprimoradas, nas quais os resíduos radioativos são separados em classes definidas por valores numéricos. No entanto, só é possível elaborarem-se classificações como essas, quando são conhecidas todas as características técnicas das unidades que participarão do ciclo do combustível nuclear e dos métodos de tratamento do rejeito radioativo a serem utilizados. Não há possibilidade de efetuar-se a separação do rejeito radioativo, em classes, sem conhecer-se exatamente sua composição.

Neste trabalho usamos a denominação "rejeito de alta atividade" para designar o material em cuja composição se encontra a maior parte dos produtos de fissão gerados no primeiro ciclo de extração com solvente, na usina de reprocessamento, e ainda os materiais contaminados com plutônio e o combustível irradiado; este último, no caso de o ciclo do combustível ser operado sem reciclagem do urânio e do plutô-

nio.

Preferimos não empregar a expressão "rejeito - de atividade intermediária", uma vez que não há consenso geral, amplamente aceito, acerca da definição desse resíduo. Optamos, nesse caso, pela descrição explícita do material radioativo em questão.

Assim, fica eliminada a possibilidade de interpretações erradas sobre esse tipo de detrito.

Não se pretende que o padrão ora utilizado seja o melhor ou o que deverá prevalecer em trabalhos futuros. As classificações devem ser dinâmicas. A medida em que novos conhecimentos sejam adquiridos, os padrões devem ser aprimorados. Com as informações disponíveis, no presente, a classificação adotada é a que melhor atende aos objetivos deste trabalho.

CAPÍTULO IV

PROPRIEDADES DO COMBUSTÍVEL NUCLEAR E DO REJEITO DE ALTA ATIVIDADE

Generalidades

No ciclo do combustível nuclear, os materiais que maiores problemas apresentam para o armazenamento são os elementos combustíveis após a irradiação e o rejeito de alta atividade produzido na usina de reprocessamento.

O capítulo IV tem a finalidade de caracterizar, em função do tempo, as propriedades do combustível irradiado e dos resíduos radioativos de atividade alta. Essa tarefa reveste-se de grande importância, uma vez que, na execução de qualquer operação envolvendo os materiais descritos, há necessidade absoluta do conhecimento de suas propriedades.

As características estudadas foram: a composição isotópica, a atividade, a quantidade de calor produzida, a

energia liberada pelos raios gama e a taxa de geração de nêutrons, tanto aqueles formados por fissão espontânea, como aqueles produzidos em reações do tipo α, n . Todas essas propriedades foram estudadas em relação a uma tonelada de combustível ou a uma tonelada de rejeito. Obtivemos, também, a composição isotópica do combustível durante a irradiação.

Na execução dos cálculos foi utilizado o Código "ORIGEN" - "ORIGEN ISOTOPE GENERATION AND DEPLETION CODE". Esse programa apresenta inúmeras potencialidades e vem sendo usado, em diversas partes do mundo, na solução de problemas semelhantes ao nosso.

Os resultados obtidos são apresentados na forma de gráficos e de tabelas.

Além das propriedades dos resíduos radioativos e do combustível irradiado, caracterizamos os materiais estruturais após a irradiação. É sabido que esses materiais, depois de um longo período de permanência em regiões de alto fluxo neutrônico, tornam-se ativados e, assim sendo, requerem cuidados especiais em seu manuseio e em seu armazenamento.

Na descrição das propriedades do combustível e do rejeito, tomamos como base o material irradiado que será produzido na usina de Angra II, uma vez que, pelas informações contidas no Programa Nuclear Brasileiro, serão construí

das pelo menos oito unidades semelhantes a essa.

4.1 O CÓDIGO "ORIGEN"

A solução de equações envolvendo a produção e a destruição de nuclídeos é um problema comumente encontrado no campo da engenharia nuclear. As cadeias de decaimento radioativo podem ser representadas matematicamente por um sistema de equações diferenciais ordinárias, de primeira ordem, com coeficientes constantes. Uma série de programas foi desenvolvida para solucionar esse sistema. No entanto, todos eles mostraram-se ineficazes nos casos em que um grande número de nuclídeos era envolvido, ou quando ocorria uma reação denominada "feedback reaction". Essa expressão é usada para designar um tipo de reação no qual um isótopo decai, produzindo um de seus precursores. Na resolução de problemas semelhantes a estes, L.C. Pease /75/ S.J. Ball e R.K. Adams / 6/ utilizaram, com sucesso, o método das matrizes exponenciais.

O programa "ORIGEN" emprega esta técnica na resolução do sistema de equações diferenciais lineares ordinárias e de primeira ordem, que descrevem a produção e a destruição dos nuclídeos em uma cadeia de decaimento radioativo.

O código "ORIGEN" - "ORIGEN ISOTOPE GENERATION AND DEPLETION CODE" foi produzido no Laboratório Nacional

de Oak Ridge, no Tennessee, nos Estados Unidos, e publicado, em 1973, por M.J. Bell em ORNL-TM-4628. O programa resultou dos estudos iniciados por J.D. Nichols e da evolução e desenvolvimento de outros códigos como o "ISOGEN" - "A Computer Code for Radiosotope Generation", o "CRUNCH" - "An IBM-704 Code for Calculating N Successive First Order Reactions" e o "MATEXSP" - "A General Purpose Digital Computer Program for solving Ordinary Differential Equations by the Matrix Exponential Method". Em dezembro de 1974, o programa "ORIGEN" foi modificado, recebendo uma nova e ampliada biblioteca de informações nucleares. O novo conjunto de dados incluiu todos os núclídeos cujo número atômico é menor que 84 e ainda todos os produtos de ativação para os quais haviam informações disponíveis na época.

O código "ORIGEN" foi gentilmente cedido pelo Laboratório Nacional de Oak Ridge e trazido a este Instituto, em agosto de 1977, especialmente para este trabalho.

Nesta seção são descritas as potencialidades do código "Origen" na resolução de problemas relacionados à produção e ao decaimento de radionuclídeos e aos problemas envolvendo a determinação das propriedades dos materiais irradiados. Evitamos tecer considerações pormenorizadas do modelo matemático utilizado no programa, por entendermos que tal assunto foge aos objetivos fundamentais deste trabalho.

4.1.1 AS POTENCIALIDADES DO CÓDIGO "ORIGEN"

O código "ORIGEN" é um conjunto de sub-rotinas que executam três funções principais. A primeira é o processamento de um extenso conjunto de informações nucleares com a finalidade de construir um sistema de equações diferenciais, ordinárias e de primeira ordem, que descrevem as taxas de formação e de destruição de centenas de núclídeos. A segunda é resolver o referido sistema para um determinado grupo de condições iniciais. A terceira é construir tabelas, mostrando diversas propriedades do combustível, durante e após a irradiação, e do rejeito radioativo formado no reprocessamento.

A expressão geral para a formação e para a destruição de um determinado núclídeo i , em uma cadeia de decaimento radioativo, pode ser escrita matematicamente do seguinte modo:

$$\frac{dX_i}{dt} = \sum_{j=1}^N \lambda_{ij} \lambda_j X_j + \bar{\phi} \sum_{k=1}^N f_{ik} \sigma_k X_k - (\lambda_i + \bar{\phi} \sigma_i) X_i$$

(i = 1 ... N) (4.1)

onde:

X_i = densidade atômica do núclídeo i

λ_i = constante de desintegração radioativa para o núclídeo i

σ_i = secção de choque de absorção (captura + fissão)

λ_{ij} = fração da concentração do núclídeo i formada por

desintegração radioativa de outro radioelemento

f_{ik} = fração da quantidade do nuclídeo i , formada por captura radioativa em outro radioelemento

$\bar{\phi}$ = fluxo médio de nêutrons, que é tomado como sendo constante em intervalos reduzidos de tempo.

Rigorosamente, o sistema de equações descrito - pela equação 4.1 não é linear, uma vez que o fluxo neutrônico varia com as mudanças na composição do combustível. Entretanto, as variações são lentas e o fluxo pode ser considerado como constante em pequenos intervalos de tempo. Assim sendo, o conjunto de equações descrito por 4.1 torna-se um sistema homogêneo de equações diferenciais simultâneas e de primeira ordem, com coeficientes constantes, e que pode ser escrito da seguinte forma:

$$\dot{\bar{X}} = \bar{A} \bar{X} \quad (4.2)$$

A equação 4.2 possui solução do tipo:

$$\bar{X} = \exp(\bar{A}t) \bar{X}(0) \quad , \quad (4.3)$$

onde

$\bar{X}(0)$ é uma matriz com as densidades atômicas e \bar{A} é uma matriz de transição, contendo coeficientes que descrevem o decaimento radioativo e a captura neutrônica. A função $\exp(\bar{A}t)$ é denominada função matriz exponencial, a qual corresponde a uma matriz de dimensão N^2 , que é definida como:

$$\exp(\bar{A}t) = \bar{I} + \bar{A}t + \frac{(\bar{A}t)^2}{2!} + \dots \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(\bar{A}t)^m}{m!} \quad (4.4)$$

Uma vez gerada a função matriz exponencial, a partir da matriz de transição, a solução das equações que descrevem as cadeias de decaimento dos vários núclídeos é facilmente obtida.

A construção da matriz de transição é executada pela sub-rotina NUDATA e a resolução do sistema de equações diferenciais é feita pelas demais sub-rotinas do código, as quais serão descritas na seção 4.1.2.

Inicialmente, o programa "ORIGEN" imprime a biblioteca de informações nucleares aplicável ao caso e uma nota explicativa das abreviações que serão utilizadas no decorrer da resolução do problema. Em seguida, é produzida uma tabela contendo a composição isotópica do combustível, em átomos-grama, em função do tempo de irradiação. Posteriormente, são impressas tabelas mostrando a composição isotópica em átomos-grama e em gramas, a radioatividade em curies, a quantidade total ($\beta + \gamma$) de calor gerado em watts, a energia emitida pelos raios γ em watts e o número de metros cúbicos de ar e de água necessários para diluir a radioatividade produzida por cada isótopo, até a concentração máxima permissível. Todas essas propriedades são fornecidas separadamente para os materiais estruturais, para os actinídeos e para os produtos de fissão. Para cada uma das referidas propriedades são produzidas quatro tabelas. A primeira apresenta as características de cada isótopo individualmente,

a segunda trata dos elementos químicos, a terceira e a quarta são denominadas tabelas - sumário e trazem apenas as características dos isótopos e dos elementos químicos mais importantes.

A seguir, o código "ORIGEN" apresenta informações a cerca da emissão de radiações penetrantes produzidas pelo combustível depois de retirado do reator. A primeira tabela fornece, em função do tempo, o espectro de radiação gama emitida pelos elementos componentes do encamisamento e dos materiais estruturais. A unidade usada é o número de fótons, de uma determinada energia média, produzidos por tonelada de combustível. As tabelas subsequentes apresentam o mesmo tipo de informação para os produtos de fissão.

No final do programa são impressas tabelas, referentes aos actínídeos, que trazem o número de nêutrons emitidos por segundo, decorrentes da fissão espontânea e das reações (α, n) . Essas propriedades são apresentadas, separadamente, para o combustível irradiado e para o rejeito radioativo de alta atividade. A última tabela impressa pelo código apresenta o espectro de fótons produzidos pelos actínídeos e seus produtos de decaimento radioativo.

Com informações fornecidas pelo programa "ORIGEN", foi feita a caracterização do combustível durante e depois da irradiação e do rejeito de alta atividade produzido no reprocessamento.

4.1.2. DESCRIÇÃO DAS SUB-ROTINAS DO PROGRAMA

O código "ORIGEN" é composto de 12 sub-rotinas, cujas principais funções são descritas nesta secção.

1 - MAIN

A sub-rotina MAIN supervisiona a execução geral do programa e é responsável pela leitura de todos os dados de entrada, com exceção das informações nucleares específicas do reator.

O código resolve o sistema de equações diferenciais, lineares, ordinárias de primeira ordem

$$\dot{\bar{X}} = \bar{A}\bar{X} + \bar{B} \quad , \quad \text{dado } \bar{X}(0)$$

onde: $\bar{X}(0)$ é o conjunto de concentrações iniciais dos diversos elementos constituintes do combustível e demais materiais estruturais, $\bar{X}(t)$ é a solução dependente do tempo esperada e \bar{A} é a matriz dos coeficientes de primeira ordem. A construção da matriz \bar{A} é feita por outras sub-rotinas, cuja descrição se encontra mais adiante. Os valores das matrizes \bar{A} e \bar{B} são determinados a partir da leitura das informações contidas nos cartões de dados e a partir de cálculos prévios executados pelo programa. A variável $\bar{X}(0)$ é denominada, no programa, de XZERO e a solução da equação recebe o nome de XNEW. A figura 4.1 ilustra o cálculo efetuado.

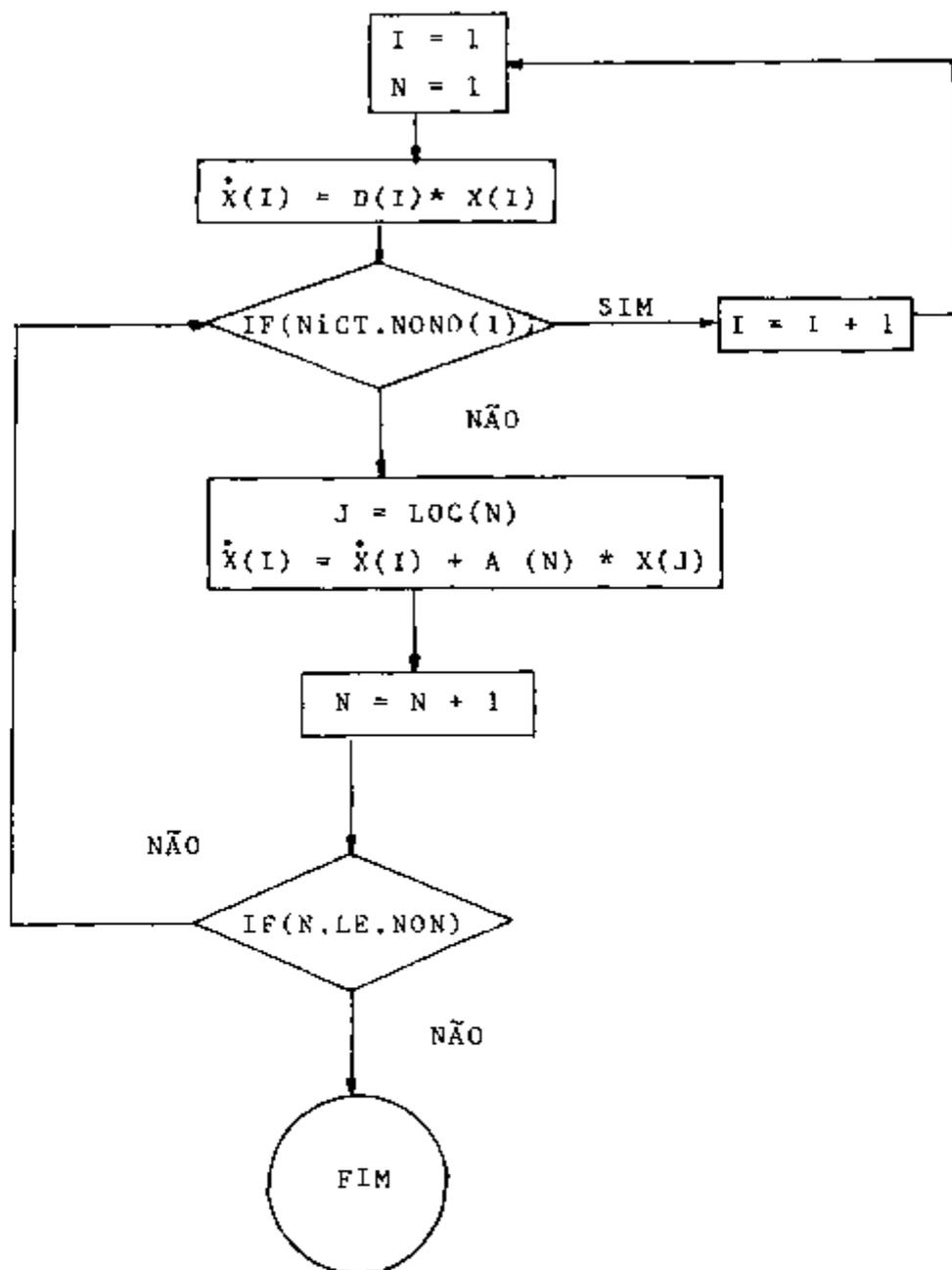


Figura 4.1 - Diagrama de blocos referente ao cálculo $\tilde{X} = \bar{A} \cdot \bar{X}$

2 - NUDATA

A sub-rotina NUDATA processa os dados contidos na biblioteca de informações nucleares, constrói parte da matriz de transição \tilde{A} e lê dois dos cartões de dados de entrada. O primeiro contém o título da biblioteca, que será impresso nas tabelas, e a variável NLIBE, na coluna 75, que designa o espectro de energia sobre o qual as secções de choque serão calculadas. O segundo cartão contém as variáveis TERM, RES e FAST, que representam os índices espectrais do reator, um campo onde deve ser colocada a data em que o cálculo está sendo feito e, ainda, variáveis com as quais se pode suprimir parte das tabelas que serão impressas.

A sub-rotina NUDATA imprime a biblioteca de informações nucleares a ser usada.

3 - HALF

A sub-rotina HALF calcula as constantes de decaimento dos radionuclídeos em s^{-1} .

4 - NOAH

A sub-rotina NOAH cria um símbolo alfa-numérico para cada isótopo, a partir de seus números de identificação. Esse símbolo é formado pelas letras correspondentes à abreviação do elemento químico, seguidas da massa atômica e da letra M, no caso do isótopo encontrar-se no estado metaestável. Os símbolos

criados são usados nas tabelas impressas pelo código.

5 - BLOCK DATA

A sub-rotina BLOCK DATA define os símbolos químicos que serão usados e a variável STA, que designa o estado isomérico dos nuclídeos.

6 - PHOLIB

A sub-rotina PHOLIB lê as informações acerca da produção de fótons, na biblioteca de informações nucleares, e as armazena nos arranjos GAMGRP e ACTGRP. O arranjo GAMGRP contém os dados sobre a produção de fótons, em 12 grupos de energia, para os isótopos dos materiais estruturais, dos revestimentos dos elementos combustíveis e dos produtos de fissão. O arranjo ACTGRP contém essas mesmas informações, em 18 grupos de energia, para os actinídeos e seus produtos de decaimento radioativo. Essa sub-rotina imprime uma tabela contendo os dados da biblioteca de informações nucleares acerca da produção de fótons.

7 - FLUXO

A sub-rotina FLUXO calcula o fluxo médio de nêutrons, num intervalo de tempo onde é fornecida a potência do reator, ou a potência média gerada pelo combustível durante um período determinado de tempo em que é conhecido o fluxo -

neutrônico.

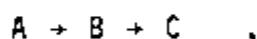
8 - DECAY

Essa sub-rotina resolve as equações de Boltzman para os nuclídeos que ocorrem no início das cadeias de decaimento e que possuem meias-vidas curtas em relação ao intervalo de tempo usado no cálculo.

A variável XTEMP é usada, nesta sub-rotina, para designar a concentração inicial dos nuclídeos de meia-vida longa e dos materiais estáveis.

9 - TERM

A sub-rotina TERM possui duas funções principais. A primeira delas é construir uma matriz com os coeficientes envolvidos apenas nas transições entre os nuclídeos de meia-vida longa, ou entre os nuclídeos estáveis. Por exemplo: Suponhamos a existência da cadeia de decaimento



onde B é um isótopo de meia-vida curta e A e C são nuclídeos de meia-vida longa. Nestas condições, é criado um elemento da matriz referida acima para o evento $A \rightarrow C$. A segunda função da sub-rotina TERM é resolver o sistema de equações que resulta quando os nuclídeos de meia-vida curta são excluídos. As equações são resolvidas pelo método das matrizes ex-

ponenciais.

10 - EQUIL

A sub-rotina EQUIL é usada para colocar os núcleos filhos, de meia-vida curta, em equilíbrio secular com seus precursores de meia-vida longa.

11 - OUTPUT

Esta sub-rotina é responsável pela impressão das tabelas contendo as propriedades dos materiais irradiados. Para tanto, ela se utiliza das concentrações de todos os isótopos, em função do tempo, e de outras informações como as constantes de decaimento, o calor gerado por desintegração, etc. A partir destes dados, a sub-rotina OUTPUT calcula os inventários, a radioatividade, a potência térmica e as demais propriedades de interesse, para os produtos de fissão, para os actídeos e para os materiais estruturais. As propriedades são apresentadas individualmente para cada isótopo e para cada elemento químico formado ou existente no combustível e nos materiais estruturais. São impressas, também, tabelas mostrando apenas as propriedades dos elementos químicos e dos isótopos mais importantes.

12 - GAMMA

A sub-rotina GAMMA prepara tabelas contendo as -

fontes de radiação penetrantes do combustível irradiado. As tabelas impressas mostram a taxa de produção de fótons e a taxa de produção de nêutrons, em função do tempo.

4.1.3 CARTÕES DE FORNECIMENTO DE DADOS

Esta secção descreve os cartões de fornecimento de dados e as variáveis usadas no código "ORIGEN".

Os dois primeiros cartões identificam a biblioteca de informações nucleares que será utilizada pelo programa, fornecem os índices espectrais do reator e ainda selecciona as tabelas a serem impressas.

CARTÃO A

```
READ(50,9011,END=920)(TITLE)(I),I=1,18),NLIBE
9011 FORMAT (18 A4, I3)
```

O cartão A contém as variáveis TITLE e NLIBE, cujos significados são os seguintes:

TITLE

É um título, com 72 caracteres alfa-numéricos, da biblioteca de dados nucleares que será usada.

NLIBE

É um número inteiro que identifica a biblioteca a ser empregada. O código dispõe de quatro bibliotecas, as quais correspondem a quatro tipos de reatores diferentes, a saber: reatores de alta temperatura refrigerados por gás, - HTGR; reatores refrigerados por água pressurizada, PWR; reatores regeneradores rápidos, refrigerados por metal líquido, LMFBR; reatores regeneradores refrigerados por sal fundido, MSBR. A tabela 4.1 apresenta os números que podem ser atribuídos NLIBE e os reatores cuja biblioteca correspondente - será utilizada.

Tabela 4.1 - Números inteiros que podem ser atribuídos a NLIBE.

INTEIRO	TIPO DE REATOR
1	HTGR
2	PWR
3	LMFBR
4	MSBR

CARTÃO B

```
READ(50,9001) THERM,RES,FAST,ERR,NMØ,NDAY,NYR,MPCTAB,INPT,IR
9001 FORMAT(4F10.5,6I2)
```

No cartão B aparecem dez variáveis, cujos significados são os seguintes:

THERM

Essa variável indica a razão entre a taxa de reação neutrônica para um absorvedor $\frac{1}{V}$ e a taxa de reação dos nêutrons de 2200 m/s, em uma população de nêutrons com uma distribuição de Maxwell-Boltzman de energias, à temperatura absoluta T.

$$\left(\frac{\pi}{4} \frac{T_0}{T} \right), \quad T_0 = 293,16^0\text{K}$$

RES

Indica a razão entre o fluxo de ressonância, por unidade de letargia, e o fluxo térmico de nêutrons.

FAST

A variável FAST refere-se à razão entre o fluxo acima de 1 MeV e a fração do espectro de fissão, também acima de 1 MeV, dividida pelo fluxo térmico de nêutrons.

ERR

Erro de truncamento; valor abaixo do qual o programa considerará zero. O valor recomendado pelo manual de utilização do código para ERR é 10^{-25} .

NMO,NDAY,NYR

Mês, dia e ano em que se está realizando o cálculo.

MPCTAB

Esta variável permite controlar parcialmente as tabelas que serão produzidas. Se MPCTAB=0, serão impressas as tabelas contendo os volumes de ar e de água necessários para diluir os radionuclídeos à concentração máxima permissível.

INPT

É uma opção para o fornecimento dos dados. Se INPT = 0, a biblioteca de informações nucleares será lida em fita magnética e, se INPT ≠ 0, será lida em cartões.

IR

Variável que permite o controle parcial das informações que serão impressas. Se IR ≠ 0, o código imprimirá todos os elementos contidos na matriz de transição construída com os dados nucleares. Na prática, raramente há necessidade de utilizarem-se todos esses elementos e, portanto, em quase todos os casos, IR = 0.

CARTÃO C

```
70 READ(50,9008,END=950),MN,MOUT,NOBLND,INDEX,NTABLE,MSTAR,
      N60,MPROS,MFEED
```

```
9008 FORMAT(16 15)
```

Os significados das variáveis do cartão C seguem abaixo.

MN

Número de intervalos de tempo durante a irradiação.

MOUT

Número total de intervalos de tempo para os períodos de irradiação e pós-irradiação.

NOBLND

Número de materiais que serão misturados no combustível. Caso não haja mistura, a variável deve receber o valor zero ou um.

INDEX

É uma opção para o fornecimento de dados. Se INDEX = 0, a variável POWER(M) será lida em um cartão subsequente. Caso INDEX = 1, será lida a variável FLUX(M) e, na hipótese de MN ser igual a zero, a variável INDEX não será usada pelo programa nesta etapa.

NTABLE

É uma variável que permite o controle das informações que serão impressas. Se NTABLE = 0, as propriedades de todos os isótopos serão impressas. Caso NTABLE = 1, serão produzidas tabelas contendo apenas os isótopos mais im-

portantes.

MSTAR

Variável que também permite o controle das informações que serão impressas. Na composição das tabelas resumidas, o programa eliminará os isótopos cujas propriedades apresentem valores menores que um determinado limiar, no período de tempo MSTAR.

NGO

É um indicador que informa ao programa se os cálculos serão repetidos um certo número de vezes ou não. $NGO < 0$ indica que novo cálculo, com novas condições iniciais e com os mesmos dados nucleares, será realizado. $NGO = 0$ indica que será efetuado novo cálculo, com novas condições iniciais e com outras informações nucleares. $NGO > 0$ indica que o cálculo que está sendo realizado terá seqüência.

MPROS

É um indicador para o caso em que é feito o processamento químico contínuo. Nestas condições, utiliza-se MPROS igual ao número de elementos químicos processados. Na hipótese de não ocorrer o processamento químico, MPROS deve ser igual a zero.

MFEED

É uma variável que deve ser usada no caso de reatores alimentados continuamente. Para $MFEED = 0$ não se considera esse caso. Se $MFEED > 0$, considera-se a hipótese da alimentação contínua.

CARTÃO D

```
READ(50,9004)TITLE
```

```
9004 FORMAT (20A4)
```

O cartão D apresenta apenas a variável TITLE, que representa o título, com até 80 caracteres alfa-numéricos, do cálculo em execução.

CARTÃO E

```
IF(INDEX.EQ.0)READ(50,9005)(POWER(M),M=1,MMN)
```

O cartão E apresenta a variável POWER (M).

POWER (M)

Potência térmica específica do combustível no pe_ríodo de irradiação M.

CARTÃO F

```
IF(INDEX.EQ.1)READ(50,9005)(FLUX(M),M=1,MMN)
```

No cartão E aparece a variável FLUX(M), que pos_sui o significado abaixo:

FLUX(M)

Fluxo térmico no período de irradiação M, em nêutrons/cm².s, ou o fluxo neutrônico total, no caso de reatores rápidos.

CARTÃO G

```
READ(50,9005)(T(M),M=1,MOOT)
```

No cartão G encontramos a variável T(M), que significa o tempo decorrido desde o início dos cálculos.

CARTÃO H

```
READ(50,9013)BASIS,TCNST,TUNIT.
```

```
9013 FORMAT(10A4,F.7.0,A3,F10.3)
```

Os significados das variáveis BASIS, TCNST, TONIT são fornecidos abaixo.

BASIS

Título alfa-numérico, de 40 caracteres, que representa a quantidade de combustível para a qual serão feitos os cálculos. Esta quantidade pode ser a tonelada, um elemento - combustível, etc.

TCNST

É um fator usado para converter a variável T(M) em segundos.

TUNIT

Título alfa-numérico da variável T(M). Por exemplo: TUNIT=D (dias), para T(M) em dias.

CARTÃO I

```
READ(50,9006)CUTOFF
```

```
9006 FORMAT(8E10.3)
```

O cartão I apresenta apenas a variável CUTOFF

CUTOFF(MS)

É o valor usado como limiar, na composição das tabelas resumidas. Todo isótopo, cuja propriedade (MS) em consideração no cálculo, no período de tempo MSTAR, for menor que o valor de CUTOFF(MS), será omitido na impressão da referida tabela. Os valores de MS e as propriedades do material irradiado correspondentes são apresentadas na tabela 4.2.

O valor 0,001 é recomendado para as propriedades de 1 a 5. Para as propriedades 7 e 8 atribui-se o valor 1.

CARTÃO J

```
IF(NOBLND.GT.1)READ(50,9006)(FACT(N),N=1,NOBLND)
```

```
9006 FORMAT(8E10.3)
```

No cartão F aparece a variável FACT(N)

FACT(IN)

Fração de cada material no caso de combustíveis mistos.

CARTÃO K

```
110READ(50.9007,END=200).(INUCL(I),XCOMP(I),I=1,5);NEXT
9007 FORMAT(5(I6,E9.2),I5)
```

As variáveis do cartão K são: INUCL (I), XCOMP e NEXT. Seus significados aparecem abaixo.

INUCL(I)

A variável INUCL identifica os isótopos presentes no reator antes da irradiação. Ela é composta da seguinte maneira: número atômico x 1000 + massa atômica x 10 + IS, onde IS é um indicador que recebe o valor 0 quando o isótopo que está sendo identificado se encontra no estado fundamental, e o valor 1 no caso do estado excitado.

XCOMP

Concentração em átomos-grama do nuclídeo identificado pela variável INUCL. Essa concentração deve referir-se a uma determinada quantidade de material, definida pela variável BASIS, colocada no reator.

Tabela 4.2 - Valores de MS e as propriedades correspondentes

Valor de MS	Propriedade
1	Composição em átomos-grama
2	Composição em gramas
3	Atividade em curies
4	Potência térmica em watts
5	Potência γ em watts
6	Volume de ar necessário para a diluição de um isótopo até a concentração máxima permissível
7	Volume de água necessário para a diluição de um determinado isótopo até a concentração máxima permissível.

NEXT

É um indicador que fornece o tipo de isótopo contido no cartão. A tabela 4.3 mostra os tipos de isótopos que podem ser colocados nos cartões K e os valores correspondentes da variável NEXT.

Tabela 4.3 - Tipos de isótopos e valores da variável NEXT, nos cartões K.

Valor de NEXT	Tipo de Isótopo
1	isótopos materiais estruturais e dos encamisamentos
2	isótopos dos materiais pesados
3	isótopos produtos de fissão

CARTÃO 0

READ(50,9008)MMN,MOUT,NOBLND,INDEX,MSUB,NGO,MPROS,MFEED

As variáveis MMN, MOUT, NOBLND, INDEX, NGO e MPROS já foram definidas anteriormente. As novas variáveis, MSUB e MFEED, têm seus significados relacionados abaixo.

MSUB

É o período de tempo a partir do qual se deseja iniciar a segunda etapa dos cálculos.

MFEED

É um indicador para a hipótese da alimentação - contínua do reator. Para:

MFEED = 0 não se considera essa hipótese

MFEED > 0 será considerada a alimentação contínua do reator, à mesma taxa fornecida anteriormente.

CARTÃO P

```
READ(50, 9003)LEMENT, FREPRO(LEMENT)
```

```
9003 FORMAT(16, 4X,E10.3)
```

O cartão P apresenta as variáveis LEMENT e FREPRO. A primeira representa o número atômico do elemento que será removido no reprocessamento e a segunda, FREPRO, significa a fração desse elemento que permanecerá no material irradiado após o reprocessamento.

Com esses 13 cartões é possível controlar-se o código "ORIGEN" de maneira que ele resolva corretamente o problema proposto e assim se possam obter as propriedades desejadas do combustível irradiado e do rejeito radioativo de alta atividade depois do reprocessamento.

4.1.4 OS DADOS UTILIZADOS

Apresentam-se, nesta seção, as informações que foram fornecidas ao programa "ORIGEN" no cálculo das propriedades do combustível irradiado e do rejeito de alta atividade proveniente do reprocessamento. A tabela 4.4 relaciona os valores atribuídos às variáveis anteriormente descritas.

O cartão A contém o título "Biblioteca de Informações Nucleares - PWR - Angra II" e o algarismo 2, à direita, na coluna 75, indicando que o conjunto de dados nucleares a ser usado é aquele aplicável aos reatores a água

pressurizada.

O cartão B fornece os valores 0,632, 0,333 e 2,0, respectivamente para as variáveis THERM, RES e FAST. Esses valores foram fornecidos pela Kraftwerk Union, fabricante da usina. Ainda nesse cartão, encontramos os valores 10^{-25} , 110778, 1, os quais indicam: que o valor limiar, abaixo do qual o código considerará zero, é 10^{-25} ; que os cálculos foram feitos no dia 7 de novembro de 1978; que as tabelas que trazem os volumes de ar e de água necessários à diluição de cada isótopo até a concentração máxima permitida serão omitidas; que a biblioteca de informações nucleares será lida em fita magnética.

O cartão C indica: que as propriedades dos actinídeos, dos materiais estruturais e dos produtos de fissão devem ser calculadas para 10 períodos de irradiação; que não haverá mistura de combustíveis; que a potência térmica específica será lida no cartão E; que todas as tabelas, com exceção daquelas excluídas anteriormente, devem ser impressas; que a seqüência de cálculos continuará logo em seguida (NGO = 1) e que não haverá alimentação contínua do reator.

O cartão D contém o título "Teste 5, Angra II", identificando o problema que está sendo estudado.

O cartão E indica que a potência específica é constante e igual a 30 MW por tonelada de combustível durante 10 períodos de irradiação.

O cartão G fornece os 10 intervalos de tempo para os quais as propriedades deverão ser calculadas. Os períodos escolhidos foram 110, 220, 330, 440, 550, 660, 770, 880, 990 e 1100 dias.

O cartão H indica que as propriedades a serem estudadas serão obtidas para uma tonelada de combustível e que a unidade de tempo a ser usada nesta parte dos cálculos é o dia.

O cartão I fornece os valores mínimos de 0,001, 0,001, 0,001 e 0,001 para as cinco primeiras propriedades - dos isótopos referidas na tabela 4.2, abaixo dos quais eles serão excluídos das tabelas - sumário a serem impressas nos cálculos pós-irradiação.

O cartão K apresenta a composição dos encamisamentos, dos espaçadores e demais materiais estruturais e ainda do combustível antes do início da irradiação.

Os cartões A, B, C, D, G, G, I e K são usados pelo programa na execução da primeira parte dos cálculos, na qual serão obtidas as composições isotópicas do combustível e dos materiais estruturais, nos 10 períodos de irradiação indicados no cartão G, e serão impressas as tabelas correspondentes.

Inicia-se, em seguida, a segunda etapa dos cálculos, onde se obtêm as propriedades do combustível queimado e dos materiais estruturais após a irradiação.

Tabela 4.4 - Valores atribuídos às variáveis do Código
"ORIGEN"

CARTÃO	VARIÁVEL	VALORES ATRIBUÍDOS	
	TITLE	Biblioteca de informações nucleares PWR. Angra II	
A	NULIBE	2	2
	THERM		0,632
	RES		0,333
	FAST		2.000
	ERR		1,0E-25
	NMO		9
B	NDAY		21
	NYR		78
	MPCTAB		1
	IMPT		0
	IR		0
	MMN		10
	MOUT		10
	NOBLND		0
	INDEX		0
C	NTABLE		0
	MSTAR		0
	NGO		1
	MPROS		0
	MFEED		0

CARTÃO	VARIÁVEL	VALOR ATRIBUIDO
D	TITLE	Teste 5 - Angra II - Enriquecimento 3,5
E	POWER	30,0
G	T(M)	110-220-330-440-550-660-770-880-990-1100
	BASIS	Calc. por tonelada de combustível
H	TCNST	86400
	TUNIT	D
I	CUTOFF	0,001
	INUCL	
K	XCOMP	} Composição em átomos-grama do cerne do reator*
	NEXT	
	MMN	0
	MDUT	10
	NO BLND	0
	INDEX	0
O	MSUB	10
	MSTAR	6
	NGO	1
	M PROS	0
	MFEED	0
D	TITLE	Angra II - Períodos de decaimento do combustível irradiado.

CARTÃO	VARIÁVEL	
G	T(M)	1-10-100-1000-10 ⁴ -10 ⁵ -10 ⁶ -10 ⁷ -10 ⁸ -10 ⁹
	BASIS	Cálc. por tonelada de combustível
H	TCONST	3.156 E7
	TUNIT	x
	MMN	0
	MOUT	10
	NOBLND	0
	INDEX	0
O	MSUB	-6
	MSTAR	4
	NGO	-1
	M PROS	0
	MFEED	0
D	TITLE	Angra II - Períodos de decaimento do rejeito radioativo.
G	T(M)	1-10-100-1000-10 ⁴ -10 ⁵ -10 ⁶ -10 ⁷ -10 ⁸ -10 ⁹
	SASIS	Cálculo por tonelada de rejeito
H	TCONST	3.156 E7
	TUNIT	x
P	LEMEWT	36 - 54 - 92 - 94
	FREPRO	0 - 0 - 0.005 - 0.005

* Por uma questão de clareza, apresentamos separadamente a composição, em átomos-grama, do cerne do reator.

NUCLÍDEOS	QUANTIDADE (ÁTOMOS-GRAMA)	NUCLÍDEOS	QUANTIDADE (ÁTOMOS-GRAMA)
^{10}B	$1,00 \times 10^{-2}$	^{50}Ti	$8,14 \times 10^{-1}$
		^{50}Cr	$2,04 \times 10^1$
^{11}B	$3,80 \times 10^{-2}$	^{52}Cr	$3,77 \times 10^2$
^{12}C	9,41	^{53}Cr	$4,20 \times 10^1$
^{13}C	$9,80 \times 10^{-2}$	^{54}Cr	$1,02 \times 10^1$
^{16}O	$2,38 \times 10^1$	^{55}Mn	$3,77 \times 10^1$
^{17}O	$9,00 \times 10^{-3}$	^{54}Fe	$7,92 \times 10^1$
^{18}O	$4,30 \times 10^{-2}$	^{56}Fe	$1,21 \times 10^3$
^{27}Al	4,85	^{57}Fe	$2,77 \times 10^1$
^{28}Si	$3,56 \times 10^1$	^{58}Fe	3,94
^{29}Si	1,75	^{59}Co	4,00
^{30}Si	1,12	^{58}Ni	$1,86 \times 10^2$
^{31}P	1,39	^{60}Ni	$1,08 \times 10^2$
^{32}S	$9,78 \times 10^{-1}$	^{61}Ni	4,66
^{33}S	$8,00 \times 10^{-3}$	^{62}Ni	$1,47 \times 10^1$
^{34}S	$4,10 \times 10^{-2}$	^{64}Ni	3,64
^{46}Ti	1,33	^{63}Cu	$1,52 \times 10^{-1}$
^{47}Ti	1,22	^{65}Cu	$6,60 \times 10^{-2}$
^{48}Ti	$1,18 \times 10^1$	^{90}Zn	$1,65 \times 10^3$
^{49}Ti	$8,60 \times 10^{-2}$	^{91}Zr	$3,55 \times 10^2$
		^{92}Zr	$5,36 \times 10^2$

NUCLÍDEOS	QUANTIDADE (ÁTOMOS-GRAMA)	NUCLÍDEO	QUANTIDADE (ÁTOMOS-GRAMA)
^{94}Zr	$5,37 \times 10^2$	^{236}U	$1,49 \times 10^2$
^{96}Zr	$8,41 \times 10^1$	^{238}U	$4,06 \times 10^3$
^{93}Nb	$1,30 \times 10^1$		
^{92}Mo	1,26		
^{94}Mo	$7,61 \times 10^{-1}$		
^{95}Mo	1,32		
^{96}Mo	1,37		
^{97}Mo	$7,70 \times 10^{-1}$		
^{98}Mo	1,96		
^{100}Mo	$7,55 \times 10^{-1}$		
^{114}Sn	$2,55 \times 10^{-1}$		
^{115}Sn	$1,34 \times 10^{-1}$		
^{116}Sn	5,47		
^{117}Sn	2,86		
^{118}Sn	9,01		
^{119}Sn	3,19		
^{120}Sn	$1,21 \times 10^1$		
^{122}Sn	1,70		
^{124}Sn	2,06		
^{181}Ta	$5,79 \times 10^{-1}$		

O cartão 0 indica: que as propriedades do combustível são desejadas em 10 períodos depois da sua retirada do reator; que a composição inicial nos cálculos de decaimento será aquela calculada anteriormente, no décimo período de irradiação (MSUB=10); que os nuclídeos que tiverem os valores menores que CUTOFF, no 6º período pós-irradiação serão omitidos das tabelas sumário (MSTAR = 6) e que a terceira etapa dos cálculos será executada logo em seguida (NGO = 1).

O cartão G apresenta o título "Angra II - Períodos de Decaimento do Combustível Irrradiado", que será impresso nas tabelas correspondentes a esta parte da resolução do problema.

O cartão H indica que as propriedades do combustível depois da irradiação serão calculadas em relação a uma tonelada de material e que a unidade de tempo a ser usada é o ano. Neste ponto, o programa executa os cálculos referentes a esta etapa do problema e imprime um novo conjunto de tabelas.

Em seguida, outro cartão 0 é lido, indicando que as propriedades do rejeito radioativo serão desejadas para 10 períodos de decaimento e que a composição inicial do combustível a ser reprocessado será aquela obtida anteriormente, depois de 160 dias de o material irradiado ter sido retirado do reator. O valor MSTAR = 4 indica que as tabelas sumário excluirão os isótopos cujas propriedades se encon-

tram abaixo de um determinado valor de CUTOFF fornecido anteriormente. A variável NGO recebe o valor 1, mostrando que, no final desta terceira etapa de cálculos, o problema estará resolvido.

O cartão D apresenta o título "Angra II - Períodos de Decaimento do Rejeito Radioativo", que identifica esta última fase do problema.

O cartão H mostra que a unidade de combustível a ser usada será a tonelada. E o último cartão de fornecimento de dados é o cartão P, o qual indica que todo o xenônio, todo o criptônio e 99,5% do urânio e do plutônio são removidos no reprocessamento. Segue-se um cartão em branco e terminam as informações fornecidas ao código "ORIGEN" para a resolução do problema proposto.

4.2 RESULTADOS OBTIDOS

Nesta seção apresentam-se os resultados obtidos na caracterização do combustível da usina de Angra II e do rejeito radioativo de alta atividade que será produzido quando forem executadas as operações de reprocessamento.

Com a utilização do programa "ORIGEN" pudemos delinear o comportamento de cerca de 800 núclídeos, durante e após a irradiação. Dado o grande número de isótopos, não foi possível apresentá-los todos na forma de diagramas ou de

tabelas. Procuramos, no entanto, relacionar sempre os núclídeos mais característicos para cada propriedade estudada.

Os resultados dos cálculos encontram-se divididos em três partes. A primeira delas diz respeito ao combustível durante o período de irradiação. A segunda trata do combustível depois de queimado e a última refere-se ao rejeito radioativo de alta atividade gerado no reprocessamento. Esses resultados aplicam-se às três alternativas de operação do ciclo do combustível nuclear. Os valores obtidos na primeira fase dos cálculos são aplicáveis as alternativas I, II, e III. Os resultados obtidos na segunda fase referem-se especificamente à alternativa I, na qual o combustível irradiado é tratado como rejeito. Os valores obtidos na terceira etapa relacionam-se às alternativas II e III, as quais incluem o reprocessamento.

Durante a irradiação, obtivemos a composição isotópica do combustível para os períodos de 110, 220, 330, 440, 550, 660, 770, 880, 990 e 1100 dias de permanência no reator. Os resultados aparecem na forma gráfica e na forma de tabelas para os principais isótopos.

Para o combustível irradiado apresentam-se gráficos e tabelas, mostrando a quantidade total de calor gerado (decorrente do decaimento dos elementos formadores dos materiais estruturais, dos actinídeos e dos produtos de fissão), a energia gama total emitida, a radioatividade total emitida,

a taxa total de produção de nêutrons gerados em fissões espontâneas e a taxa total de produção de nêutrons provenientes de reações (α, n) . A composição isotópica é apresentada apenas na forma de tabelas. Isto se deve ao fato de que, uma vez adotada a alternativa I de operação do ciclo do combustível, o material irradiado passa a ser tratado como uma unidade individual, não sendo mais tão importante sua composição isotópica, uma vez que todos os nuclídeos permanecerão confinados no interior dos tubos de "Zircaloy". Nos diagramas aparecem sempre 4 curvas, referidas como T_1 , T_2 , T_3 e total. A primeira delas refere-se aos produtos de fissão; a segunda aos actinídeos e a terceira aos elementos dos materiais estruturais. A curva denominada total apresenta a soma das três curvas anteriores.

Consideramos períodos de 1 a 10^7 anos, após a retirada do combustível do reator, no cálculo de todas as propriedades. Esse intervalo de tempo que, à primeira vista, pode parecer por demais extenso, na realidade não o é, se considerarmos que certos radionuclídeos possuem meias-vidas maiores que 10^5 anos.

Assim sendo, em termos de armazenagem definitiva do combustível irradiado ou do rejeito de alta atividade, há necessidade absoluta do conhecimento das propriedades destes materiais durante longos períodos de tempo.

Na apresentação da composição isotópica escolhe

mos os mesmos elementos usados na primeira fase dos cálculos, durante a irradiação no reator, em sua maioria actinídeos. Es se procedimento se deve ao fato de que esses elementos apresentam esquemas de decaimento mais complexos e mais interessantes que os produtos de fissão. Estes últimos têm seus comportamentos representados pelo ^{137}Cs e pelo ^{90}Sr .

Na terceira etapa dos cálculos efetuamos a caracterização do rejeito radioativo. A composição do combustível queimado, antes do reprocessamento, é aquela obtida depois de 100 dias de permanência no reator, quando a grande maioria - dos radionuclídeos formados já atingiram o equilíbrio. Consideramos arbitrariamente que o combustível é reprocessado 160 dias ap^os ser retirado da usina. Esse período de tempo permite o decaimento dos isótopos de meia-vida curta e a diminuição da radioatividade do material queimado. Admitimos que, durante o reprocessamento, todo o Xe e todo o Kr são eliminados do rejeito. Essa premissa é perfeitamente aceitável, uma vez que existem sistemas coletores de gases já desenvolvidos. Admitimos, também, que 99,5% do U e do Pu são recuperados no reprocessamento.

Nesta última etapa dos cálculos apresentam-se - gráficos e tabelas para todas as características estudadas. Nos diagramas, além dos totais globais de cada propriedade, apresentamos curvas representativas dos comportamentos individuais dos principais radionuclídeos. No estudo dessas pro-

Tabela 4.5 - Variação do fluxo neutrônico durante a operação do reator.

<u>Tempo (dias)</u>	<u>Fluxo (nêutron/s)</u>
110	$2,45 \times 10^{13}$
220	$2,46 \times 10^{13}$
330	$2,52 \times 10^{13}$
440	$2,60 \times 10^{13}$
550	$2,70 \times 10^{13}$
660	$2,81 \times 10^{13}$
770	$2,94 \times 10^{13}$
880	$3,07 \times 10^{13}$
990	$3,20 \times 10^{13}$
1100	$3,34 \times 10^{13}$

priedades utilizou-se, como no caso anterior, o intervalo de tempo de 1 a 10^7 anos. A escolha foi feita uma vez que existem radioelementos de meia vida bastante longa, que devem ser isolados por longos períodos de tempo, durante os quais há necessidade do conhecimento de seus comportamentos.

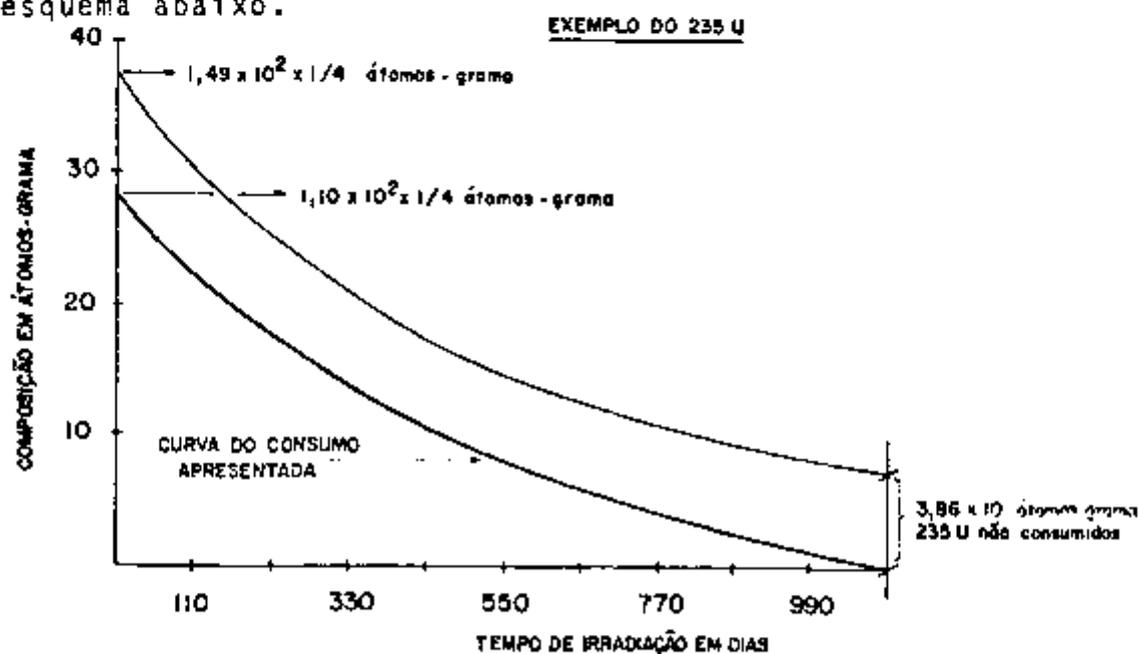
A figura 4.2 apresenta as propriedades estudadas nas 3 etapas e indica ainda aquelas para as quais foram construídos gráficos, tabelas, ou ambos.

Combustível durante a irradiação	- Composição isotópica ** (átomos- grama)
Combustível irradiado	- Composição isotópica (átomos- grama)
	- Calor gerado (watt)**
	- Energia Gama (watt)**
	- Radioatividade (Ci) **
	- Taxa de produção de nêutrons (n/s) **
Rejeito Radioativo	- Composição isotópica (átomos- grama) **
	- Calor gerado (watt) **
	- Energia gama (watt) **
	- Radioatividade (Ci) **
	- Taxa de produção de nêutrons (n/s) **

Figura 4.2 - Propriedades estudadas nos 3 etapas dos cálculos executados com o programa ORIGEN. O* significa que foram elaborados gráficos e o ** representa as propriedades para os quais foram feitos gráficos e tabelas. Nos demais casos apresentam-se apenas as tabelas.

4.2.1 O COMBUSTÍVEL DURANTE A IRRADIAÇÃO

Nesta secção estudamos o comportamento do combustível durante 1100 dias de irradiação (3 anos aproximadamente), a uma potência média 30 MW por tonelada de metal pesado e com uma taxa de queima de 33000 MWD/t. O enriquecimento inicial considerado foi de 3,6%, valor esse fornecido pela Kraftwerk Union. A variação do fluxo de nêutrons durante o funcionamento do reator é apresentada na tabela 4.5. A figura 4.3 mostra a composição isotópica do combustível em função do tempo de irradiação. A tabela 4.6 apresenta os valores correspondentes à figura 4.3. Deve-se notar que as curvas do ^{235}U e do ^{238}U representam apenas seus consumos. Para construí-la e subtraímos, ponto a ponto, o valor final da concentração desses isótopos, depois de 3 anos de irradiação, como ilustra o esquema abaixo.



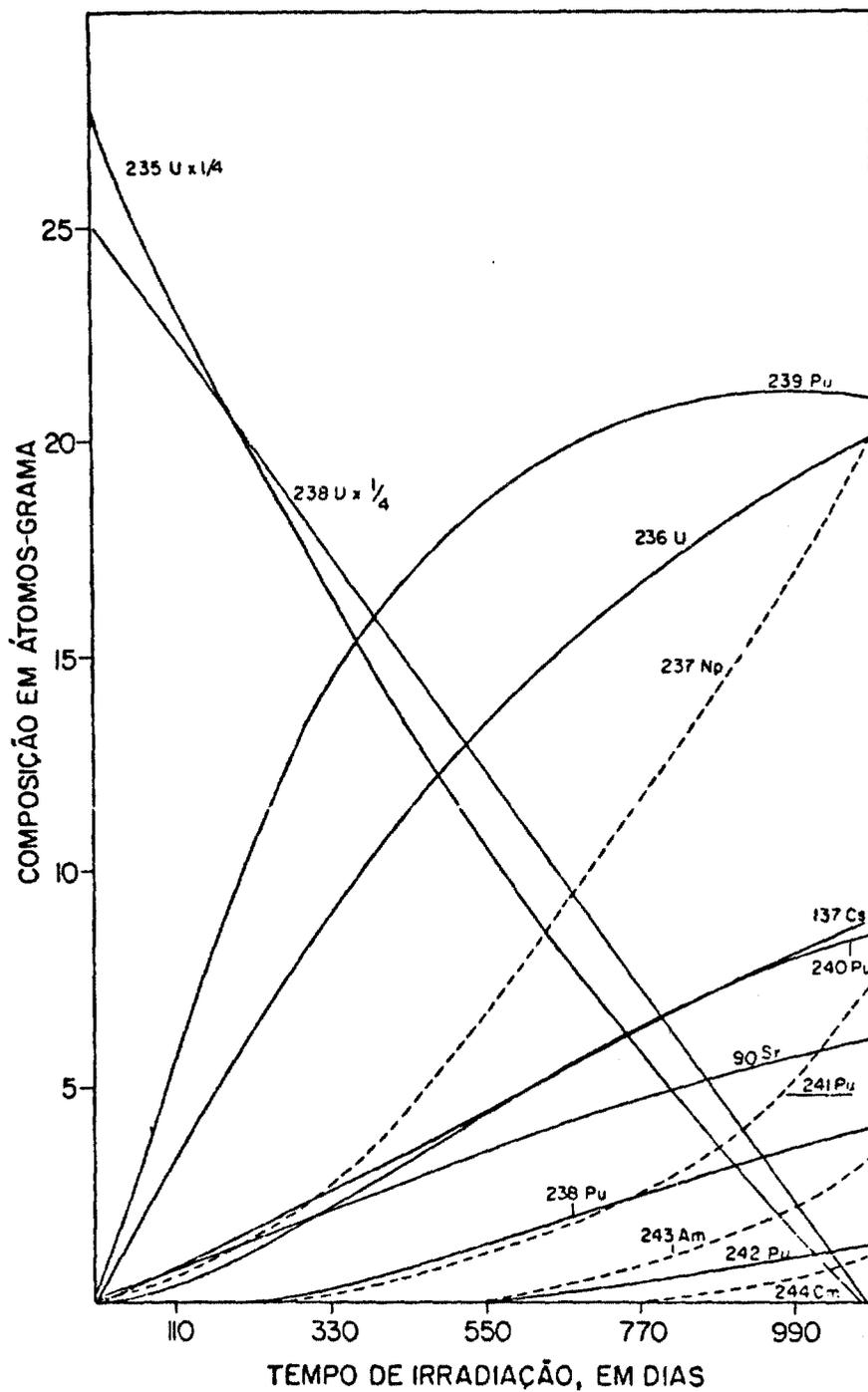


Figura 4.3 - Composição isotópica do combustível, em átomos-grama, durante a irradiação. As linhas tracejadas representam os nuclídeos cujas composições foram multiplicadas por 10.

Tabela 4.6 - Composição isotópica do combustível, em átomos grama em função do tempo de irradiação.

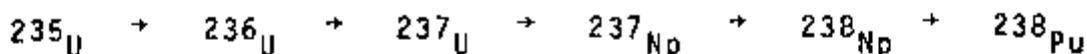
Nucleídeos	tempo em dias									
	110	220	330	440	550	660	770	880	990	1100
^{90}Sr	$8,03 \times 10^{-1}$	1,55	2,25	2,91	3,54	4,13	4,70	5,23	5,73	6,21
^{137}Cs	$9,05 \times 10^{-1}$	1,82	2,73	3,63	4,54	5,44	6,34	7,24	8,14	9,03
^{235}U	$1,37 \times 10^{-2}$	$1,17 \times 10^{-2}$	$1,04 \times 10^{-2}$	$9,13 \times 10^{-3}$	$8,02 \times 10^{-3}$	$6,97 \times 10^{-3}$	$6,04 \times 10^{-3}$	$5,20 \times 10^{-3}$	$4,45 \times 10^{-3}$	$3,78 \times 10^{-3}$
^{238}U	3,41	6,36	9,02	$1,14 \times 10^1$	$1,34 \times 10^1$	$1,52 \times 10^1$	$1,68 \times 10^1$	$1,81 \times 10^1$	$1,92 \times 10^1$	$2,01 \times 10^1$
^{237}Np	$5,12 \times 10^{-2}$	$1,56 \times 10^{-1}$	$2,97 \times 10^{-1}$	$4,76 \times 10^{-1}$	$6,85 \times 10^{-1}$	$9,19 \times 10^{-1}$	1,17	1,44	1,72	2,00
^{238}Pu	$1,70 \times 10^{-3}$	$9,75 \times 10^{-3}$	$2,76 \times 10^{-2}$	$5,86 \times 10^{-2}$	$1,05 \times 10^{-1}$	$1,70 \times 10^{-1}$	$2,57 \times 10^{-1}$	$3,66 \times 10^{-1}$	$4,99 \times 10^{-1}$	$6,55 \times 10^{-1}$
^{236}C	3,41	6,36	9,02	$1,14 \times 10^1$	$1,34 \times 10^1$	$1,52 \times 10^1$	$1,68 \times 10^1$	$1,81 \times 10^1$	$1,92 \times 10^1$	$2,01 \times 10^1$
^{237}Np	$5,12 \times 10^{-2}$	$1,54 \times 10^{-1}$	$2,97 \times 10^{-1}$	$4,76 \times 10^{-1}$	$6,85 \times 10^{-1}$	$9,19 \times 10^{-1}$	1,17	1,44	1,72	2,00
^{234}U	$4,05 \times 10^3$	$4,04 \times 10^3$	$4,03 \times 10^3$	$4,03 \times 10^3$	$4,02 \times 10^3$	$4,01 \times 10^3$	$4,00 \times 10^3$	$3,99 \times 10^3$	$3,98 \times 10^3$	$3,96 \times 10^3$
^{239}Pu	6,43	$1,12 \times 10^1$	$1,45 \times 10^1$	$1,89 \times 10^1$	$2,46 \times 10^1$	$3,18 \times 10^1$	$4,06 \times 10^1$	$5,11 \times 10^1$	$6,36 \times 10^1$	$7,81 \times 10^1$
^{240}Pu	$3,35 \times 10^{-1}$	1,13	2,17	3,31	4,46	5,56	6,56	7,44	8,20	8,83
^{241}Pu	$2,55 \times 10^{-2}$	$1,55 \times 10^{-1}$	$4,00 \times 10^{-1}$	$7,83 \times 10^{-1}$	$1,27$	1,83	2,43	3,02	3,60	4,12
^{241}Am	$1,77 \times 10^{-7}$	$2,22 \times 10^{-6}$	$9,15 \times 10^{-6}$	$3,39 \times 10^{-5}$	$1,24 \times 10^{-4}$	$4,44 \times 10^{-4}$	$1,59 \times 10^{-3}$	$5,62 \times 10^{-3}$	$1,94 \times 10^{-2}$	$6,84 \times 10^{-2}$
^{243}Am	$1,12 \times 10^{-5}$	$2,93 \times 10^{-4}$	$1,93 \times 10^{-3}$	$7,19 \times 10^{-3}$	$2,71 \times 10^{-2}$	$9,63 \times 10^{-2}$	$3,48 \times 10^{-1}$	$1,27 \times 10^0$	$4,63 \times 10^0$	$1,64 \times 10^1$
^{244}Cm	$2,53 \times 10^{-7}$	$1,33 \times 10^{-5}$	$1,36 \times 10^{-4}$	$6,90 \times 10^{-4}$	$2,41 \times 10^{-3}$	$8,63 \times 10^{-3}$	$3,05 \times 10^{-2}$	$1,10 \times 10^{-1}$	$3,96 \times 10^{-1}$	$1,40 \times 10^0$

Os isótopos colocados no diagrama foram, além do ^{235}U e do ^{238}U , o ^{236}U , o ^{238}Pu , o ^{239}Pu , o ^{240}Pu , o ^{241}Pu , o ^{242}Pu , o ^{243}Pu , o ^{243}Am , o ^{244}Cm , o ^{90}Sr e o ^{139}Cs .

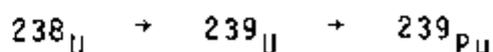
Antes da queima, em uma tonelada de combustível havia 35 kg de ^{235}U ($1,49 \times 10^2$ átomos-grama) e 966 kg de ^{238}U ($4,06 \times 10^3$ átomos-grama). Durante os 1100 dias de permanência no reator foram consumidos 26,1 kg ($1,11 \times 10^2$ átomos-grama) de ^{235}U e 23,5 kg (100 átomos-grama) de ^{238}U .

A reação de fissão libera 191 MeV de energia por átomo (excluindo a energia dos neutrinos), sendo 168 MeV como energia cinética dos produtos de fissão, 5 MeV como energia cinética dos nêutrons, 5 MeV provenientes dos raios γ prontos, 7 MeV como energia das partículas β produzidas no decaimento dos produtos de fissão e 6 MeV decorrentes dos raios γ associados ao decaimento β .

O ^{235}U é queimado exponencialmente, sendo 80% em fissões e 20% em capturas radioativas, formando, neste último caso, o ^{236}U . Devido à sua pequena seção de choque, apenas 10% desse isótopo passa a ^{237}Np , do qual cerca de 25% se transforma em ^{238}Pu . As reações envolvidas nestas transformações são:



O ^{238}U é queimado linearmente com o tempo, devido à sua baixa taxa de consumo. Da quantidade total queimada, 7% são fissionados por nêutrons rápidos e 93% sofrem captura radioativa, formando o ^{239}Pu . A reação que ocorre é indicada abaixo:



O ^{239}Pu , devido à sua alta seção de choque, é largamente destruído, sendo 75% por fissão e 29% por captura radioativa. Sua quantidade não continua a crescer linearmente com o tempo, pois o isótopo passa a participar das reações no reator. O nivelamento da curva do ^{239}Pu indica que, quase no final da vida do combustível, esse nuclídeo está sendo destruído na proporção em que é formado. O ^{240}Pu , produzido com a captura de um nêutron pelo ^{239}Pu , pode capturar outro nêutron, formando o ^{241}Pu , o qual, por sua vez, pode transformar-se em ^{242}Pu ou, ainda, fissionar. O ^{242}Pu formado dá origem ao ^{243}Pu que, por decaimento β , forma o ^{243}Am . Este nuclídeo captura um nêutron e transforma-se em ^{244}Am , que, posteriormente, passa a ^{244}Cm com a emissão de uma partícula β .

Por meio de processos semelhantes de captura radioativa formam-se a partir do ^{235}U , o ^{237}Np e o ^{238}Pu .

Nos 1100 dias de irradiação o enriquecimento -

passa de 3,6% a 0,9%.

Entre os produtos de fissão formados, os mais característicos são o ^{137}Cs e o ^{90}Sr , os quais constituem a proximadamente 5% do total.

Os inventários dos diversos radionuclídeos formados durante os 1100 dias de irradiação foram usados como ponto de partida na segunda fase dos cálculos, a qual trata do combustível depois de retirado do reator.

4.2.2 O COMBUSTÍVEL IRRADIADO

A caracterização do combustível irradiado foi feita com base nas figuras 4.4, 4.5, 4.6, 4.7, que representam, respectivamente, a taxa de geração de calor, a radioatividade, a energia emitida pelos raios γ e a taxa de geração de nêutrons. Apresentamos também, na tabela 4.7, as concentrações de diversos nuclídeos em função do tempo pós-irradiação.

Taxa de Geração de Calor

A figura 4.4 mostra que, nos primeiros 100 anos, quase todo o calor gerado no combustível irradiado deve-se aos produtos de fissão. Após esse período, a maior contribuição passa a ser a dos actinídeos. Os isótopos dos materiais estruturais produzem calor em quantidades menores até 200 anos, tornando-se, em seguida, inexpressivos em relação à quantidade

Tabela 4.7 - Composição isotópica do combustível irradiado, em átomos-grama em função do tempo após a retirada do reator.

Nuclídeos	tempo em anos						
	1	10	10 ²	10 ³	10 ⁴	10 ⁵	10 ⁶
⁹⁰ Sr	6,06	4,25	3,27x10 ⁻¹	1,20x10 ⁻¹⁰	0,0	0,0	0,0
¹³⁷ Ce	8,82	7,17	8,96x10 ⁻¹	8,32x10 ⁻¹⁰	0,0	0,0	0,0
²³⁵ U	3,78x10 ¹	3,78x10 ¹	3,78x10 ¹	3,84x10 ¹	4,32x10 ¹	5,80x10 ¹	6,01x10 ¹
²³⁶ U	2,01x10 ¹	2,01x10 ¹	2,02x10 ¹	2,10x10 ¹	2,59x10 ¹	2,90x10 ¹	2,82x10 ¹
²³⁷ Np	2,05	2,06	2,55	5,39	6,25	6,08	4,54
²³⁸ Pu	6,87x10 ⁻¹	6,48x10 ⁻¹	3,22x10 ⁻¹	3,10x10 ⁻¹	0,0	0,0	0,0
²³⁵ U	2,01x10 ¹	2,01x10 ¹	2,02x10 ¹	2,10x10 ¹	2,59x10 ¹	2,90x10 ¹	2,82x10 ¹
²³⁷ Np	2,05	2,06	2,55	5,39	6,25	6,08	4,54
²³⁸ U	3,96x10 ³	3,96x10 ³	3,96x10 ³	3,96x10 ³	3,96x10 ³	3,96x10 ³	3,96x10 ³
²³⁹ Pu	2,20x10 ¹	2,20x10 ¹	2,19x10 ¹	2,14x10 ¹	1,67x10 ¹	1,31	1,24x10 ⁻⁸
²⁴⁰ Pu	8,84	8,86	8,84	8,07	3,21	3,15x10 ⁻⁴	3,57x10 ⁻¹¹
²⁴¹ Pu	3,93	2,56	3,57x10 ⁻²	1,05x10 ⁻⁵	4,95x10 ⁻⁶	2,61x10 ⁻⁹	0,0
²⁴² Am	4,47x10 ⁻⁸	4,29x10 ⁻⁸	2,84x10 ⁻⁸	4,69x10 ⁻¹⁰	0,0	0,0	0,0
²⁴³ Am	3,43x10 ⁻¹	3,43x10 ⁻¹	3,40x10 ⁻¹	3,14x10 ⁻¹	1,39x10 ⁻¹	3,99x10 ⁻⁵	3,88x10 ⁻⁹
²⁴⁴ Cm	1,00x10 ⁻¹	7,11x10 ⁻²	2,26x10 ⁻³	2,71x10 ⁻¹⁸	2,83x10 ⁻¹⁸	2,60x10 ⁻¹⁷	1,24x10 ⁻¹⁶

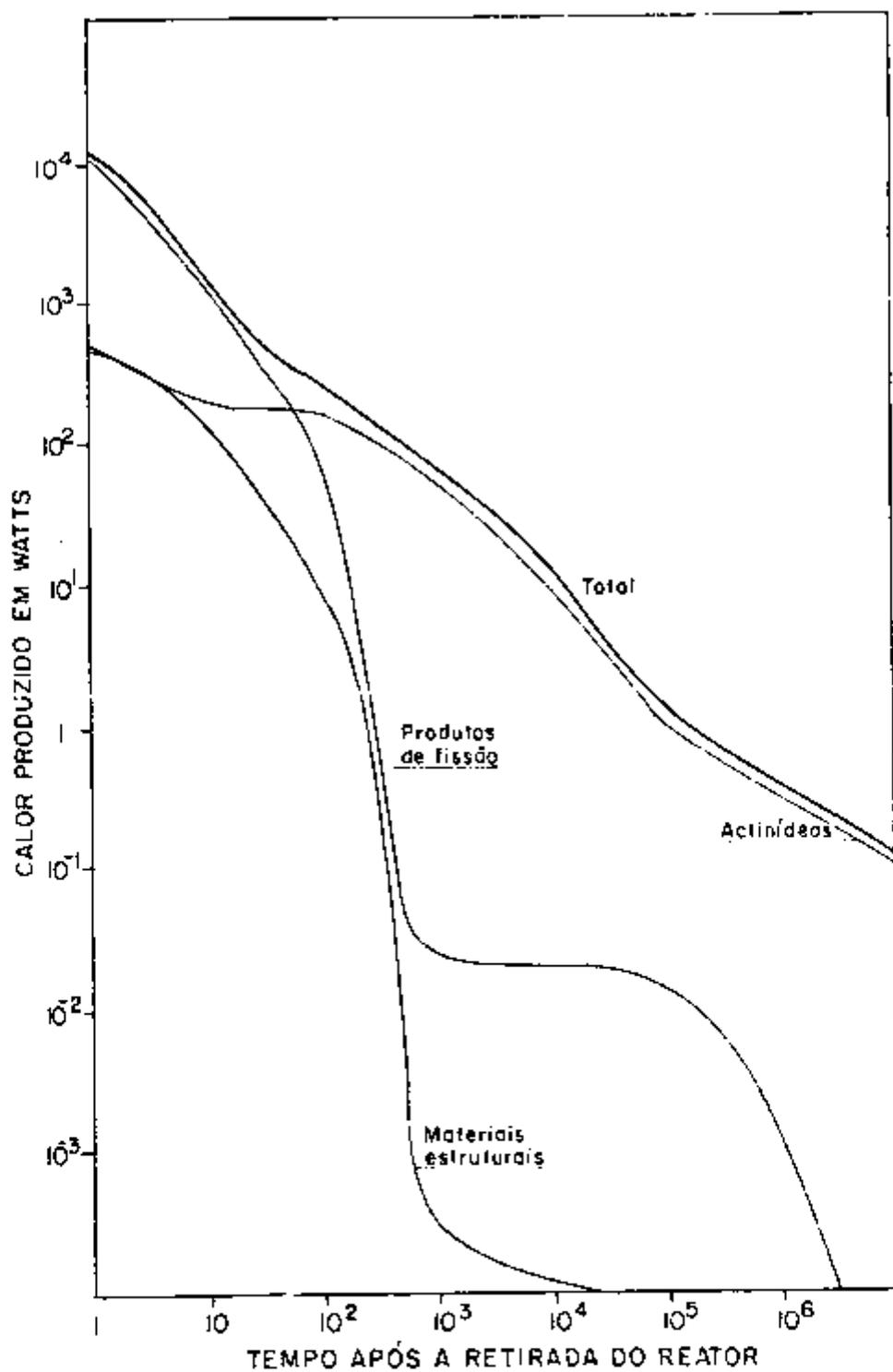


Figura 4.4 - Quantidade total de calor gerado, em watts, no combustível irradiado, em função do tempo após a retirada do reator.

Tabela 4.8 - Quantidade total de calor gerado no combustível irradiado.

Tempo (anos)	Calor gerado (watts)			
	Produtos de fissão	Actinídeos	Isótopos dos materiais es- truturais.	Total
1	$1,03 \times 10^4$	$4,41 \times 10^2$	$4,71 \times 10^{-2}$	$1,12 \times 10^4$
10	$1,05 \times 10^3$	$2,09 \times 10^2$	$1,16 \times 10^2$	$1,38 \times 10^3$
10^2	$1,07 \times 10^2$	$1,71 \times 10^2$	$1,07 \times 10^{-1}$	$2,78 \times 10^2$
10^3	$2,22 \times 10^{-2}$	$4,80 \times 10^2$	$2,70 \times 10^{-4}$	$4,80 \times 10^1$
10^4	$2,05 \times 10^{-2}$	$1,33 \times 10^1$	$1,24 \times 10^{-4}$	$1,33 \times 10^1$
10^5	$1,32 \times 10^{-1}$	$0,15 \times 10^{-1}$	$8,06 \times 10^{-5}$	$9,28 \times 10^{-1}$
10^6	$8,80 \times 10^{-4}$	$3,40 \times 10^{-1}$	$4,00 \times 10^{-5}$	$3,41 \times 10^{-1}$
10^7	$3,92 \times 10^{-5}$	$1,16 \times 10^{-1}$	$4,04 \times 10^{-6}$	$1,16 \times 10^{-1}$

total gerada.

Pode-se verificar também que o calor proveniente dos produtos de fissão diminui cerca de uma ordem de magnitude nos primeiros 10 anos, passando de 10^4 para 10^3 watts - por tonelada de combustível. O mesmo ocorre com a quantidade global de calor. Nota-se ainda que a contribuição dos produtos de fissão se torna irrelevante depois de 400 anos, enquanto que a produção de calor pelos actínídeos perdura - além de 10^5 anos.

A tabela 4.8 mostra os valores correspondentes às curvas apresentadas na figura 4.4

Radioatividade

O comportamento da radioatividade é bastante semelhante ao caso anterior. Nos primeiros 100 anos ela se deve quase que exclusivamente aos produtos de fissão. Após esse período, os actínídeos começam a assumir uma importância maior, tornando-se, depois dos 200 anos, os maiores contribuintes para a radioatividade total.

Durante a primeira centena de anos a radioatividade dos produtos de fissão diminui duas ordens de magnitude, passando de 10^6 para 10^4 curies por tonelada de rejeito. A contribuição dos isótopos dos materiais estruturais passa de 10^4 para 10^2 Ci/t, no mesmo intervalo de tempo.

Deve-se notar ainda que a atividade total dimi-

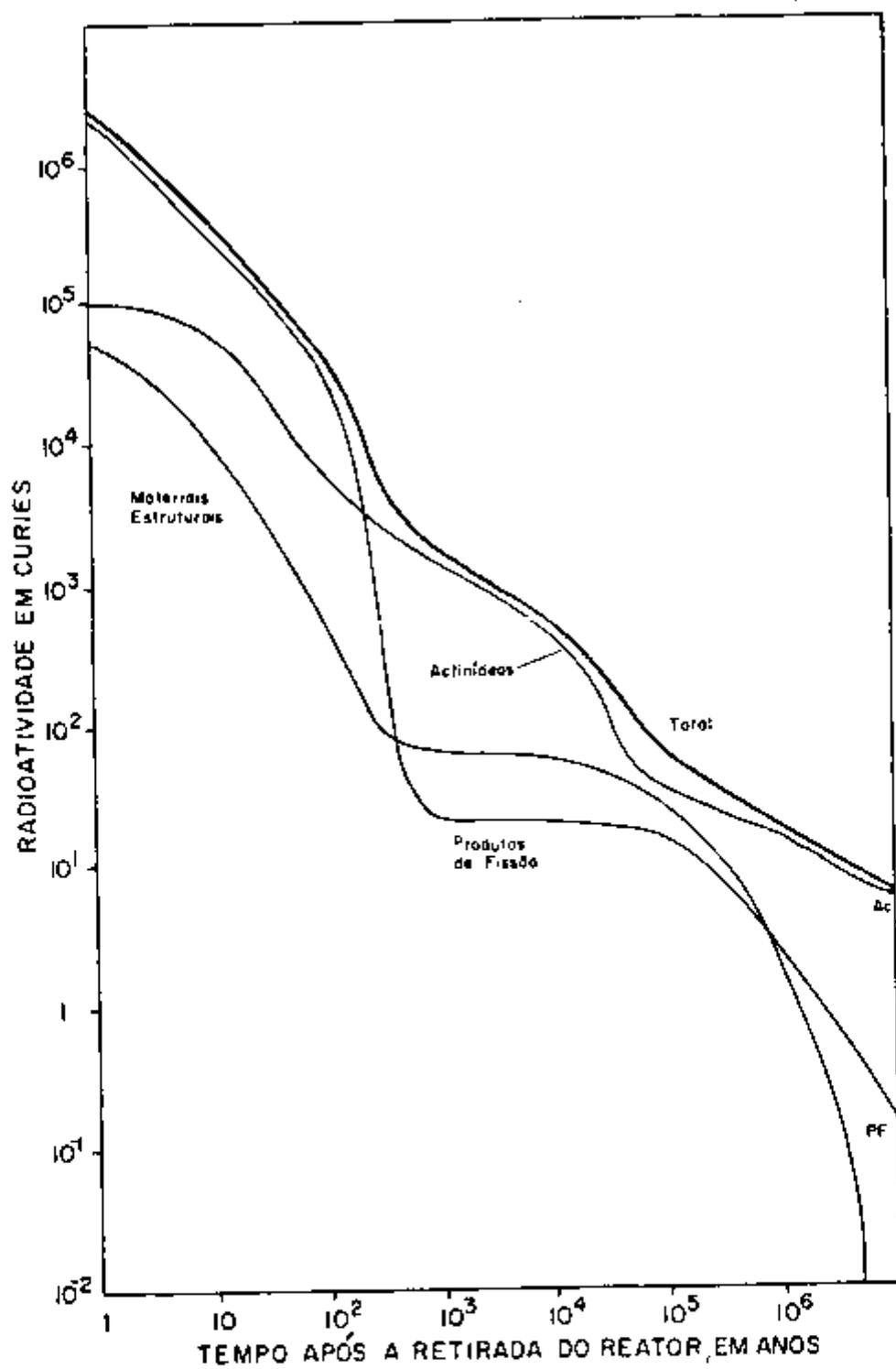


Figura 4.5 - Radioatividade total, em curies, do combustível, em função do tempo após a retirada do reator.

Tabela 4.9 Radioatividade total do combustível irradiado
radioatividade em curies

Tempo (anos)	Produtos de fissão	Actinídeos	Isótopos dos materiais es- truturais	Total
1	$2,21 \times 10^6$	$1,09 \times 10^5$	$6,27 \times 10^4$	$2,38 \times 10^6$
10	$3,19 \times 10^5$	$6,90 \times 10^4$	$1,11 \times 10^4$	$3,99 \times 10^5$
10^2	$3,48 \times 10^4$	$6,10 \times 10^3$	$6,71 \times 10^2$	$4,16 \times 10^4$
10^3	$2,10 \times 10^1$	$1,50 \times 10^3$	7,10	$1,53 \times 10^3$
10^4	$2,00 \times 10^1$	$4,35 \times 10^2$	5,92	$4,61 \times 10^2$
10^5	$1,54 \times 10^1$	$3,35 \times 10^1$	2,83	$5,17 \times 10^1$
10^6	3,31	$1,49 \times 10^1$	$1,47 \times 10^{-1}$	$1,84 \times 10^1$
10^7	$1,30 \times 10^{-1}$	5,51	$2,57 \times 10^{-3}$	5,64

nui uma ordem de magnitude na primeira d cada e duas ordens na segunda. Outro fato importante   que a radioatividade dos produtos de fiss o se reduz em cerca de 5 ordens de grandeza nos primeiros 1000 anos.

A tabela 4.9 mostra os valores correspondentes  s curvas apresentadas na figura 4.5

Energia Emitida pelos Raios γ

A an lise da figura 4.6 mostra que, quase a totalidade da energia emitida pelos raios γ , se deve aos produtos de fiss o. Nos primeiros 100 anos ela diminui duas ordens de grandeza, passando de 10^4 para 10^2 watts por tonelada de combust vel. A contribui o dos is topos dos materiais estruturais   razoavelmente importante na primeira centena de anos (cerca de 10^3 watt/t), per odo ap s o qual diminui bastante. Os actin deos, como seria de esperar, participam muito pouco na energia total gerada pelos raios γ . Deve-se notar tamb m que, depois de 10^3 anos, praticamente cessa a contribui o dos produtos de fiss o, passando a energia global a decorrer quase que exclusivamente dos actin deos, os quais continuam perdurando at  mais de 10^5 anos.

A tabela 4.10 apresenta os valores totais da energia emitida pelos raios gama para as tr s classes de is topos.

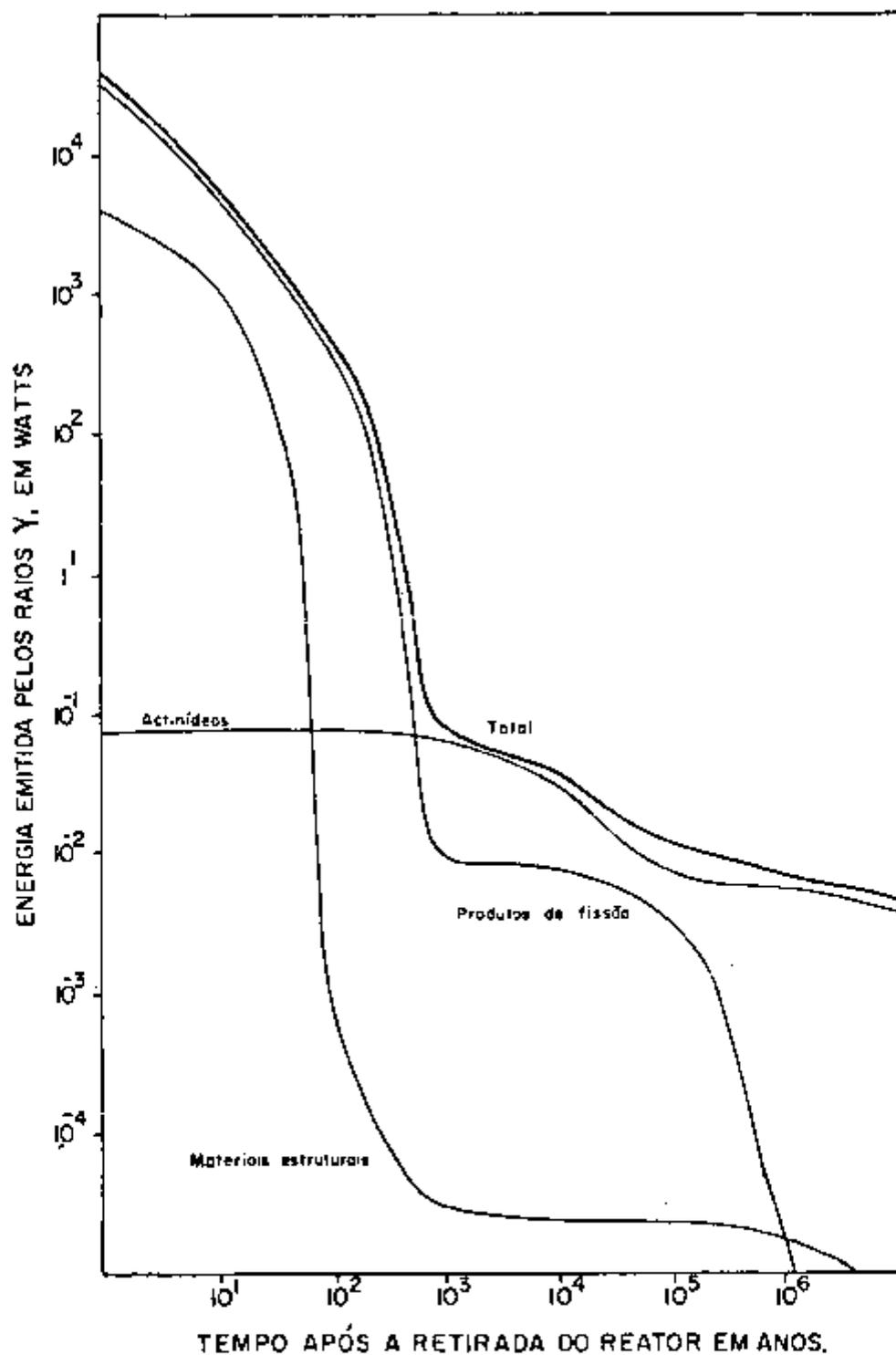


Figura 4.6 - Energia total emitida, por segundo, (watts) pelos raios γ , no combustível irradiado, em função do tempo após a retirada do reator.

Tabela 4.10 Energia total emitida, por segundo, pelos raios γ no combustível irradiado.

energia/s (watt)				
Tempo (anos)	Produtos de fissão	Actinídeos	Isótopos dos materiais estruturais	Total
1	$3,34 \times 10^3$	$7,48 \times 10^{-2}$	$4,01 \times 10^2$	$3,74 \times 10^3$
10	$4,36 \times 10^2$	$7,47 \times 10^{-2}$	$1,07 \times 10^2$	$5,43 \times 10^2$
10^2	$4,12 \times 10^1$	$7,36 \times 10^{-2}$	$7,83 \times 10^{-4}$	$4,13 \times 10^1$
10^3	$8,04 \times 10^{-3}$	$6,81 \times 10^{-2}$	$2,72 \times 10^{-5}$	$7,62 \times 10^{-2}$
10^4	$7,55 \times 10^{-3}$	$3,15 \times 10^{-2}$	$2,54 \times 10^{-5}$	$3,91 \times 10^{-2}$
10^5	$4,05 \times 10^{-3}$	$7,59 \times 10^{-3}$	$2,29 \times 10^{-5}$	$1,17 \times 10^{-2}$
10^6	$1,60 \times 10^{-5}$	$7,09 \times 10^{-3}$	$1,63 \times 10^{-5}$	$7,12 \times 10^{-3}$
10^7	$5,55 \times 10^{-6}$	$3,49 \times 10^{-3}$	$3,00 \times 10^{-6}$	$3,50 \times 10^{-3}$

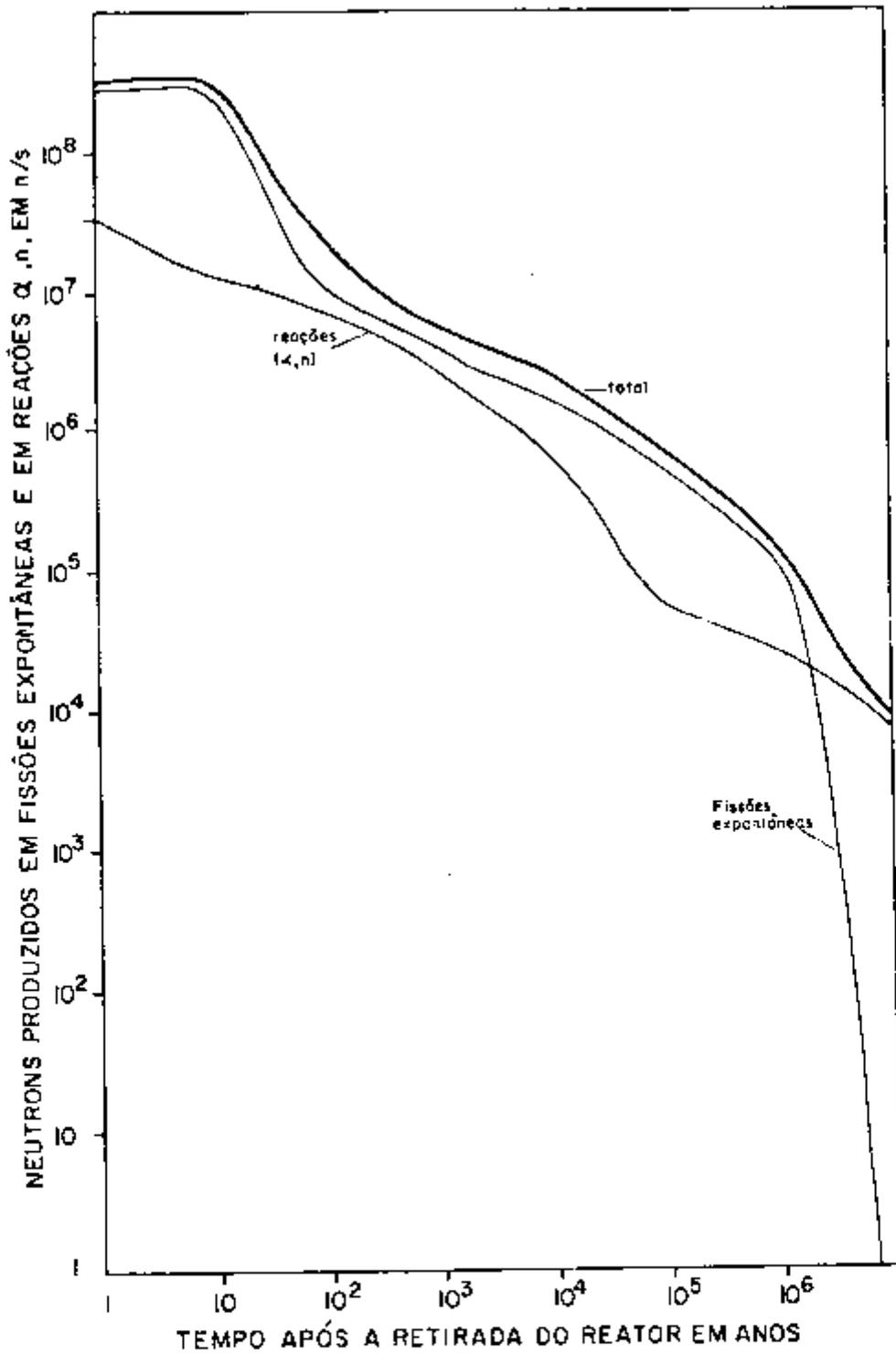


Figura 4.7 - Taxa de produção de nêutrons, em nêutrons por segundo, no combustível irradiado, em função do tempo após a retirada do reator.

Tabela 4.11 Taxa total de produção de nêutrons no combustível irradiado

Taxa de produção de nêutrons (nêutrons/s)			
Tempo (anos)	reações (α , n)	fissão espontânea	Total
1	$3,12 \times 10^7$	$3,23 \times 10^8$	$3,54 \times 10^8$
10	$1,26 \times 10^7$	$2,02 \times 10^8$	$2,15 \times 10^8$
10^2	$1,01 \times 10^7$	$1,07 \times 10^7$	$2,09 \times 10^7$
10^3	$2,69 \times 10^6$	$3,86 \times 10^6$	$6,55 \times 10^6$
10^4	$6,76 \times 10^5$	$1,74 \times 10^6$	$2,41 \times 10^6$
10^5	$5,04 \times 10^4$	$5,47 \times 10^5$	$5,98 \times 10^5$
10^6	$2,56 \times 10^4$	$1,05 \times 10^5$	$1,31 \times 10^5$
10^7	$7,08 \times 10^3$	$2,78 \times 10^{-1}$	$7,08 \times 10^3$

Taxa de Geração de Nêutrons

Os nêutrons, no combustível irradiado, provêm de duas fontes: as fissões espontâneas e as reações (α, n) induzidas no oxigênio existente nas pastilhas cerâmicas. A maior contribuição para a taxa total de geração de nêutrons é a fissão espontânea. A observação da figura 4.7 mostra que o número de nêutrons produzidos por este processo praticamente não varia - nos primeiros 10 anos, ocorrendo, no entanto, uma redução de de uma ordem de grandeza no final da primeira centena de anos.

A contribuição fornecida pelas reações α, n é relativamente importante apenas nos primeiros 100 anos. Após esse período ela diminui vagarosamente a valores subsidiários. Cumpre notar, porém, que até 10^7 anos ainda é produzida uma grande quantidade de nêutrons no combustível irradiado.

A tabela 4.11 apresenta os valores utilizados - na construção das curvas que mostram a produção de nêutrons no combustível irradiado.

4.2.3 O REJEITO RADIOATIVO DE ALTA ATIVIDADE.

Para estudo das propriedades do rejeito radioativo de alta atividade foram construídas 5 curvas, que mostram: a composição isotópica, a quantidade de calor emitida, a radioatividade, a energia emitida pelos raios γ e as taxas de produção de nêutrons provenientes de fissão espontânea - e de reações (α, n) , induzidas pelas partículas -

α emitidas pelos núcleos pesados. No apêndice A encontram-se as tabelas referentes às figuras apresentadas nesta secção.

Composição Isotópica - figura 4.8, tabela A1

Os nuclídeos, depois de retirados do reator, continuam transformando-se durante um longo período de tempo. Enquanto que as cadeias de decaimento dos produtos de fissão são relativamente simples, o mesmo não ocorre com os elementos transurânicos. Por esse motivo, preferimos dar maior atenção a estes últimos, na descrição da composição isotópica do rejeito radioativo. Para maior clareza da explicação os elementos transurânicos foram separados em quatro cadeias de decaimento, denominadas: $A = 4n$, $A = 4n-1$, $A = 4n-2$ e $A = 4n-3$, onde A é o número de massa e n um número inteiro.

Na cadeia $A = 4n$ são produzidas, inicialmente, as mesmas quantidades de ^{244}Cm , ^{240}Pu e ^{236}U (note-se que consideramos que 99,5% do Pu é extraído nas operações de reprocessamento). O ^{244}Cm decai rapidamente em ^{240}Pu , o qual se transforma em ^{236}U . Esse isótopo, por sua vez, passa, com o decorrer tempo, a ^{230}Th .

Na cadeia $A = 4n-1$ ocorre, de início, cerca de 4 vezes mais ^{243}Am do que ^{239}Pu . Pode-se verificar que, com o decorrer do tempo, o ^{243}Am transforma-se em ^{239}Pu . Uma pequena quantidade de ^{243}Am praticamente desaparece an

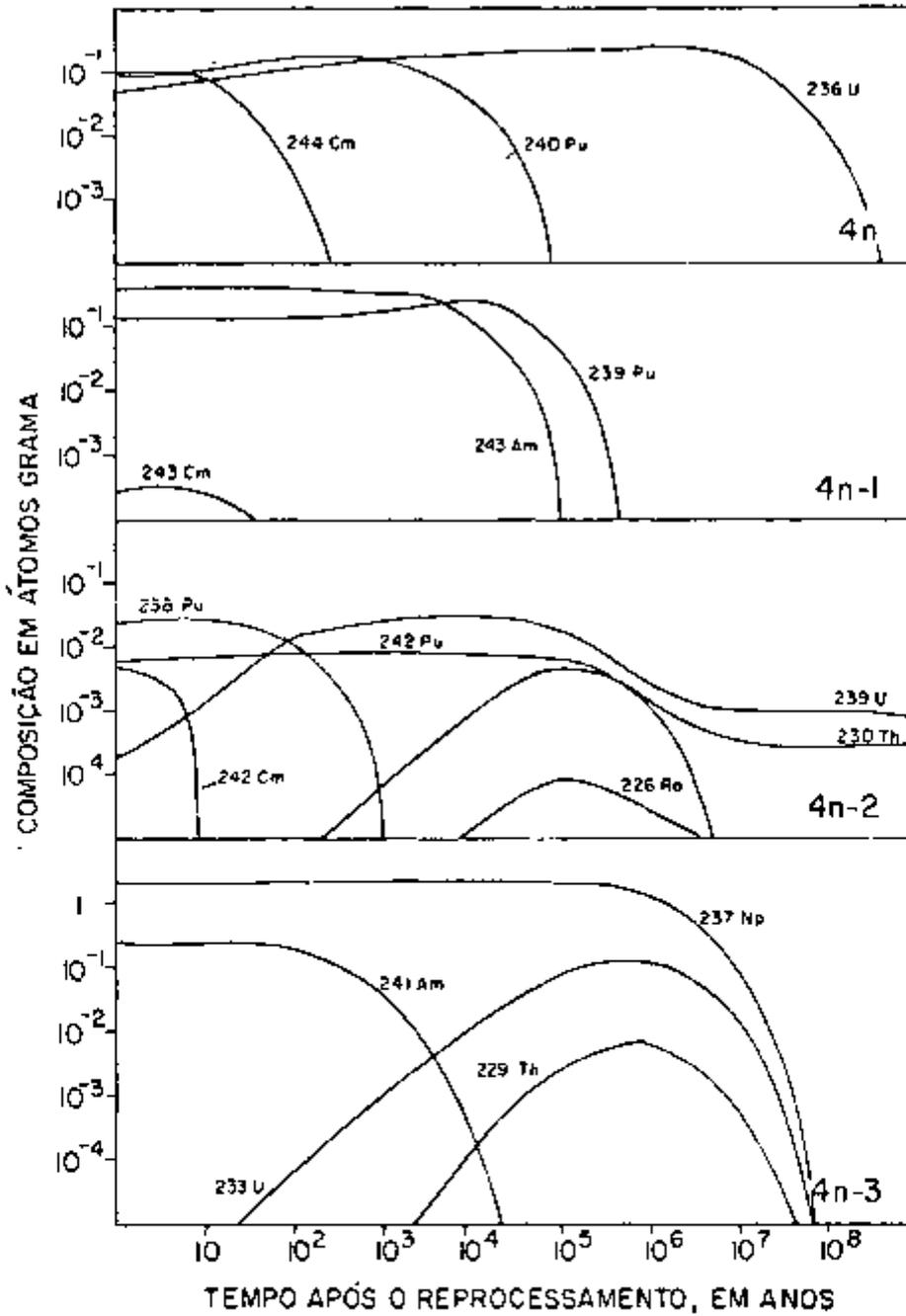
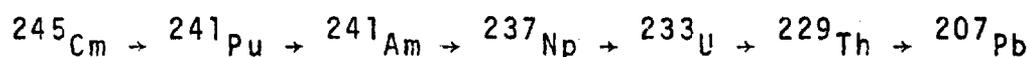


Figura 4.8 - Composição isotópica, em átomos-grama, do rejeito radioativo, em função do tempo após o reprocessamento.

tes de 10^3 anos.

Na cadeia $A = 4n - 2$ a maior parte do ^{238}Pu deriva do ^{242}Cm , que desaparece em menos de 1 ano. Com o decorrer do tempo o ^{242}Pu decai para ^{238}U , enquanto que o ^{242}Cm passa a ^{238}Pu que, por sua vez, se transforma diretamente em ^{234}U .

A cadeia $A = 4n - 3$ é bastante simples, como podemos verificar abaixo:



O comportamento dos produtos de fissão pode ser entendido mais facilmente com auxílio da tabela 4.12. Podemos verificar que, com exceção do ^{151}Sm , do $^{166\text{m}}\text{Ho}$ e do ^{74}Se , não existem outros isótopos com meias-vidas entre 30 e 10^5 anos. Entre os núclídeos de meias-vidas mais curtas, o ^{137}Cs e o ^{90}Sr destacam-se como os de maior importância, especialmente porque admitimos que o ^{85}Kr foi todo eliminado do rejeito. Somando-se os valores da coluna da direita, verificamos que 86% dos produtos de fissão ou possuem meias-vidas menores que 1 ano, ou maiores que 10^{10} anos e, conseqüentemente, não trazem problemas para armazenamento do rejeito radioativo. Assim sendo, focalizaremos nossa atenção nos 14% restantes.

Tabela 4.12 - Características dos produtos de fissão

NUCLÍDEO	MEIA-VIDA (ANOS)	Z
1 a 10 anos		
^{106}Ru	1,0	0,51
^{125}Sb	2,7	0,022
^{134}Ce	2,1	0,47
^{147}Pm	2,6	0,25
^{154}Eu	8,6	0,10
^{155}Eu	4,8	0,013
10 a 100 anos		
^{85}Kr	10,8	0,11
^{90}Sr	29	2,0
$^{113\text{m}}\text{Cd}$	14	0,0001
$^{121\text{m}}\text{Sn}$	25	10^{-7}
^{137}Cs	30	3,0
^{151}Sm	90	0,10
^{152}Eu	12	0,0001
^{154}Eu	16	0,10
100 a 4×10^4 anos		
^{79}Se	7×10^4	0,01
^{93}Zr	9×10^5	2,7
^{99}Tc	2×10^5	2,9
^{107}Pd	7×10^6	0,74
^{126}Sn	1×10^5	0,05
^{129}I	$1,6 \times 10^7$	0,61
^{135}Cs	2×10^6	0,81
$^{166\text{m}}\text{Ho}$	$1,2 \times 10^3$	10^{-6}

Radioatividade - figura 4.9, tabela A2

Nos primeiros 100 anos podemos verificar que a radioatividade total se deve principalmente aos produtos de fissão, em especial o ^{137}Cs .

Após esse período, os maiores contribuintes passam a ser os actinídeos.

Cumpramos observar, no entanto, que, nos primeiros 10 anos após o reprocessamento, uma parcela ponderável da radioatividade provém dos isótopos dos elementos estruturais, em especial do ^{60}Co e do ^{55}Fe . Porém, esta contribuição passa de 10^4Ci para 10 Ci antes dos 1000 anos.

Podemos verificar ainda que, nos primeiros 10 anos, a radioatividade total decresce muito pouco e que seu decréscimo de maior importância se dá entre 100 e 1000 anos.

Energia emitida pelos raios γ - figura 4.10, tabela A3

A verificação da figura 4.10 mostra que o ^{127}Cs , o ^{137}Ba e o ^{134}Cs são os nuclídeos dominantes nos primeiros 500 anos. Os isótopos dos materiais estruturais contribuem bastante para a energia total apenas nos primeiros 50 anos, decaindo, em seguida, a valores inexpressivos. Depois de 600 anos, após o reprocessamento, os isótopos mais importantes passam a ser o ^{126}Sb , o ^{243}Am e o ^{239}Np . Pode-se notar ainda que, entre 10^4 e 10^7 anos, ocorre um crescimento apreciável na energia emitida pelo isótopos de bismuto e que, nos dez primeiros anos

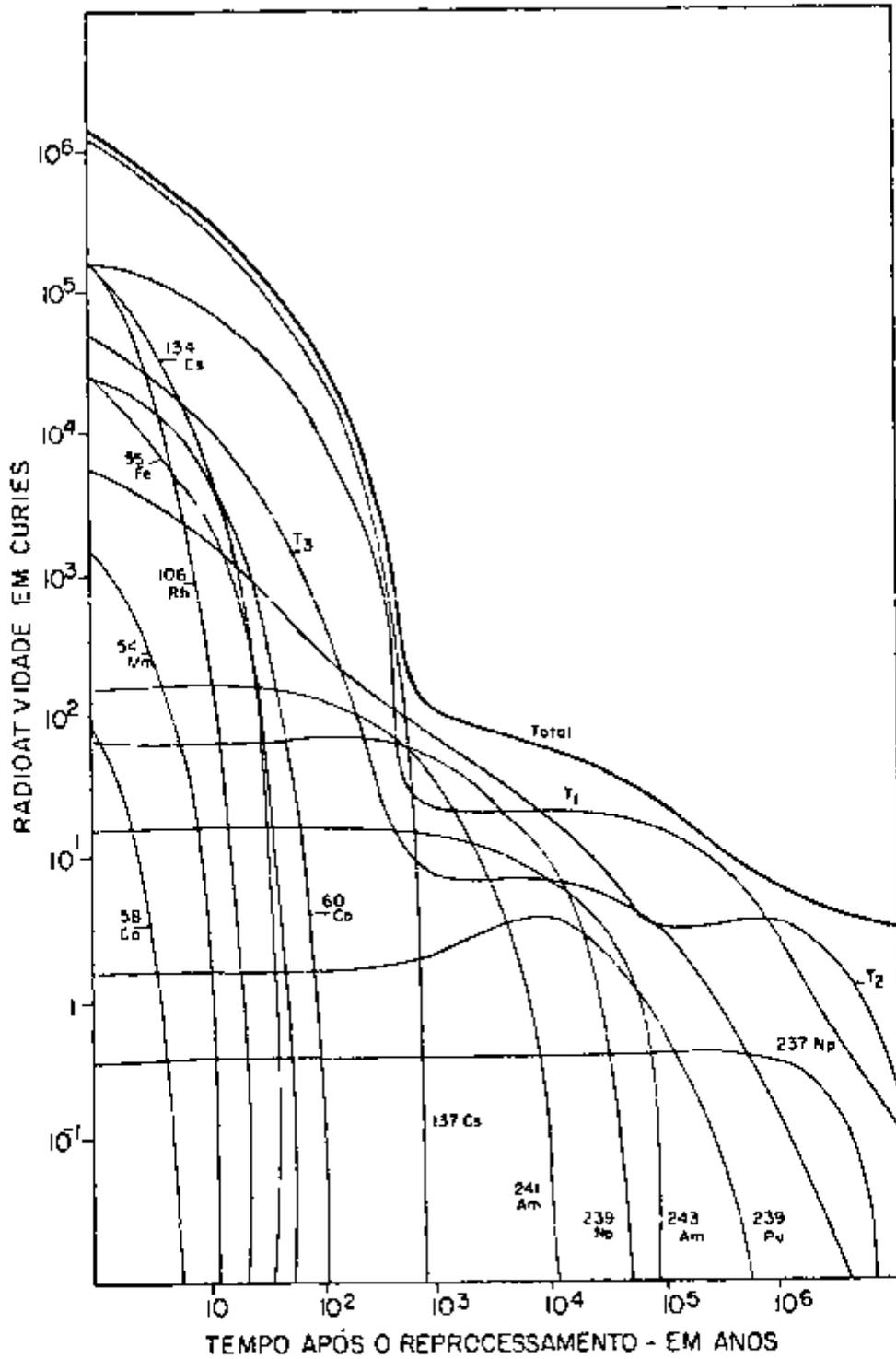


Figura 4.9 - Radioatividade, em curies, do rejeito, em função do tempo após o reprocessamento.

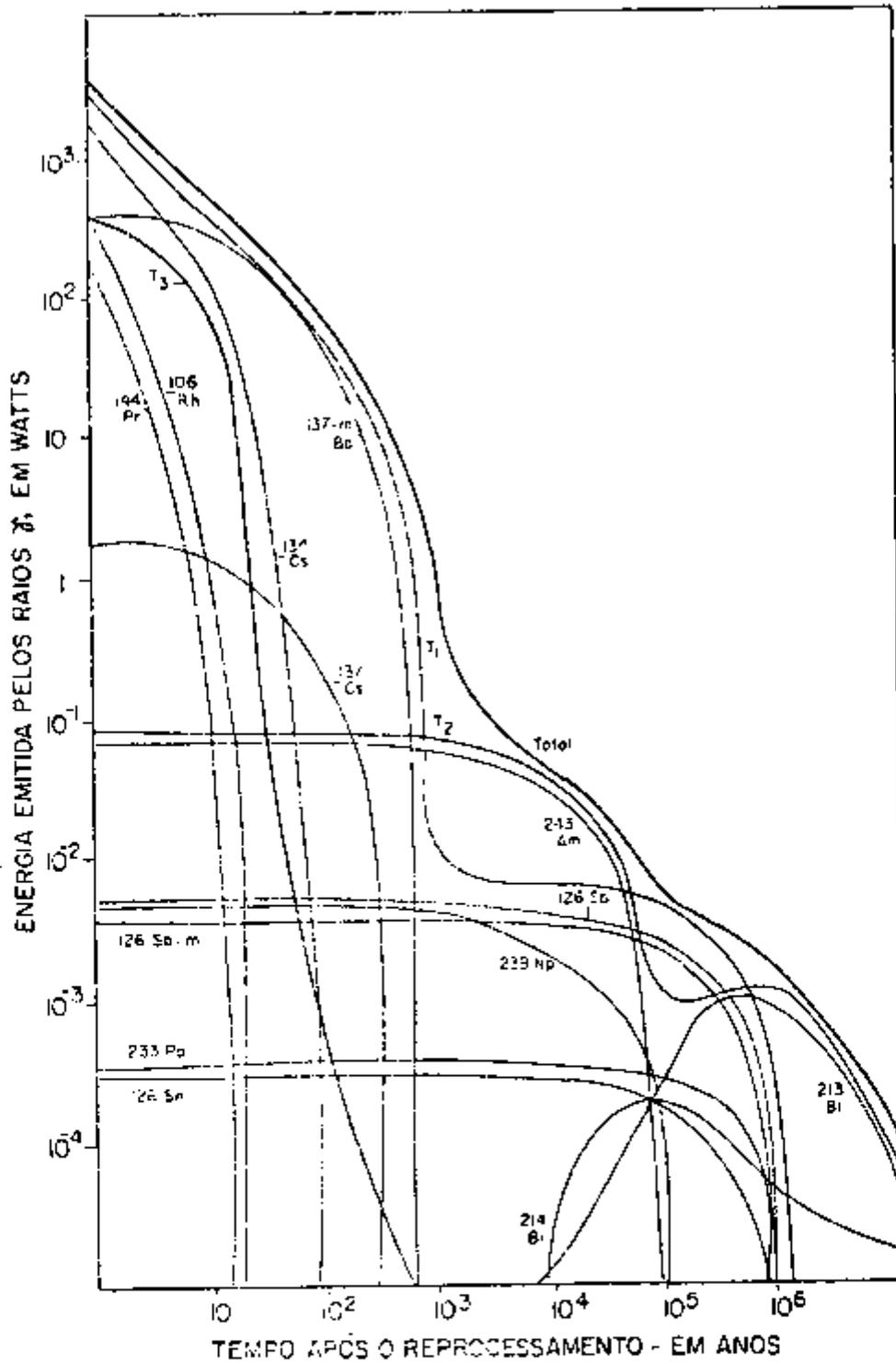


Figura 4.10 - Energia emitida pelos raios γ , em watts, (j/s), no rejeito radioativo, em função do tempo após o reprocessamento.

de vida do rejeito, ocorre um decrêscimo de uma ordem de magnitude na energia total emitida.

Taxa de emissão de nêutrons - figuras 4.11 e 4.12, tab.A4eA5
Dois diagramas foram construídos para descrever o comportamento dos nêutrons, sejam aqueles produzidos por fissão espontânea ou ainda aqueles emitidos em reações (α, n) , com o ^{244}Cm do combustível cerâmico. O cálculo do número de nêutrons emitidos por fissões espontâneas é simples e resulta do produto de três fatores: o número de decaimentos por segundo que um nuclídeo sofre, a fração deles que ocorre por fissão espontânea e o número de nêutrons emitidos por fissão. A obtenção da quantidade de nêutrons emitidos nas reações (α, n) foi feita empregando-se uma expressão aplicável aos casos em que os α emissores se encontram em uma matriz de UO_2 e induzem reações no oxigênio. A relação matemática usada foi a seguinte:

$$\frac{\text{n}^\circ \text{ nêutrons}}{\text{desintegrações } \alpha} = 1,0 \times 10^{-10} E_{\alpha}(\text{Mev})^{3,65}$$

Essa relação deve ser entendida como uma aproximação grosseira do número real de nêutrons produzidos nas reações (α, n) . No entanto, ela é válida para indicar-nos a ordem de magnitude da quantidade total de nêutrons produzidos por esse processo.

Com a ajuda das figuras 4.10 e 4.11, podemos observar que as fissões espontâneas dos isótopos de Cm são -

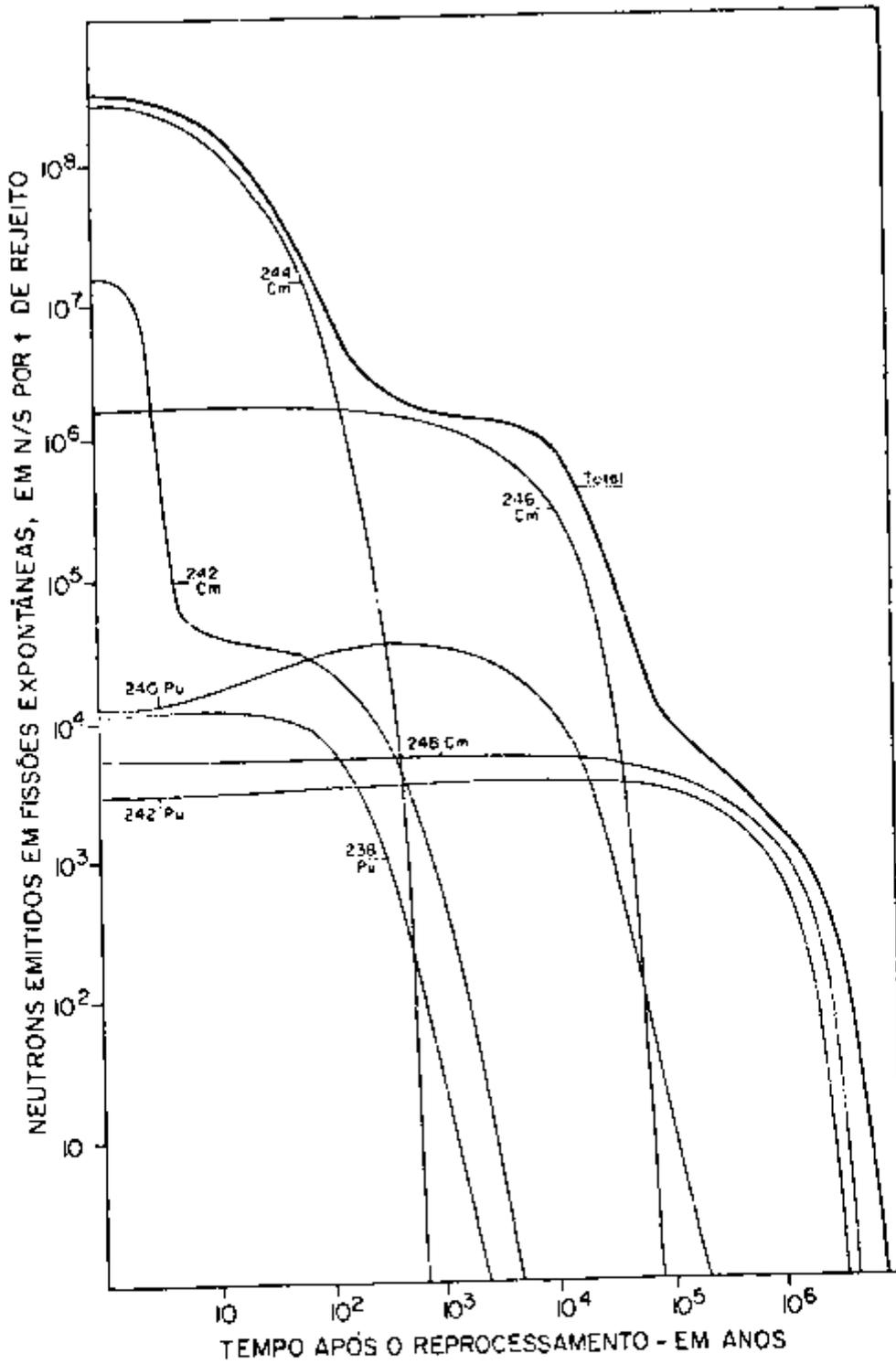


Figura 4.11 - Nêutrons produzidos em fissões espontâneas, no rejeito radioativo, em nêutrons/segundo, em função do tempo após o reprocessamento.

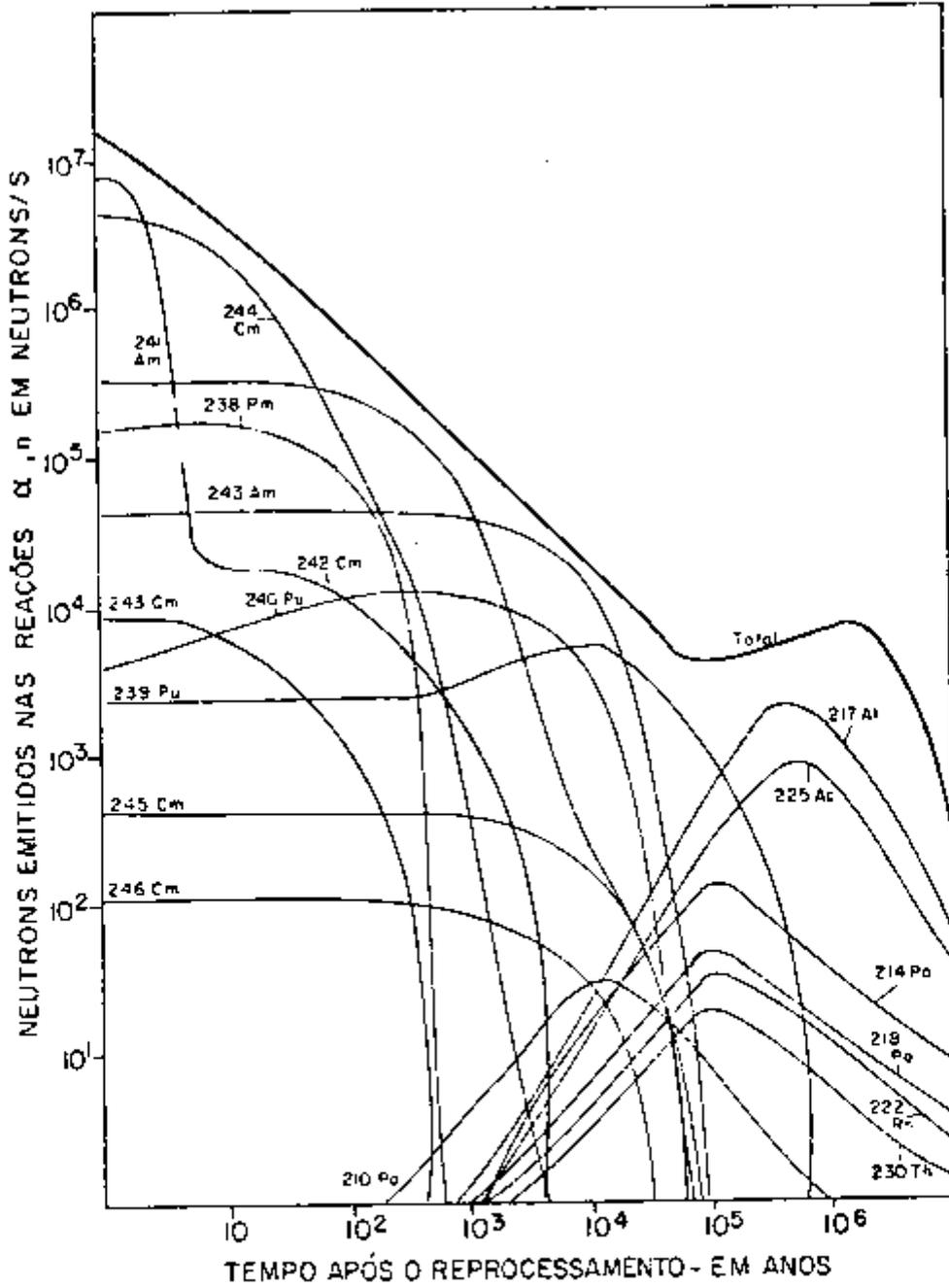


Figura 4.12 - Nêutrons produzidos em reações (α, n) , no rejeito radioativo, em nêutrons/segundo, em função do tempo após o reprocessamento.

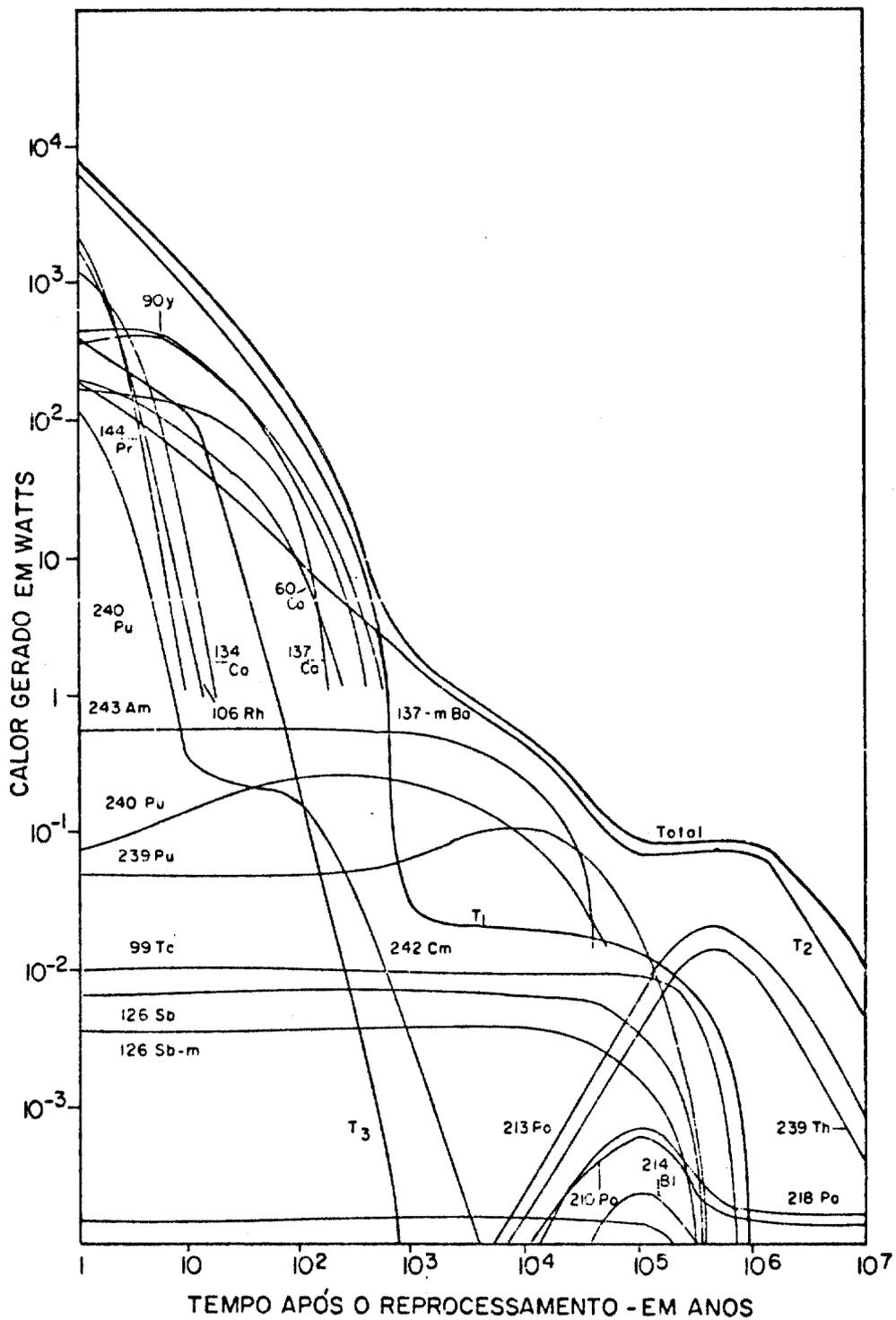
as fontes dominantes de nêutrons até 10^3 ou 10^4 anos depois do reprocessamento. Após esse período, os maiores contribuintes para a quantidade total de nêutrons produzidos passam a ser o ^{243}Am , o ^{239}Pu , o ^{242}Pu e o ^{240}Pu . Cumpre notar ainda que, entre 10^5 e 10^7 anos, o ^{217}At , o ^{235}At e alguns isótopos de polônio assumem importância ponderável no cômputo geral dos nêutrons produzidos.

Taxa de Geração de Calor Figura 4.13 - Tabela A6.

A análise da figura 4.13 mostra-nos que a quantidade total de calor gerado no rejeito decresce uma ordem de grandeza nos primeiros dez anos após o reprocessamento.

Pode-se verificar também que, aproximadamente até 10^3 anos, os maiores contribuintes para o total de calor produzido são os produtos de fissão. Após esse período, as maiores contribuições passam a ser fornecidas pelos actinídeos. Os elementos formadores dos materiais estruturais produzem calor, em quantidades relevantes, apenas até 100 anos depois do reprocessamento.

Observa-se ainda que, depois de 10^4 anos, os isótopos do polônio, do bismuto e do tório passam a ser responsáveis por uma parcela ponderável da quantidade total de calor produzida.



Quantidade total de calor produzido, em watt,
em função do tempo após o reprocessamento.

CAPÍTULO V

O VOLUME DO REJEITO RADIOATIVO

Generalidades

Entre as informações necessãrias à elaboração de programas de administração de resíduos radioativos destaca-se o volume. Apresentamos, neste capítulo, uma previsão da quantidade de detritos radioativos que será produzida até o ano 2010, com a instalação do ciclo do combustível nuclear no Brasil.

Para a realização dos cálculos foi elaborado um pequeno programa, em linguagem BASIC, por nós denominado de WASTE. Os resultados obtidos podem ser de grande valia no dimensionamento do sistema de transporte, das instalações de armazenamento provisório ou definitivo dos detritos radioativos e ainda na previsão dos recursos financeiros necessários à administração do resíduo nuclear.

Cálculos dessa natureza estão sujeitos a um grande número de incertezas, principalmente porque quaisquer altera-

ções, que se processem na estratégia de geração de energia, refletem-se diretamente e de maneira imediata na produção dos resíduos radioativos. Outros fatores que podem influir sobre a maneira no volume do rejeito são: a tecnologia empregada no tratamento e a ocorrência de acidentes nas instalações do ciclo do combustível. Para minimizar as variações no volume decorrentes do emprego de uma ou outra tecnologia, tomamos, como base para os cálculos, apenas valores que representam médias das quantidades de resíduos radioativos gerados em instalações nucleares já em operação. Como os volumes de rejeito gerados quando ocorrem acidentes é imprevisível, cria-se uma margem permanente de incerteza nos resultados.

Devido a esses fatores, que podem acarretar incorreções, devemos entender os resultados obtidos sempre como sendo os valores mínimos de rejeito para um determinado ano.

A previsão apresentada pressupõe que até o início do próximo século sejam usados apenas reatores PWR na produção de energia nuclear, embora, provavelmente em torno do ano 2000 novos tipos de reatores já estejam em testes na rede brasileira de eletricidade. Contudo, dada a predominância absoluta de usinas PWR, espera-se que, até o final da próxima década, qualquer outro tipo de reator, que porventura venha a ser introduzido, não altere, de maneira significativa, o panorama da geração de resíduos.

5.1 HIPÓTESES BÁSICAS

No ponto em que se encontra a instalação do ciclo do combustível no Brasil, ainda não se conhecem todas as características técnicas das instalações nucleares que serão construídas, nem os pormenores dos sistemas de tratamento do rejeito radioativo que serão usados. Outro fator bastante sujeito a variações, durante essa fase inicial de implantação do Programa Nuclear, é o cronograma de entrada em operação das diversas usinas que serão ou que já estão sendo construídas. Evidentemente, tais variações têm um efeito imediato na quantidade de resíduos a ser gerada nos próximos anos. Como é bastante difícil, neste começo do desenvolvimento nuclear, conhecer-se com exatidão as datas em que será iniciada a operação de cada unidade componente do ciclo, admitimos algumas datas-base para a elaboração dos cálculos. Procurando ser conservadores nessa tarefa, escolhemos as seguintes datas:

1985 - Início do funcionamento das instalações de conversão - do concentrado de U em hexafluoreto de urânio, e das usinas de enriquecimento e de fabricação dos elementos combustíveis.

1995 - Início da operação da usina de reprocessamento.

Quanto à primeira data, acreditamos não ter fugido muito à realidade, pois, de acordo com Syllus /89/ (set, 1978), a unidade piloto de enriquecimento, com uma capacidade de 200t de unidades de trabalho separativo, já se encontra totalmente

projetada e dentro em breve será iniciada sua construção. O mesmo ocorre com a usina de fabricação dos elementos combustíveis, cuja capacidade será cerca de 100 t/ano. Entendemos - que os sete anos que decorrerão até 1985 sejam um tempo suficiente para passar-se da unidade piloto à unidade comercial.

Quanto ao reprocessamento, a informação disponível (Sillus, op.cit.) é a de que o projeto da usina comercial será elaborado no Brasil e que a unidade piloto terá uma capacidade de 3,5t/ano de material pesado/19/. Acredita-se que dentro de 12 anos seja possível efetuar-se o reprocessamento no país.

Devemos observar ainda que, com a adoção dessas - datas, se admite implicitamente que o ciclo do combustível se rã operado de duas maneiras diferentes. A primeira, até o ano de 1995, será de acordo com a alternativa I, sem o reprocessamento, e a segunda, a partir de 1995, segundo a alternativa III, com reciclagem do urânio e do plutônio.

Nos cálculos efetuados tomamos por base a curva e laborada pela Nuclebrás, que prevê a capacidade nuclear a ser instalada até o ano 2000. A figura 5.1 mostra a referida curva /89/.

Após o ano 2000, supusemos um crescimento de 8% na capacidade nuclear instalada, embora, como mostra a figura 5.1, esta taxa, entre os anos 1980 e 2000, seja superior a - 18% (18,93% ao ano, exatamente). Isto se deve ao fato de que,

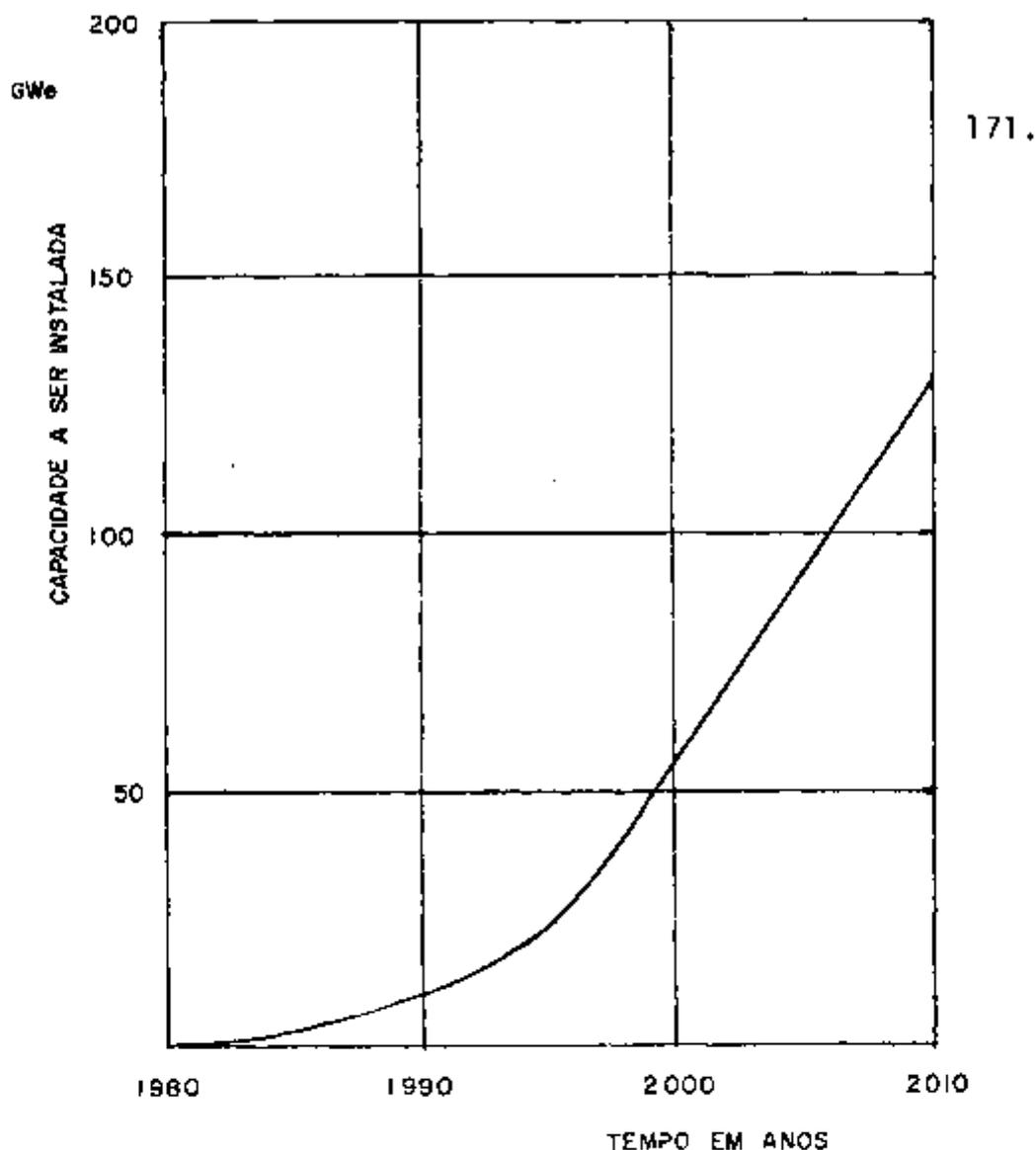


Figura 5.1 - Previsão da capacidade nuclear a ser instalada no Brasil até o ano 2010. Após o ano 2000, consideramos um crescimento de 8% no total da energia nucleoeleétrica gerada.

com o início da exaustão dos recursos hídricos brasileiros para a produção de eletricidade, em torno do ano 2000 a componente nuclear começará a predominar significativamente no total da energia elétrica gerada no país. Assim sendo, supondo-se um crescimento econômico anual de 6%, a geração de eletricidade deverá crescer pelo menos 8% ao ano. A escolha - dessa taxa visa ter, tão somente, um efeito ilustrativo, uma

vez que, para efeito prático, a parte mais importante da projeção refere-se aos próximos 20 anos.

Estabelecidas essas premissas básicas e utilizando-se algumas informações recolhidas na literatura, efetuamos os cálculos dos volumes, conforme é descrito na seção - que se segue.

Tabela 5.1 Características da usina nuclear

Tipo do reator - PWR - "pressurized water reactor"

Potência - 1300 MWe

"Burn-up" - 33000 MWD/T

Enriquecimento - 5%

Fator de carga - 80%

5.2 OBTENÇÃO DOS RESULTADOS

O volume do rejeito radioativo pode ser obtido facilmente quando se dispõe das características dos sistemas de tratamento de detritos que serão usados no ciclo e, consequentemente, das quantidades anuais de resíduos produzidas, por ano, em cada instalação. No entanto, como, nesta fase de implantação do Programa Nuclear no Brasil, informações dessa natureza são ainda escassas, procuramos obter o volume do rejeito -

de uma maneira indireta, fundamentando-nos quase que exclusivamente na previsão da capacidade nuclear a ser instalada.

A seguir, relatamos como foi obtida a relação entre o volume dos resíduos e a capacidade instalada. Para operarmos, durante um ano, um reator de água pressurizada (PWR) com as características apresentadas na tabela 5.1, precisamos de quantidades bem definidas de minério, de concentrado de urânio, de hexafluoreto de urânio, de urânio enriquecido e de elementos combustíveis; na obtenção de cada um desses materiais são gerados resíduos radioativos, também em quantidades definidas; por outro lado, conhecemos quanto de material queimado é retirado anualmente do reator e que será simplesmente considerado como rejeito ou, quando reprocessado, irá produzir uma quantidade determinada de resíduos. Chamamos de K_i o volume, em metros cúbicos, de detritos produzidos na unidade "i" do ciclo do combustível, decorrente da produção de uma quantidade de material necessária para a fabricação do combustível suficiente para a recarga de um reator, ou o volume de detritos produzidos no reprocessamento do material retirado anualmente da usina nuclear; multiplicando-se K_i pelo número de anos que a central irá operar, obteremos o volume de rejeito produzido na fabricação ou no reprocessamento de suas recargas anuais, em cada unidade do ciclo do combustível. Os valores de K_i encontram-se na literatura especializada /40/.

Esse procedimento é repetido para todas as usi-

nas que estiverem operando no período de tempo em que desejamos calcular o volume.

O número de centrais foi obtido dividindo-se a curva, que mostra a capacidade nuclear a ser instalada, em intervalos discretos de 1300 MWe, como mostra a figura 5.2.

O volume total de resíduos será o somatório das quantidades individuais de rejeitos que serão produzidos em decorrência da operação de cada central nuclear.

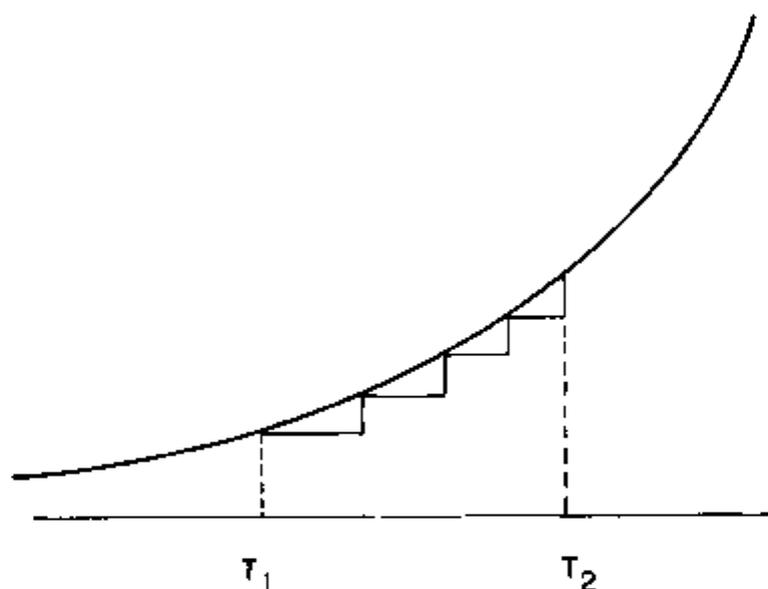


Figura 5.2 - Divisão da curva, que mostra a capacidade nuclear a ser instalada, em intervalos de 1300 MWe.

Embora esse procedimento seja bastante simples, não deixa de ser trabalhoso. Assim sendo, foi elaborado um pequeno programa denominado "WASTE," ao qual fornecemos o número de centrais em operação em cada ano e o valor de K_i correspondente à unidade do ci-

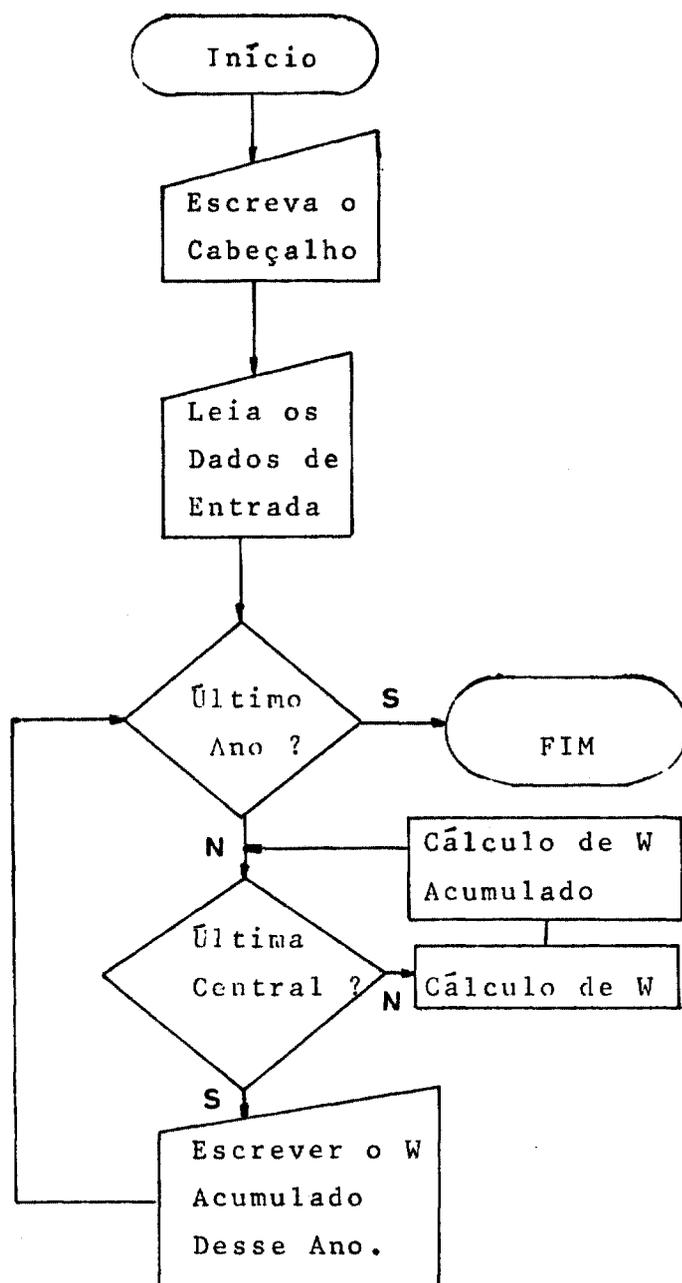


Diagrama de blocos do programa "WASTE".

do do combustível na qual desejamos saber o volume total de resíduos gerados. O programa "WASTE" executa rapidamente a sequência de operações descritas acima e imprime os resultados. O diagrama de blocos do programa WASTE é apresentado na figura 5.3.

Os valores de K_i , ou seja, do volume de rejeito gerado na unidade "i" do ciclo do combustível, na produção ou no reprocessamento do material correspondente a uma recarga anual de uma usina nuclear, encontrados na literatura, referem-se, infelizmente, a reatores de 1000 MWe, salvo uma única exceção. Os reatores que serão usados no país, como se sabe, serão de 1300 MWe e, assim, espera-se que as quantidades de material utilizado na fabricação ou no processamento de uma recarga anual sejam maiores, o mesmo ocorrendo com as quantidades de resíduos. Admitimos, para efeito dos cálculos, que essas quantidades de material, envolvidas na fabricação e no reprocessamento, sejam diretamente proporcionais à potência e, conseqüentemente, 30% maiores para reatores de 1300 MWe, em relação às usinas de 1000 MWe. A mesma aproximação foi feita em relação aos valores de K_i . Essa relação direta é válida quando as diferenças de potência são relativamente pequenas, como no nosso caso. A tabela 5.2 apresenta os valores de K_i para 1000 MWe, que se encontram na literatura, e os valores que foram usados para 1300 MWe.

O Único dado, encontrado na literatura, direta-

Tabela 3.2 - Valores de Ki

UNIDADE DO CICLO DO COMBUSTÍVEL	TIPO DO REJEITO	Ki- Volume anual do rejeito (m ³)	
		1000 MWe	1300 MWe
Usina de Conversão			
Processo "Dry"	rejeito de baixa atividade	92	120
Processo "Wet"	rejeito de baixa atividade	41	53
Usina de Enriquecimento	rejeito de baixa atividade	0,24	0,31
Usina de Fabricação dos Elementos Combustíveis	rejeito de baixa atividade	29	38
Usina Nuclear	rejeito de baixa atividade	439	571
	combustíveis irradiados	35	46
Usina de Reprocessamento	rejeito de baixa atividade	7	9
	rejeito de alta atividade*	8	10
	rejeito contaminado com ele- mentos transurânicos	44	57
	rejeito contaminado com plu- tônio	6	8

* dados americanos.

mente aplicável a reatores de 1300 MWe é o volume do rejeito radioativo sólido produzido no reprocessamento de uma recarga anual dessa usina. No entanto, a referida informação, de acordo com seus autores, não se trata de um valor obtido na prática, junto da experiência diária, mas, sim, de uma extrapolação de valores obtidos em escala de laboratório em escala piloto. Embora não se queira questionar a validade de tais extrapolações, devemos ressaltar que o volume apresentado é 60% menor que o volume americano correspondente ao processamento do combustível retirado de um reator de 1000 MWe.

Antes da apresentação dos resultados, vamos fazer ainda algumas considerações sobre os resíduos produzidos em cada unidade do ciclo do combustível.

Mineração e Beneficiamento do minério - Os resíduos produzidos nessas duas unidades possuem radioatividade muito baixa e, na atualidade, não existem problemas tecnológicos relevantes quanto ao tratamento desses detritos. Assim sendo, não foram calculados os volumes dos materiais imprestáveis produzidos nessas duas unidades.

Conversão em UF_6 - Como já foi salientado no capítulo II, as operações de conversão a UF_6 podem ser feitas por dois processos, os quais são denominados de "Wet Solvent Extration Method" e "Dry Hidrofluor Process". Os volumes dos resíduos produzidos em cada um dos dois casos são diferentes e, por isso, apresentados, separadamente, em dois diagramas.

Como foi exposto no capítulo II, as operações de enriquecimento, no país, serão feitas pelo processo da jato-centrifugação. Atualmente, não existe, na literatura, nenhum trabalho sobre os resíduos produzidos por esse método de enriquecimento. Isto se deve, principalmente, ao fato de não haver ainda qualquer usina de porte comercial utilizando esse processo. Torna-se, portanto, necessário fazerem-se algumas considerações acerca destes detritos.

Como primeira aproximação, tomamos os rejeitos da jato-centrifugação como sendo iguais aos de uma usina de enriquecimento por difusão gasosa. A justificativa da escolha decorre, unicamente, da semelhança entre os dois tipos de usinas, no tocante à quantidade de tubulações conectando as unidades separadoras. Porém, a existência de um menor número delas nas usinas de jato-centrifugação nos leva a crer que, provavelmente, o volume dos resíduos produzidos, neste caso, sejam menores.

As usinas de enriquecimento por ultra-centrifugação são as que apresentam maiores problemas de manutenção, devido às centenas de milhares de unidades de separação, todas dotadas de compressores e válvulas, e ainda conectadas por milhares de metros de tubulações. Estima-se que sejam produzidas 56 vezes mais resíduos nestas usinas do que nas de difusão gasosa de mesmo porte. Assim sendo, espera-se que haja uma semelhança bem maior, sob o aspecto da geração

de detritos, entre as de jato-centrifugação e as de difusão gasosa.

Obviamente, a quantidade de urânio sub-enriquecido depende apenas da concentração do isótopo ^{235}U no produto final, não importante o processo de enriquecimento empregado.

Os detritos produzidos nas usinas de fabricação dos elementos combustíveis, nas centrais nucleares e nas usinas de reprocessamento, foram descritos pormenorizadamente no capítulo II. A tabela 5.3 apresenta, de maneira resumida, uma descrição de todos os resíduos gerados no ciclo do combustível.

5.3 RESULTADOS OBTIDOS

Apresentamos, nesta seção, 11 gráficos correspondentes à previsão do volume do rejeito radioativo que será produzido no Brasil até o ano 2010, com base nas hipóteses e nas premissas anteriormente expostas.

No Apêndice B apresentam-se as tabelas correspondentes às curvas traçadas.

As figuras e as tabelas correspondentes aos volumes dos resíduos produzidos em cada unidade do ciclo do combustível foram numeradas como seguem:

Figura 5.4 - Volume do rejeito produzido na usina de fabricação do UF_6 pelo "Wet Solvent Extraction Method"

Tabela B1

Tabela 5.3 - Os resíduos radioativos gerados no ciclo do combustível.

UNIDADE DO CICLO DO COMBUSTÍVEL	REJEITO
USINA DE CONVERSÃO A UF ₆ PROCESSO "DRY"	REJEITO DE BAIXA ATIVIDADE PRODUTOS QUÍMICOS CONTAMINADOS Caf ₂ CONTAMINADO
PROCESSO "WET"	REJEITO DE BAIXA ATIVIDADE Caf ₂ CONTAMINADO MATERIAIS DEPOSITADOS NOS DIVERSOS ESTÁGIOS DO PROCESSO
USINA DE ENRIQUECIMENTO	REJEITO DE BAIXA ATIVIDADE PROVENIENTE DA LIMPEZA DOS EQUIPAMENTOS PEÇAS QUEBRADAS
USINA DE FABRICAÇÃO DOS ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS	REJEITO DE BAIXA ATIVIDADE Caf ₂ CONTAMINADO
USINA NUCLEAR	REJEITO DE BAIXA ATIVIDADE RESÍDUOS DE TROCA IÔNICA, FILTROS, DEBRITOS DEPOSITADOS NOS FILTROS E NO EVAPORADOR
ESTOCAGEM DOS ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS IRRADIADOS	REJEITO DE ALTA ATIVIDADE COMBUSTÍVEIS IRRADIADOS
	REJEITO DE BAIXA ATIVIDADE RESÍDUOS PROVENIENTES DO SISTEMA DE LIMPEZA DA ÁGUA DO TANQUE DE ARMAZENAMENTO DE COMBUSTÍVEL
	REJEITO DE BAIXA ATIVIDADE LAVAS, PRODUTOS QUÍMICOS CONTAMINADOS E AVENTAIS
	REJEITO DE ALTA ATIVIDADE REJEITO LÍQUIDO RESULTANTE DO PRIMEIRO CICLO DE EXTRAÇÃO POR SOLVENTE, ACRESCIDO DO REJEITO CONCENTRADO DOS DEBANS CICLOS
USINA DE REPROCESSAMENTO	REJEITO CONTAMINADO COM ELEMENTOS TRANSURÂNICOS MATERIAIS DE LABORATÓRIO CONTAMINADOS, PRODUTOS QUÍMICOS DE LIMPEZA, RESÍDUOS DO PROCESSO DE CONVERSÃO DO PURO UF ₆ A PURO UO ₂ , RESÍDUOS DO PROCESSO DE PREPARAÇÃO DO UF ₆ , EQUIPAMENTOS QUEBRADOS
	REJEITO CONTAMINADO COM PLUTÔNIO PRODUTOS QUÍMICOS CONTAMINADOS E PLUTÔNIO

Figura 5.5 - Volume do rejeito produzido na usina de fabricação
Tabela B2 UF_6 pelo "Dry Hidrofluor Process".

Figura 5.6 - Volume do rejeito produzido na usina de enriqueci
Tabela B3 cimento.

Figura 5.7 - Volume do rejeito produzido na usina de fabricação
Tabela B4 dos elementos combustíveis.

Figura 5.8 - Volume dos combustíveis irradiados.
Tabela B5

Figura 5.9 - Volume do rejeito produzido na usina nuclear.
Tabela B6.

Figura 5.10 - Volume do rejeito de baixa atividade, produzido
Tabela B7 na usina de reprocessamento.

Figura 5.11 - Volume do rejeito de alta atividade, produzido
Tabela B8-B9 na usina de reprocessamento (dados americanos e alemães).

Figura 5.12 - Volume do rejeito contaminado com elementos -
Tabela B10 transurânicos, produzido na usina de reprocessamento.

Figura 5.13 - Volume do rejeito contaminado com plutônio, produ
Tabela B11 zido no reprocessamento.

Devemos observar, ainda, que os volumes dos resíduos de alta atividade, gerados no reprocessamento, corres-

pondem ao volume do material solidificado por vitrificação. A curva pontilhada representa o volume obtido, utilizando-se os dados alemães.

Todos os demais resultados correspondem ao material não tratado. Optamos pela apresentação dos volumes dos resíduos antes do tratamento, por desconhecermos quais técnicas de redução de volume serão empregadas no país.

Por último, deve-se salientar que o volume de rejeito contaminado com plutônio é bastante aumentado, devido aos espaçadores e venenos neutrônicos que devem ser utilizados para evitarem-se problemas de criticalidade.

Os comentários e conclusões acerca dos volumes obtidos são apresentados no capítulo que se segue.

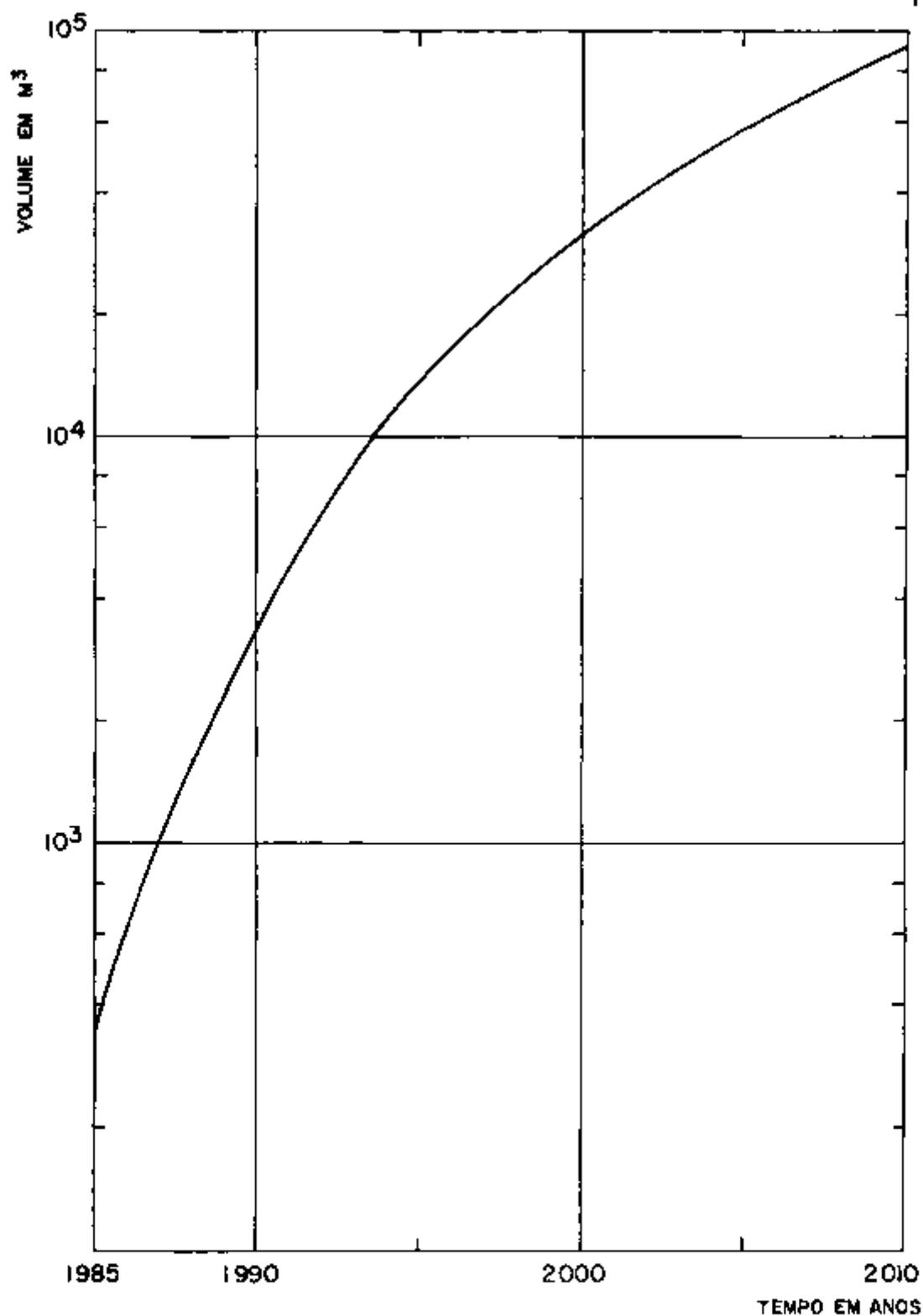


Figura 5.4 - Volume do rejeito produzido na usina de fabricação do CF_6 , pelo "Wet Solvent Extraction Method".

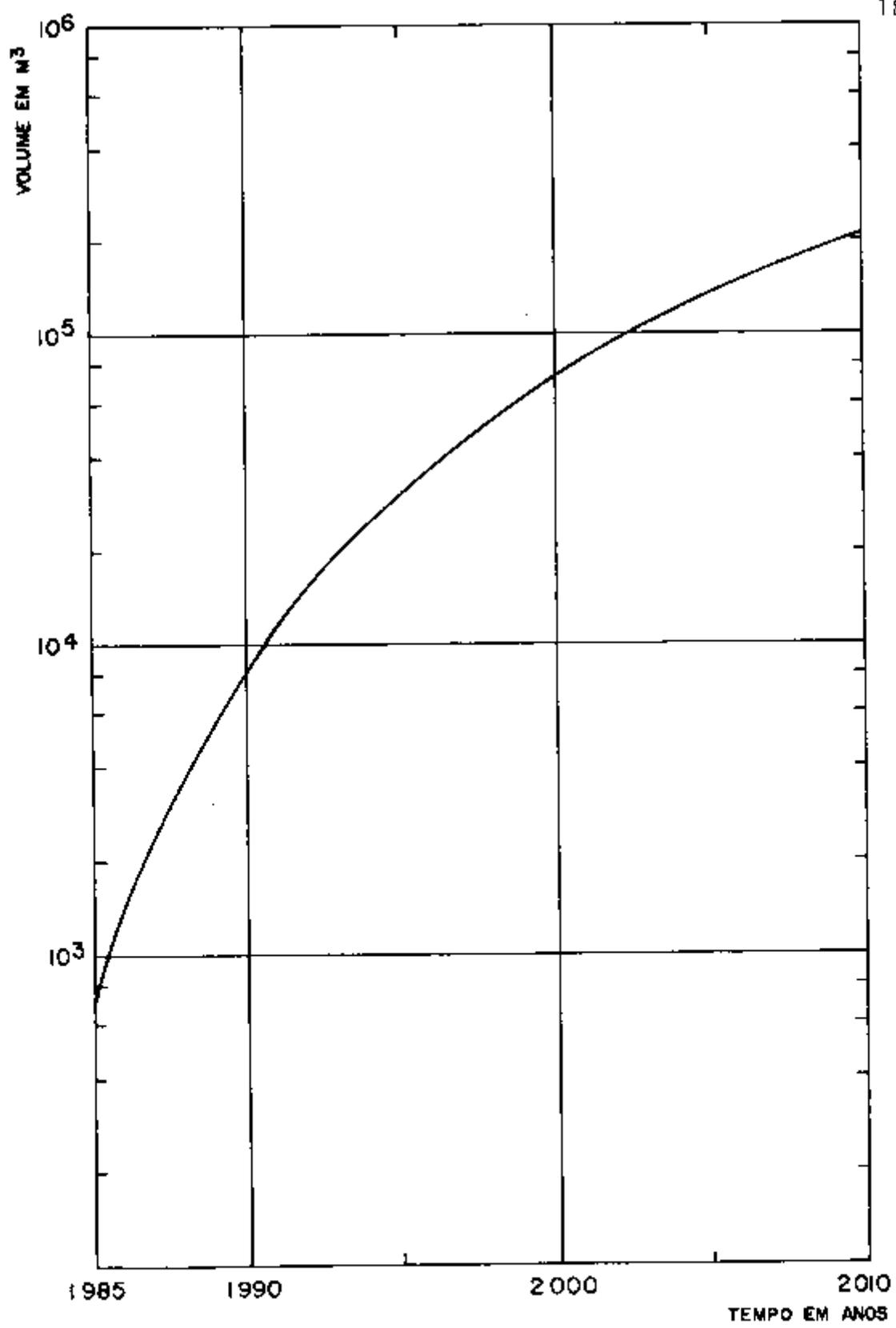


Figura 5.5 - Volume do rejeito produzido na usina de fabricação do UF₆ pelo "Dry Hidrofluor Process".

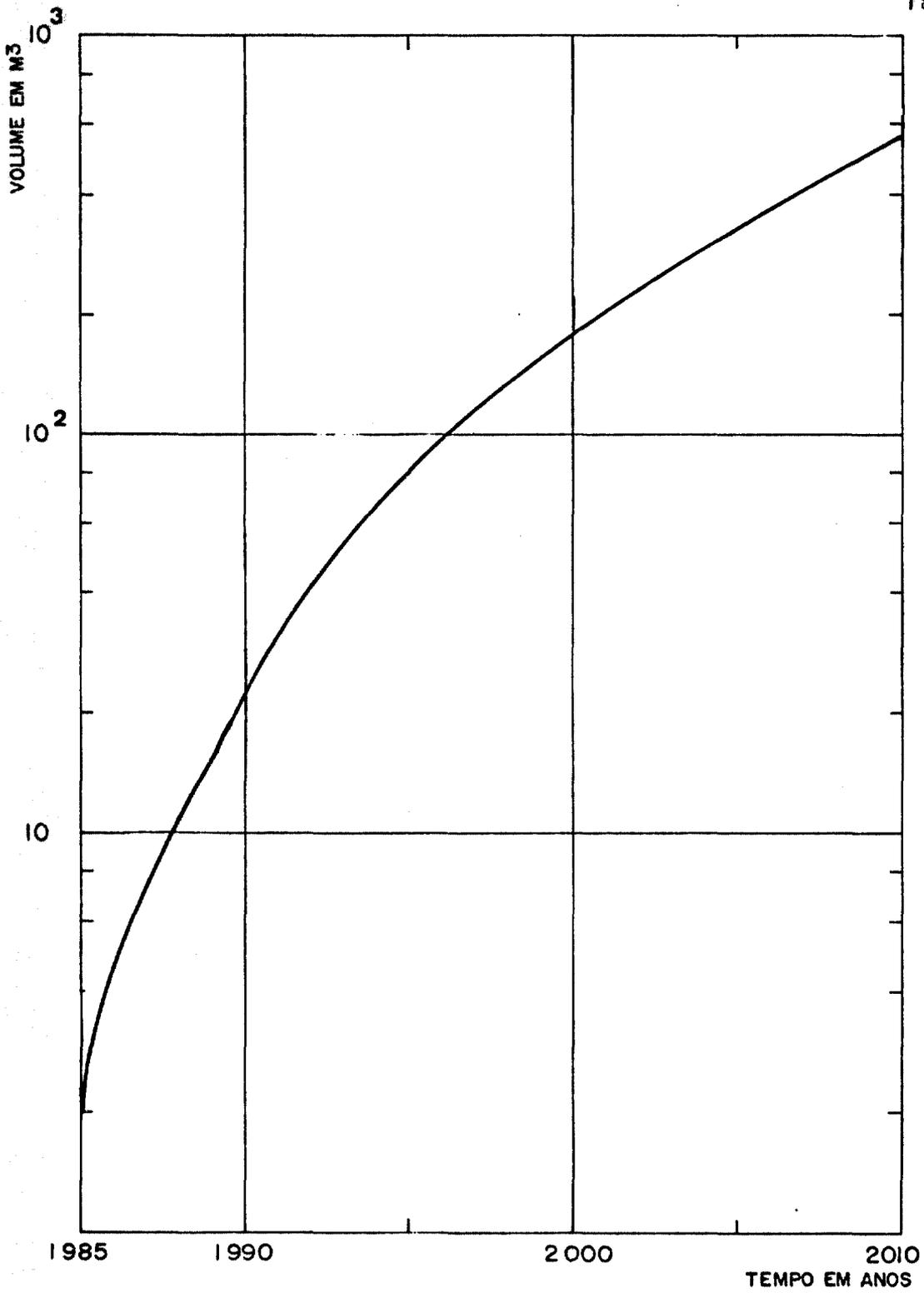


Figura 5.6 - Volume do rejeito produzido na usina de enriquecimento (Difusão Gasosa).

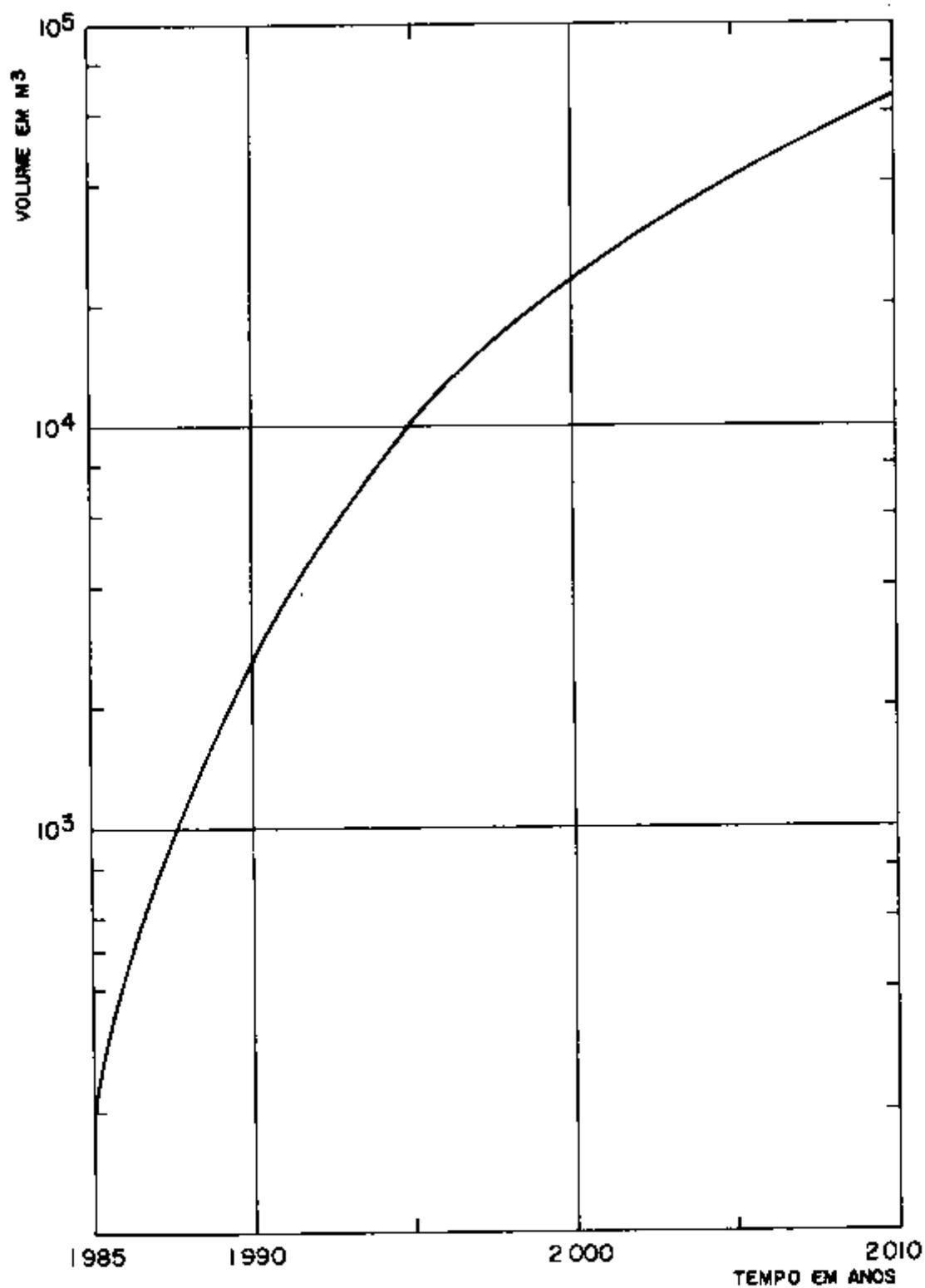


Figura 5.7 - Volume do rejeito produzido na usina de fabricação dos elementos combustíveis.

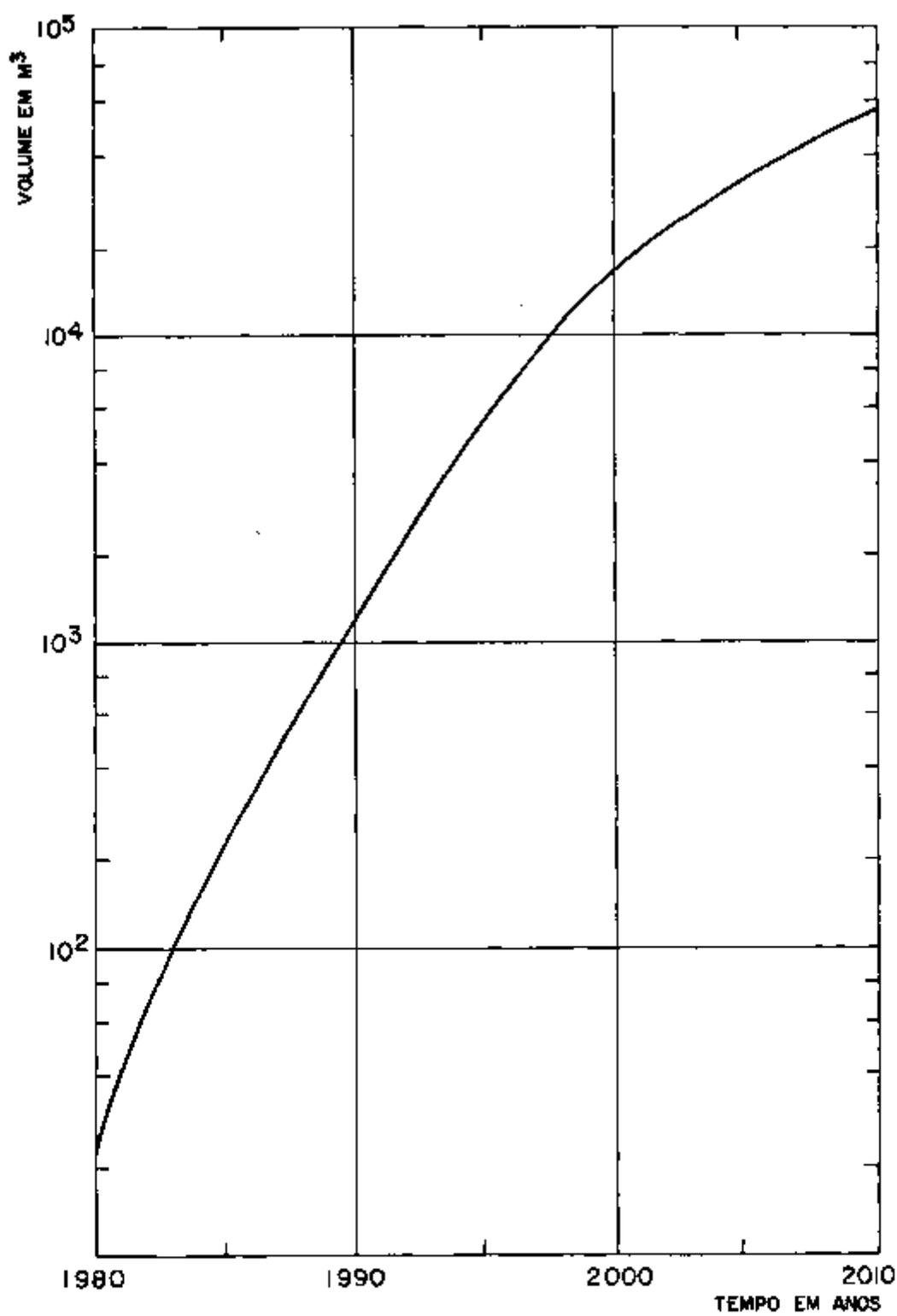


Figura 5.8 - Volume dos combustíveis irradiados.

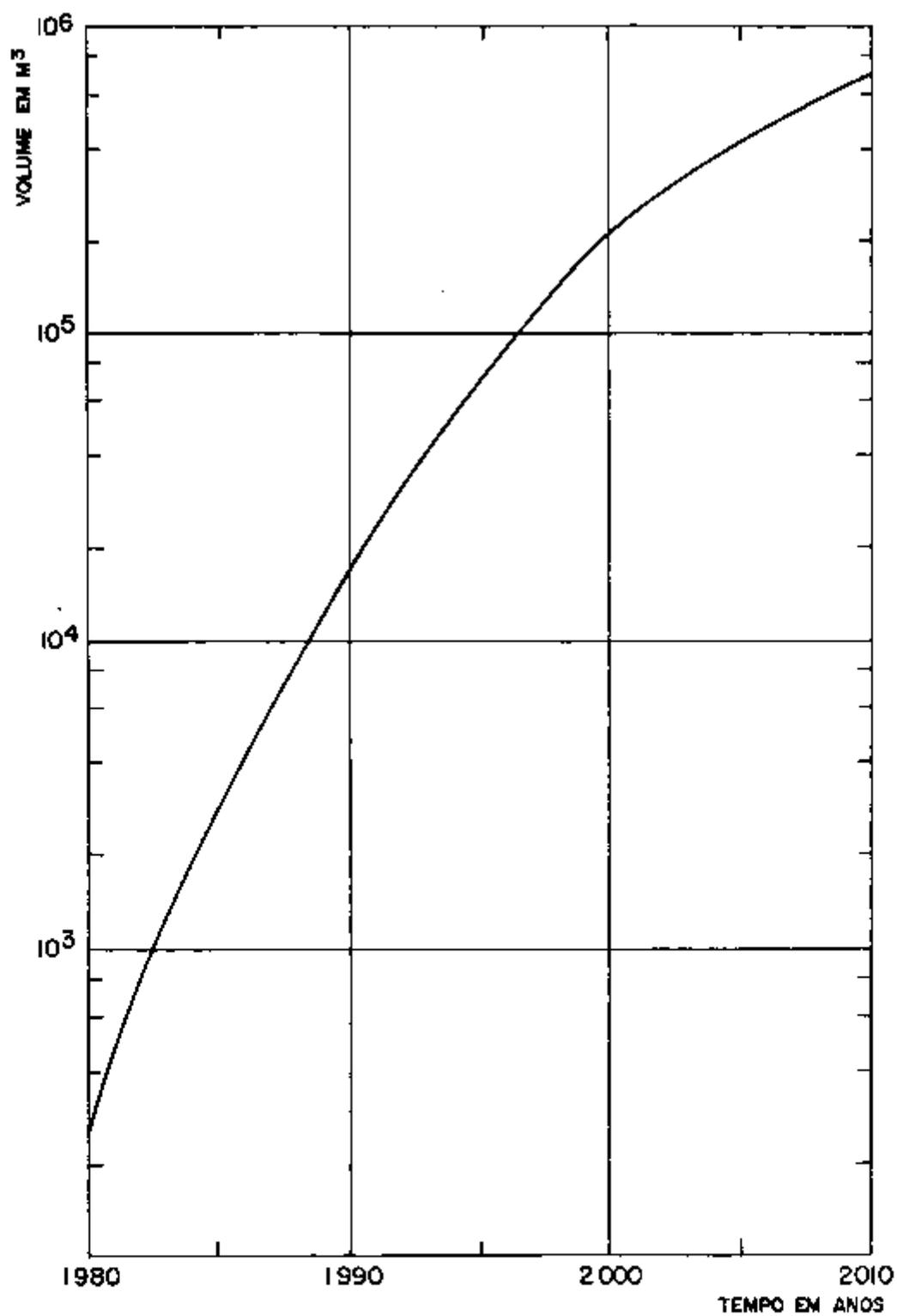


Figura 5.9 - Volume do rejeito produzido na usina nuclear.

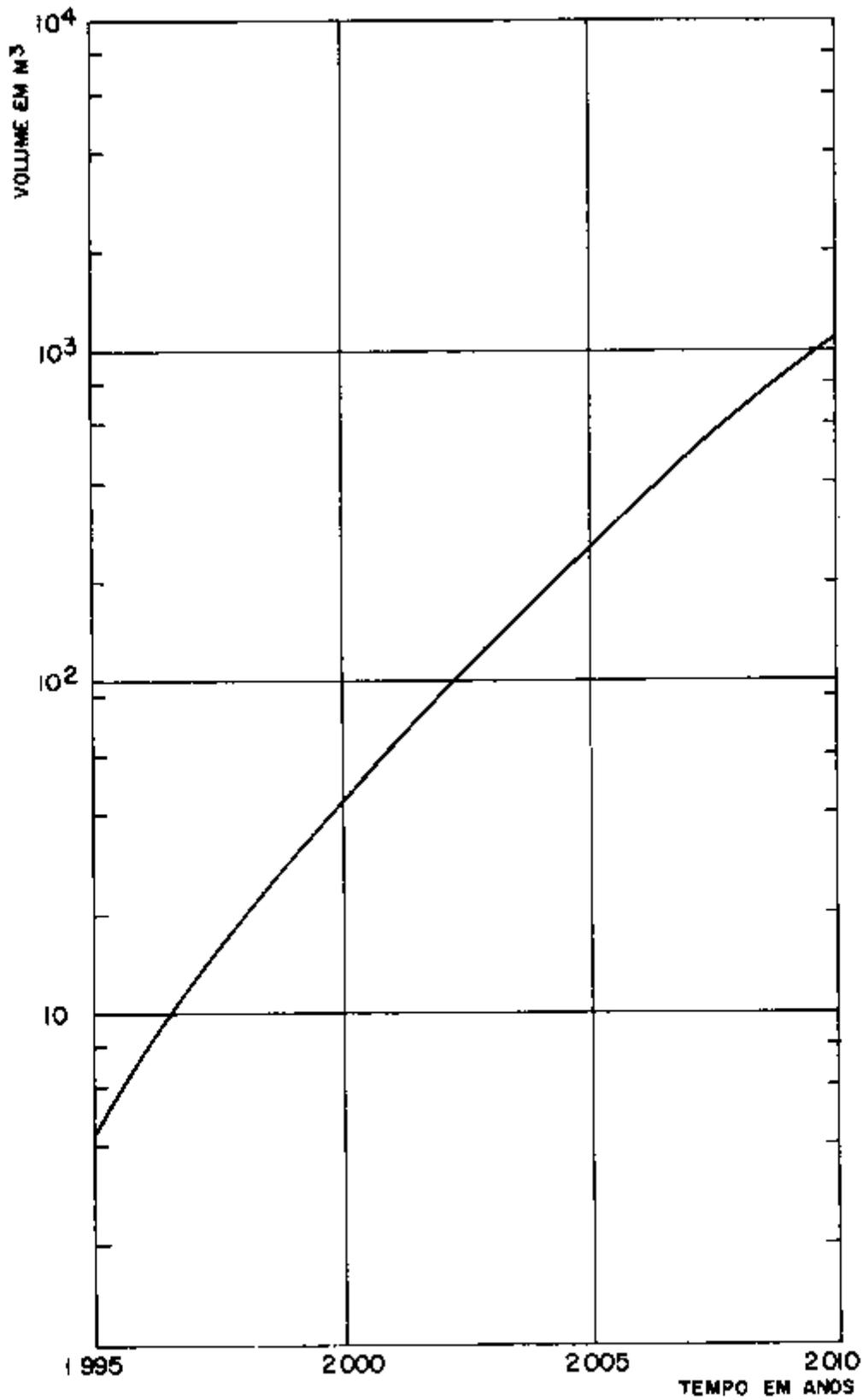


Figura 5.10 - Volume do rejeito de baixa atividade produzido na usina de reprocessamento.

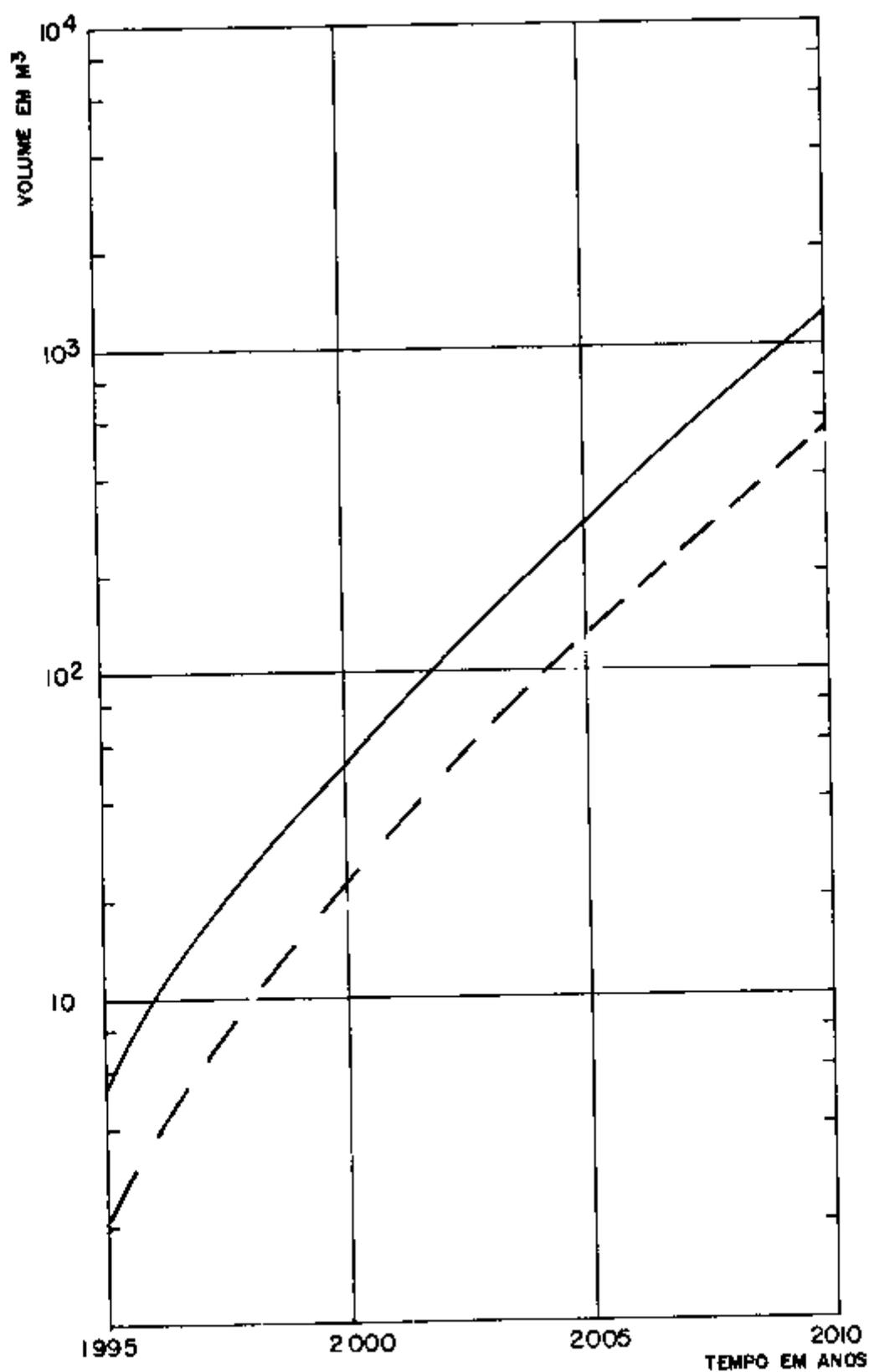


Figura 5.11 - Volume do rejeito de alta atividade produzido na usina de reprocessamento.

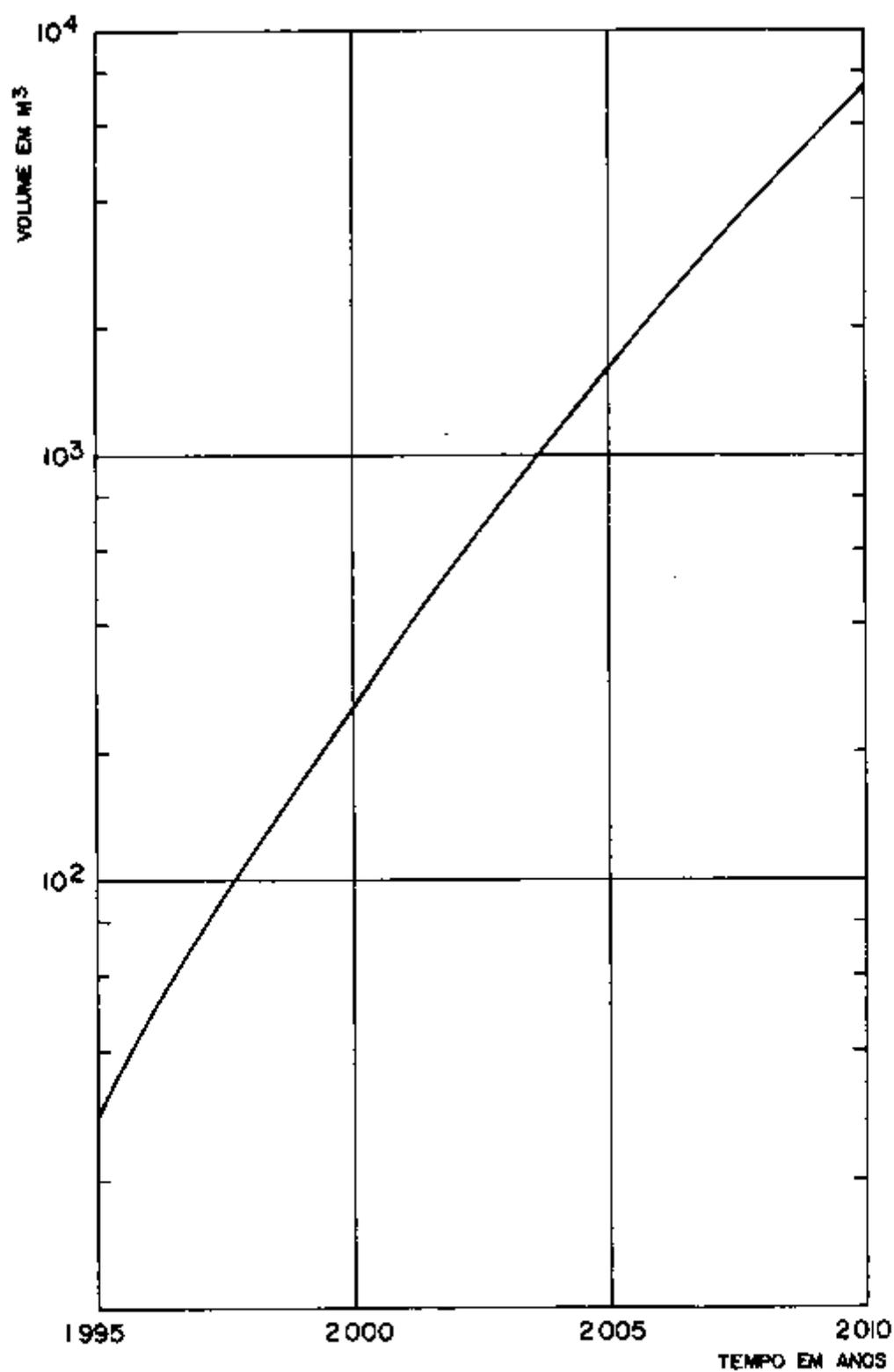


Figura 5.12 - Volume do rejeito contaminado com elementos transurânicos produzido na usina de reprocessamento.

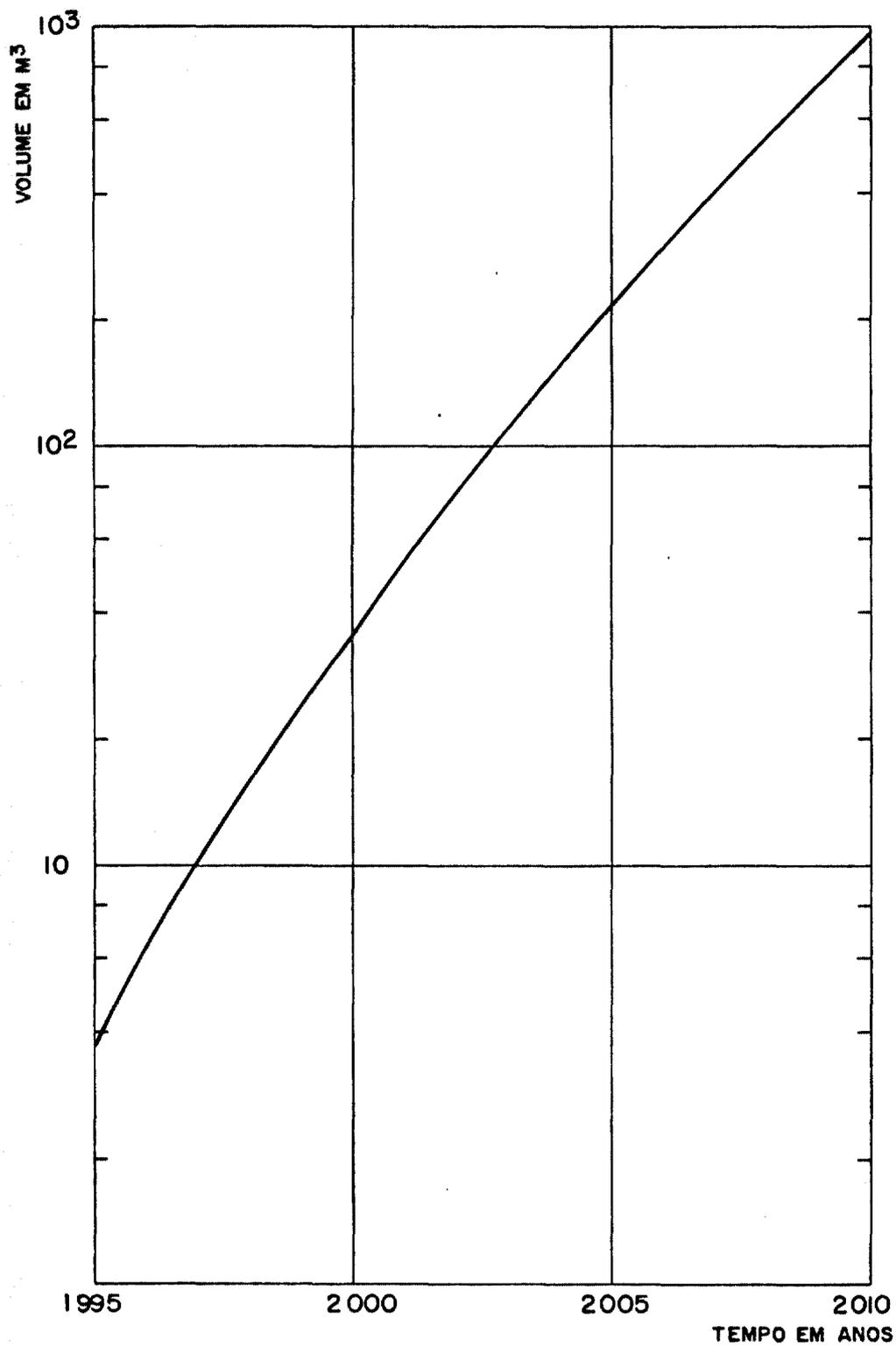


Figura 5.13 - Volume do rejeito contaminado com plutônio produzido na usina de reprocessamento.

CAPITULO VI

DISCUSSÃO DOS RESULTADOS E CONCLUSÕES

6.1 - DISCUSSÃO

Conforme foi exposto na secção 1.1, este trabalho tem como objetivos a previsão dos volumes dos resíduos radioativos que serão gerados, no país, até o ano 2010, com a instalação e com a operação do ciclo do combustível nuclear e, ainda, a determinação das propriedades do combustível irradiado e dos resíduos radioativos de alta atividade que serão produzidos no reprocessamento. Ambos os objetivos foram atingidos e os valores numéricos obtidos foram apresentados nos Capítulos IV e V. Nesta parte do trabalho analisamos, de maneira conjunta, os resultados anteriormente alcançados e apresentamos as conclusões a que chegamos a respeito dos mesmos.

Por uma questão de clareza, os comentários aqui apresentados foram divididos em três partes, cada uma delas -

referindo-se às questões que deverão ser resolvidas, em relação ao destino a ser dado ao resíduo nuclear, a curto, médio e longo prazo.

Analisando-se as figuras 5.4, 5.5, 5.6, 5.7, 5.8, 5.9, 5.10, 5.11, 5.12 e 5.13 do Capítulo V, verifica-se que, a curto prazo (próximos 15 anos), os maiores problemas - quanto aos resíduos radioativos estarão relacionados com o ar mazenamento do rejeito de baixa atividade e dos elementos com bustíveis irradiados. Embora os primeiros não apresentem pro blemas tecnológicos relevantes em seu tratamento, transporte e armazenamento, é necessário que seus volumes sejam previamente conhecidos para que se possam preparar locais apropriados ao seu isolamento e prever o número de embalagens que serão necessárias no seu acondicionamento.

Os resultados obtidos mostram que o maior volume do rejeito de baixa atividade será produzido na usina de conversão do concentrado de urânio em hexafluoreto de urânio, pelo "Dry Hidrofluor Process". As quantidades calculadas para - os anos 1990 e 2010 foram, respectivamente, 7880 m³ e 211993 m³. A seguir, os maiores volumes provêm das usinas nucleares. Os valores encontrados, neste caso, foram 16149 m³ para o - ano 1990 e 690506 m³ para o ano 2010. Nos países onde o ciclo do combustível nuclear já se encontra em operação, normalmente esses resíduos são tratados, acondicionados e armazenados no solo, em locais próximos às usinas onde foram gerados.

No caso da adoção da alternativa I, para a operação do ciclo do combustível, ou seja, sem a reciclagem do urânio, deve-se também considerar e solucionar o problema do armazenamento do combustível irradiado cujos volumes obtidos para 1990 e 2010 foram, respectivamente, 1287 m³ e 55051 m³. As figuras 4.4, 4.5, 4.6 e 4.7 mostram que, quantitativamente, toda as propriedades estudadas, com exceção da taxa de produção de nêutrons, diminuem uma ordem de grandeza nos 10 a 20 - primeiros anos após a retirada do combustível do reator. Esse fato permite-nos concluir que, após a irradiação, o combustível deve ser armazenado, provisoriamente, em um local adequado, pelo menos durante esse período, antes de ser colocado definitivamente em uma formação rochosa geologicamente adequada, onde esse material permanecerá por longo período de tempo. Deve-se salientar que existem, na terra, terrenos que têm permanecido estáveis desde há longo tempo e que, portanto, potencialmente, constituem locais apropriados ao armazenamento do combustível. Porém, é necessário observar que, durante esses milhares de anos de estabilidade, tais formações permaneceram invioladas, ou seja, não foram perfuradas ou prospectadas com qualquer finalidade. Assim sendo, para assegurar-se, ou pelo menos tentar assegurar-se a continuação dessa estabilidade, - deve-se evitar, ao máximo, a colocação de fontes intensas de calor, de nêutrons, ou de radiação no interior das mesmas. - Portanto, de acordo com os resultados obtidos e adotando-se -

a filosofia de evitarem-se modificações importantes no ambiente geológico onde o material irradiado deverá ser isolado, - pode-se afirmar que o armazenamento do combustível por um - período de 20 a 30 anos é uma prática recomendável.

A médio prazo, depois de 1995, a principal questão a ser resolvida refere-se ao armazenamento provisório do rejeito de alta atividade que será produzido durante as operações de reprocessamento. Tais resíduos são gerados nos casos em que o ciclo do combustível nuclear é operado segundo as alternativas II e III.

Após o reprocessamento, existem atualmente duas maneiras de administrar-se o rejeito de alta atividade. A primeira é armazená-lo na forma líquida e a segunda é solidificá-lo.

A análise das figuras 4.8, 4.9, 4.10, 4.11 e 4.12 do Capítulo IV nos mostra que a radioatividade, a taxa de geração de calor e a energia emitida por segundo pelos raios γ diminuem, cerca de uma ordem de magnitude, nos 10 primeiros anos após o reprocessamento. Assim sendo, pode-se concluir que a solidificação ou o armazenamento desse material imediatamente após sua geração é desaconselhável; não são pelos problemas que seriam causados durante a própria solidificação (blindagem, influência da radiação nos vidros, etc), como também pelas modificações que seriam impostas às rochas on

de se fizesse o armazenamento. Dessa maneira, parece-nos razoável que a transformação dos resíduos líquidos em sólidos estáveis e o isolamento definitivo desse material devem ser realizados depois de um período de, pelo menos, 10 anos após o reprocessamento. Felizmente, portanto, no Brasil, dispõe-se de um prazo razoavelmente longo, no qual devem ser feitas as escolhas do método de solidificação a ser empregado e do local mais apropriado ao armazenamento definitivo dos detritos radioativos de alta atividade.

Ainda a médio prazo, haverá necessidade de isolar-se convenientemente os resíduos contaminados com elementos transurânicos. Os volumes desses detritos, de acordo com os cálculos efetuados, são: 279 m^3 e 6961 m^3 , respectivamente para os anos 2000 e 2010.

A longo prazo, os maiores problemas a serem resolvidos são a solidificação e o armazenamento definitivo do rejeito de alta atividade. Conforme os resultados obtidos após a solidificação, o volume desse tipo de rejeito é pequeno (50 m^3 no ano 2000 e 1265 m^3 no ano 2010). No entanto, a radioatividade, a taxa de produção de calor, a energia gama emitida por segundo e a taxa de geração de nêutrons são bastante altas, tornando necessário o emprego de métodos de tratamento especiais para esse tipo de rejeito.

Entre as diversas soluções apresentadas para a so-

lidificação do rejeito, nos países onde já se utiliza a energia nucleoeleétrica, a que melhores resultados tem apresentado é a vitrificação. Deve-se salientar que, na atualidade, muitos esforços vêm sendo feitos na tentativa de desenvolver-se um método de separação entre os produtos de fissão e os actinídeos. A razão desses estudos pode ser entendida com o auxílio das figuras: 4.8, 4.9, 4.10, 4.11 e 4.12. De acordo com as mesmas, verifica-se que a radioatividade, a taxa de geração de calor e a energia emitida pelos raios γ dos produtos da fissão e dos actinídeos têm comportamentos diferentes em relação ao tempo. No caso dos produtos de fissão, de um modo geral, as propriedades acima apresentam valores altos logo após a produção do rejeito, valores que diminuem sensivelmente em até 10^3 anos. Os actinídeos comportam-se de maneira diferente. Nos primeiros anos após o reprocessamento as propriedades mencionadas apresentam valores não tão altos, mas que, no entanto, perduram até meio milhão de anos. Assim, teoricamente, apenas estes últimos elementos precisariam ser armazenados, em formações geologicamente estáveis, por longos períodos de tempo. Os produtos de fissão poderiam ser estocados, temporariamente, em edificações civis convencionais.

Para finalizar esta análise, gostaríamos de lembrar que, a partir do ano 2000, possivelmente novos tipos de

reatores nucleares, como os regeneradores rápidos (FBR), ou os reatores de alta temperatura (HTR), já estarão em testes na rede elétrica brasileira. Evidentemente, tais usinas possuirão - seus próprios ciclos do combustível, nos quais serão também - produzidos resíduos radioativos. Assim sendo, aos volumes ora apresentados somar-se-ão os rejeitos produzidos na preparação, utilização e reutilização dos combustíveis dos reatores mencionados.

Acreditamos que trabalhos de previsão, como este ora apresentado, podem auxiliar sobremaneira na administração dos resíduos radioativos e na tomada de decisões acertadas nesse campo.

6.2 - SUGESTÕES PARA ATIVIDADES FUTURAS

Sugerimos que os seguintes trabalhos sejam efetuados no futuro:

1. Levantamento dos recursos financeiros necessários à administração dos volumes de resíduos apresentados.
2. Estudo de campo dos locais propícios ao isolamento dos resíduos de alta atividade.
3. Estudo comparativo dos volumes dos resíduos radioativos produzidos nos ciclos do combustível dos reatores FBR e HTR.

4. Estudo minucioso das quantidades de resíduos gasosos produzidos em todo o ciclo do combustível.
5. Estudo do comportamento dos minerais formadores dos argilitos, folhelhos e basaltos, face à radiação.
6. Estudo pormenorizado das potencialidades da indústria do vidro nacional para a participação em programas de pesquisa e desenvolvimento de métodos de vitrificação.
7. Estudo dos riscos, no transporte rodoviário e ferroviário - do rejeito no país.

CAPÍTULO VIIBIBLIOGRAFIA

1. ALBRECHT, E.; KUHN, K.; PERZL, F.; DIEFENBACHER, W.; HEIL, J.; KRAUSE, H.; SCHUCHARDT, M.C. - Disposal of radioactive wastes by Storage, in a salt mine in the Federal Republic of Germany. In : International Atomic Energy, Vienna. Mangement of radioactive wastes from the nuclear fuel cycle: proceedings of a Symposium... jointly organized by the IAEA and OECD Nuclear Energy Agency, and held in Vienna, 22-24 March, 1976. Vienna, 1976, v.1, p.753.
2. ALLEMAN, R.T.; MOORE, R.L.; UPSON, U.L., Radiant-heat spray - calcination studies. In International Atomic Energy Agency, Vienna. Treatment and storage of high-level radioactive wastes: proceedings of a Symposium held by the IAEA, in Vienna, 8-12 October 1962. Vienna, 1963, p.217.

3. AMPHLETT, C.B. Treatment and disposal of radioactive wastes. Oxford, Pergamon Press, 1961.
4. AURAND, K.; SCHWIBACH, J.; WOLTER, R.; KRAUSE, H. Management of low and intermediate level radioactive liquid and solid wastes in the Federal Republic of Germany. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Management of low-and-intermediate-level radioactive wastes: proceedings of a Symposium jointly organized by the IAEA and ENEA, and held in Aix-en-Provence, 7-11 September 1970. Vienna, 1970, p.101.
5. BAETSLE, L. Study of the fixation and migration of radioactive cautions in a natural ion-exangen In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Disposal of Radioactive Wastes: proceedings of the Conference... jointly sponsored by IAEA and UNESCO, at Monaco, 16-21 November 1959. Vienna, 1960, v.1, p.200.
6. BALL, S.J.; ADAMS, R.K. MATEXP - A general purpose digital computer program for solving ordinary differncial equations by the matrix exponential method. Oak Ridge, ORNL, Aug. 1967. (ORNL-TM-1933).
7. BALU, K.; RAMACHANDRAN, S.; JAIN, B.K. Management of highly active decladding zircaloy solid wastes from a fuel reprocessing plant. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Management of radioactive wastes from the nuclear fuel cycle: proceedings of a Symposium... jointly organized by the IAEA and OECD Nuclear Energy Agency, and held in Vienna, 22-26 March 1976. Vienna, 1976, v.1, p.183.

- 8 . BAHR,W. Radioactive waste management: report to the government of Brasil.Viena, IAEA, 1975. (IAEA-TA-1088).
- 9 . BAHR,W.; HEMPELMANN,W.; KRAUSE,H.; NENTWICH,O. Experiences in the treatment of low and intermediate level radioactive wastes in the Nuclear Research Centre Karlsruhe In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Management of radioactive wastes from the nuclear fuel cycle: proceedings of a Symposium... jointly organized by the IAEA and OECD Nuclear Energy Agency, and held in Vienna, 22-26 March 1976. Vienna, 1976, v.1, p.461.
10. BARBEAU,A.; BARDET,G.; ESCALIER des ORRES,P.; JOURDE,P.; SCHEIDHAUER,J.; SOUSSELIER,Y. Experience industrielle de stockage de déchets radioactifs sur le site de la Hague In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Management of radioactive wastes from the nuclear fuel cycle: proceedings of a Symposium... jointly organized by the IAEA and OECD Nuclear Energy Agency, and held in Vienna, 22-26 March 1976. Vienna, 1976, v.1, p.485.
11. BARBEAU,A.; MARCAILLOU,J.; MERRY,J.; PINTO,D.; RANÇON,D. Evolution de la gestion des déchets de basse activité et d'activité intermédiaire. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Management of low-and intermediate-level radioactive wastes: proceedings of a Symposium... jointly organized by the IAEA and ENEA, and held in Aix-en-Provence, 7-11 September 1970. Vienna, 1970, p.347.

12. BARBOUR, R.A. Review of new developments in the field of low and intermediate radioactive waste disposal in the Republic of South Africa. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Practices in the treatment of low-and intermediate-level radioactive wastes: proceedings of a Symposium... jointly organized by the IAEA and ENEA, and held in Vienna, 6-10 December 1965. Vienna, 1966, p.911.
13. BELL, M.J. ORIGEN - Isotope generation and depletion code. Oak Ridge, ORNL, May 1973. (ORNL - 4628).
14. BELTER, W.G. Present and future programmes in the treatment and ultimate disposal of high-level radioactive wastes in the United States of America. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Treatment and storage of high-level radioactive wastes: proceedings of a Symposium held by the IAEA, in Vienna, 8-12 October 1962. Vienna, 1963, p.3.
15. BLANCO, R.E.; LAGUNA, W. Radioactive Waste Management. v.II. São Paulo, IEA, Mar. 1977. (INFORMAÇÃO IEA 33-11).
16. BLANCO, R.E.; UNGER, W.E.; IRVIN, A.R.; CROUSE, D.J.; WATSON, C.D. Radioactive Waste Management v.I. São Paulo, IEA, Nov. 1976. (INFORMAÇÃO IEA 53-11).
17. BLOMENE, J.O.; KEE, C.W.; NICHOLS, J.P. Projections of radioactive waste to be generated by the U.S. nuclear power industry. ORNL, Feb. 1974. (ORNL-TM-3965).

18. BOCHEREL, J.; AROD, J. Traitement des eaux de piscine de stockage sans conteneur de combustibles irradiés. In: International Atomic Energy Agency, Vienna, Management of low-and-intermediate-level radioactive wastes: proceedings of a Symposium... jointly organized by the IAEA and ENEA, and held in Aix-in-Provence, 7-11 September 1970. Vienna, 1970, p.260.
19. BRANDÃO, F.A. - Aspectos técnicos e econômicos do programa Nuclear Brasileiro - CNEN - comunicação interna. 1978.
20. BROWN, R.E.; PARKER, H.M. Disposal of liquid wastes to the ground. In: United Nations, New York. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the International Conference... held by the United Nations at Geneva, 8-20 August, 1955, v.9: Reactor technology and chemical processing. New York, 1956. p. 669.
21. BRUCE, F.R. The origin and nature of radioactive wastes in the United States Atomic Energy Programme. In: International Atomic Energy Agency, Vienna, Disposal of Radioactive Wastes: proceedings of the Conference... jointly sponsored by IAEA and UNESCO, at Monaco, 16-21 November 1959. Vienna, 1960, v.1, p.3
22. BUCKHAM, J.A.; McBRIDGE, J.A. Pilot-plant studies of the fluidized-bed waste calcination process. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Treatment and storage of high-level radioactive wastes: proceedings of a Symposium... held by the IAEA, in Vienna, 8-12 October 1962. Vienna, 1963, p.233.

23. BURNS, R.H. Radioactive waste control at the United Kingdom Atomic Energy Research Establishment, Harwell. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Disposal of Radioactive Wastes: proceedings of the Conference... jointly sponsored by IAEA and UNESCO, at Monaco, 16-21 November 1959. Vienna, 1960, v.1, p.411.
24. CERRÉ, P. Conditionnement des déchets radioactifs solides In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Disposal of Radioactive Wastes: proceedings of the Conference... jointly sponsored by IAEA and UNESCO, at Monaco, 16-21 November 1959. Vienna, 1960, v.1, p.225.
25. CERRÉ, P.; MESTRE, E.; LEBRUN, P. Station de traitement des déchets radioactifs solides au Centre d'études nucléaires de Saclay. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Treatment and storage of high-level radioactive wastes: proceedings of a symposium... held by the IAEA in Vienna, 8-12 October 1962. Vienna, 1963, p.599.
26. CIPRIANI, A.J. Record of proceedings of session 2381. In: United Nations, New York. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the International Conference... held by the United Nations at Geneva, 8-20 August, 1955, v.9: Reactor technology and chemical processing. New York, 1956, p.692.
27. CLEMENT, J.M. La centrifuga de gases en el enriquecimiento isotópico del uranio. Energía Nuclear, España, 18(92): 383-389, 1974.

28. CLELLAND, D.W. Concentration and storage of highly-active wastes from the first stages of the United Kingdom civil nuclear power programme. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Treatment and storage of high-level radioactive wastes: proceedings of a Symposium... held by the IAEA, in Vienna, 8-12 October 1962. Vienna, 1963, p.63.
29. COHEN, B.L. High-level radioactive waste from light-water reactors. Reviews of Modern Physics, 49(1): 1-19, Jan. 1977.
30. COHEN, B.L.. The disposal of radioactive wastes from fission reactors. Scientific American, New York, 236(6):21-31, Jun. 1977.
31. COHEN, P.; GAILLEDREAU, C. Une solution de stockage dans le sol des bones radioactives de Marcoule. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Disposal of Radioactive Wastes: proceedings of the Conference... jointly sponsored by IAEA and UNESCO, at Monaco, 16-21 November 1959. Vienna, 1960, v.1, p.235.
32. COLLINS, J.C. Radioactive wastes their treatment and disposal London, I. & F.N. Spon. 1960.
33. DILLON, R.L., GRIGGS, B.; KEMPER, R.S.; NELSON, R.G. Chemical decontamination and melt densification of chop-leach fuel hulls. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Management of Radioactive wastes from the nuclear fuel cycle: proceedings of a Symposium... jointly organized by the IAEA and OECD Nuclear Energy Agency, and held in Vienna, 22-26 March 1976. Vienna, 1976, v.1, p.185.

34. DUHAMEL, F.A. Closing Discussion. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Treatment and storage of high-level radioactive wastes: proceedings of a Symposium...held by the IAEA in Vienna, 8-12 October 1962. Vienna, 1963, p.643.
35. DUHAMEL, F.A.; MENOUX, M.; CANDILLON, M. Disposal of liquid radioactive residues at the CEA; treatment and disposal in a river. In: United Nations, New York. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the sec. International Conference... held by the United Nations at Geneva, 1-13 September, 1958, v.18. Waste treatment and environmental aspects of atomic energy. Geneva, 1958, p.90.
36. DUNSTER, H.J. The disposal of waste products in the sea, part 2. In: United Nations, New York. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the International Conference... held by the United Nations at Geneva, 8-20 August, 1955, - v.9. Reactor technology and chemical processing. New York, 1956, p.712.
37. DUNSTER, H.J.; WIX, L.F.U. The practice of waste disposal in the United Kingdom Atomic Energy Authority. In: International Atomic Energy Agency, Vienna, Disposal of Radioactive Wastes: proceedings of the Conference...jointly sponsored by IAEA and UNESCO, at Monaco, 16-21 November 1959. Vienna, 1960, v.1, p.403.
38. EMELITY, L.A.; CHRISTENSON, C.W. Replacement of an old treatment plant - A design based on experience. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Management of radioactive wastes from the nuclear fuel cycle: proceedings of a Symposium...jointly organized by the IAEA and OECD Nuclear Energy Agency, and held in Vienna, 22-26 March 1976. Vienna, 1976, v.1, p.630.

39. ESTADOS UNIDOS DA AMÉRICA: Energy Research & Development Administration. Alternatives for managing wastes from reactors and post-fission operations in the LWR fuel cycle. Washington, D.C., ERDA, May 1976. (ERDA-76-43).
40. ESTADOS UNIDOS DA AMÉRICA: Nuclear Regulatory Commission. Environmental survey of the reprocessing and waste management portions of LWR fuel cycle. Washington, D.C., - NUREG, Oct. 1976. (NUREG-0116).
41. ESTADOS UNIDOS DA AMÉRICA. United States Atomic Energy - Commission. Nuclear Power Groth 1974-2000. Washington, D.C., USAEC, Feb. 74. (WASH 1139 (74)).
42. ESTADOS UNIDOS DA AMERICA. United States Atomic Energy - Commission. The Nuclear Industry. Washington, D.C., USAEC, 1971. (WASH 1174(71)).
43. ESTADOS UNIDOS DA AMERICA. United States Atomic Energy - Commission. The Nuclear Industry. Washington, D.C., USAEC, 1973. (WASH 1174 (73)).
44. FAIR, D.R.R.; McLEAN, A.S. The disposal of waste in the sea, part 3. In: United Nations, New York. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the International Conference ... held by the United Nations at Geneva, 8-20 August, 1955. v.9: Reactor technology and chemical processing. New Yor, 1956, p.716.
45. FROSH, R.A. Disposing of high-level radioactive waste. Oceanus, Woods Hole, 20(1): 4-17, 1977.
46. GILMORE, W.R. Radioactive waste disposal: low and high level Park Ridge, N.J., Mayes Data. 1977.

47. GLUECKAUF, E. Atomic energy waste- its nature, use and disposal. London. Butterworths. 1961.
48. GODFREY, W.L.; HANSON, G.L.; SMITH, P.W. Solidification and improved treatment of low and intermediate level radioactive wastes at Hanford. In: International Atomic Energy Agency, Vienna, Management of radioactive wastes from the nuclear fuel cycle: proceedings of a Symposium... jointly organized by the IAEA and OECD Nuclear Energy Agency, and held in Vienna, 22-26 March 1976. Vienna, 1976, v.1, p.503.
49. GOLDMAN, M.I.; SERVIZI, J.A.; DANIELS, R.S.; TEBBUTT, T.H.Y.; BURNS, R.T.; LAUDERALE, R.A. Retention of Fission Products in ceramic - glaze type fusions. In: United Nations, New York, Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the Sec. International Conference... held by the United Nations at Geneva, 1-13 September, 1958, v.18. Waste treatment and environmental aspects of atomic energy. Geneva, 1958, p.27.
50. GUIRLET, J.; LAVIE, J.M. Quantite et activite des produits de fission obtenus en France dans les années à venir compte tenu du développement de l'energie atomique. In: International Atomic Energy Agency, Vienna, Disposal of Radioactive Wastes: proceedings of the Conference... jointly sponsored by IAEA and UNESCO, at Monaco, 16-21 November 1959. Vienna, 1960, v.1, p.89.
51. HEATH, R.G. Barriers to radioactive waste migration. Oceanus, Woods Hole, 20(1): 26-30, 1977.

52. HOLMES, J.M.; BLOMEKE, J.D.; CLARK, W.E.; GODBEE, H.W.; HANCHER, C.W.; SUDDATH, J.C.; WHATLEY, M.E. Pot calcination process for converting highly radioactive wastes to solids. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Treatment and storage of high-level radioactive wastes: proceedings of a Symposium...held by the IAEA in Vienna, 8-12 October 1962. Vienna, 1963, p.255.
53. HYDEMAN, L.M.; BERMAN, W.H. Legal and administrative problems of controlling the disposal of nuclear wastes in the sea. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Disposal of Radioactive Wastes: proceedings of the Conference...jointly sponsored by IAEA and UNESCO, at Monaco, 16-21 November 1959, Vienna, 1960, v.1, p.563.
54. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY Basic factors for the treatment and disposal of radioactive wastes. Vienna, 1967 (Safety Series n° 24).
55. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Bitumization of radioactive wastes. Vienna, 1969. (Technical Reports Series n° 116)
56. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Standardization of radioactive waste categories. Vienna, 1971 (Technical Reports Series n° 101).
57. KENY, A.W. Origin, nature, disposal and control of radioactive wastes arising from the use of radioisotopes. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Disposal of Radioactive Wastes: proceedings of the Conference...jointly sponsored by IAEA and UNESCO, at Monaco, 16-21 November 1959. Vienna, 1960, v.1, p.63.

58. KENNY, A.W.; MITCHELL, N.T. United Kingdom Waste Management policy. In: International Atomic Energy Agency, Vienna, Management of low - and intermediate-level radioactive wastes: proceedings of a Symposium...jointly organized by the IAEA and ENEA, and held in Aix-in-Provence, 7-11 September 1970. Vienna, 1970, p.69.
59. KLEET, R.D. Deep Rock Nuclear Waste Disposal Test: Design and Operation. Albuquerque, New Mexico, SAND, Sept. 1974. (SAND 74-0042).
60. KRAFTWERK UNION. Preliminary safety analysis report - nuclear power plant Angra II and III. PWR. Vol.1, text. June. 1976.
61. LAGUNA, W.; COWSER, K.E.; PARKER, F.L. Disposal of high level radioactive liquid wastes in terrestrial pits; a sequel. In: United Nations, New York. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the sec. International Conference... held by the United Nations at Geneva, 1-13 September, 1958, v.18. Waste treatment and environmental aspects of atomic energy. Geneva, 1958, p.101.
62. LAUDERALE Jr., R.A. Studies on the removal of radioisotopes from liquid wastes by coagulation. Oak Ridge, ORNL, 1951, (ORNL 932).
63. LEFEVRE, C. Incinérateur pour la récupération du plutonium dans les déchets combustibles. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Management of radioactive wastes from the nuclear fuel cycle: proceedings of a Symposium...jointly organized by the IAEA and OECD Nuclear Energy Agency, and held in Vienna, 22-26 March 1976. Vienna, 1976, v.1, p.657.

64. LEITZKE, M.P.; CLAIBORNE, H.C. CRUNCH - An IBM-704 code for calculating n successive first order reactions. Oak Ridge, ORNL, Oct. 1960. (ORNL-2958).
65. LIEBERMAN, J.A. The role of waste management in the development of the nuclear energy industry. In: United Nations New York. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the Sec. International Conference... held by the United Nations at Geneva, 1-13 September, 1958, v.18 : Waste treatment and environmental aspects of atomic energy. Geneva, 1958, p.3.
66. MAGALHÃES, L.C.A. O problema energético brasileiro. Rio de Janeiro, Furnas - Centrais Elétricas, 1975. (Conferência pronunciada na Escola Superior de Guerra).
67. MAGALHÃES, L.C.A. O problema energético brasileiro. Rio de Janeiro, Furnas Centrais Elétricas, 1976. (Conferência pronunciada na Escola Superior de Guerra).
68. MENCHERO, E.L. Research and development work on the treatment of low and medium level wastes in the ENEA countries. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Practices in treatment of low-and-intermediate-level radioactive wastes: proceedings of a Symposium... jointly organized by the IAEA and ENEA, and held in Vienna, 6-10 December, 1965. Vienna, 1966, p.869.
69. MAWSON, C.A. Management of Radioactive Wastes. Princeton, NJ, D. Van Nostrand. 1965.

70. MAWSON, C.A. Waste disposal into the ground. In: United Nations, New York. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the International Conference...held by the United Nations at Geneva, 8-20 August, 1955, v.9. Reactor technology and chemical processing. New York, 1956. p.676.
71. OSZUSZKY, F.J.F.; SCHLOSSER, K. Future management of radioactive wastes in Austria. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Management of low-and intermediate level radioactive wastes: proceedings of a Symposium... jointly organized by the IAEA and ENEA, and held in Aix-en-Provence, 7-11 September 1970. Vienna, 1970. p.213.
72. OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY, Oak Ridge. Siting of fuel reprocessing plant and waste management. ORNL, Jul. 1964. (ORNL - 4451).
73. OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY, Oak Ridge. Transuranium processing plant. ORNL, Mar. 1970. (ORNL-4447).
74. PATRIARCA, P.; RUCKER, D.J. Fuel and materials development program. Oak Ridge, ORNL, Oct. 1969. (ORNL-4440).
75. PEASE, L.C. DEEMS, a FORTRAN. program for solving the first degree coupled differential equations by expansion in matrix series. Oct. 1963. (TDSI-49).
76. PERSONA, J.J.; BRADSHAW, R.L.; ROBERTS, J.T.; BLOMEKE, J.O. - Economic evaluation of tank storage and pot-calcination of power reactor fuel reprocessing wastes. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Treatment and storage of high-level radioactive wastes: proceedings of a Symposium... held by the IAEA in Vienna, 8-12 October 1962, Vienna, 1963, p.309.

77. PILKEY, O.H.; PLATT, A.M.; ROHRMANN, C.A. The Storage of high-level radioactive wastes; design and operating experience in the United State. In: United Nations, New York, Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the second International Conference... held by the United Nations at Geneva, 1-13 September, 1958, v.18. Waste treatment and environmental aspects of atomic energy, Geneva, 1958, p.7.
78. POMAROLA, J.; SAVOUYAUD, J. Problèmes de manipulation et de transport. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Disposal of Radioactive Wastes: proceedings of the Conference... jointly sponsored by IAEA and UNESCO, at Monaco, 16-21 November 1959. Vienna, 1960, v.1, p.214.
79. RENN, C.E. Disposal of radioactive wastes at sea. In: United Nations, New York. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the International Conference... held by the United Nations at Geneva, 8-20 August, 1956, v.9 : Reactor technology and chemical processing. New York, 1956, p.718.
80. REPUBLICA FEDERATIVA DO BRASIL - O Programa Nuclear Brasileiro. Gal. Ernesto Geisel. Brasília, março 1977.
81. ROGERS, L.R. Management of waste from use of radioisotopes. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Disposal of Radioactive wastes: proceedings of the scientific Conference... jointly sponsored by IAEA and UNESCO, at Monaco, 16-21 November 1959. Vienna 1960, v.1, p. 63.

82. SADDINGTON,K.; TEMPLETON,W.L. Disposal of Radioactive Waste. London, George Newnes. 1958.
83. SANTOS,J.M.E.; HUKAI,R.Y. Previsão da geração de resíduos radioativos no Brasil, na execução do Programa Nuclear. In: COPPE - RJ. I Congresso Brasileiro de Energia: Anais do... Rio de Janeiro. dezembro 1978. v.1, p.21.
84. SANTOS,L.; MACHADO,T.C. Développement de la gestion des déchets radioactifs au Brésil. In : International Atomic Energy Agency, Vienna, Management of low-and-intermediate level radioactive wastes: proceedings of a Symposium... jointly organized by the IAEA and ENEA, and held in Aix-en-Provence, 7-11 September 1970. Vienna, 1970, p.205.
85. SELIGMAN,H. The disposal of waste products in the sea. - Part 1. In: United Nations, New York. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the International Conference ... held by the United Nations at Geneva, 8-20. August,1955. v.9 : Reactor technology and chemical processing New York, 1956, p.701.
86. SOUSSELIER,Y.; PRADEL,J.; COUSIN,D. Le stockage à très long terme des produits de fission. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Management of radioactive wastes from the nuclear cycle: proceedings of a Symposium...jointly organized by the IAEA and OECD Nuclear Energy Agency, and held in Vienna, 22-26 March 1976. Vienna, 1976, v.1, p.37.
87. SPITSYN,V.; BALUKOVA,V.D.; ERMAKOVA,T.A. Studies of sorption and migration of radioactive elements in soils. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Treatment and storage

of high-level radioactive wastes: proceedings of a Symposium held by the IAEA, in Vienna, 8-12 October 1962. Vienna, 1963, p.569.

88. SPITSYN,V., KOLICHEV,B.S.; SEDOV,V.M. Treatment and burial of low and intermediate level radioactive waste in URSS. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Management of low-and intermediate-level radioactive wastes: proceedings of a Symposium...jointly organized by the IAEA and ENEA, and held in Aix-En-Provence, 7-11 September 1970. Vienna, 1970, p.27.
89. SYLLUS,C. Brazilian Nuclear Program - strategy adopted for technology transfer. In: TANSO. Nuclear Power Plant Construction, Operation, and Development: proceedings of the second pacific basin conference...sponsored jointly by ANS, AESJ and CNA, at Tokyo, Japan, 25-29 Sept,1978. TANSO 29 1-334 (1978).
90. TAKASHIMA,Y.; SEGAWA,T.; TSUTSUMI,K.; YUSA,H.; NISHIZAWA, Y.; OHNO,M. Research and development on removal of radioactive noble gases in Japan. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Management of radioactive wastes from the nuclear fuel cycle: proceedings of a Symposium...jointly organized by the IAEA and OECD Nuclear Energy Agency, and held in Vienna, 22-26 March 1976. Vienna, 1976, v.1,p.115.
91. TALBERT,D.M. Seabed Disposal Program Annual Report-January-December 1975. Albuquerque, New Mexico, SAND, May 1976. (SAND 76 - 0256).

92. THOMAS, H.C. Some fundamental problems in the fixation of radioisotopes in solids. In: United Nations, New York. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the second International Conference... held by the United Nations at Geneva, 1-13 September, 1958, v.18: Waste treatment and environmental aspects of atomic energy. Geneva, 1958, p.37.
93. THOMAS, K.T. A review of research and development for the treatment of low and intermediate level radioactive wastes. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Practices in the treatment of low-and-intermediate-level radioactive wastes: proceedings of a Symposium... jointly organized by the IAEA and ENEA, and held in Vienna, 6-10 December 1965. Vienna, 1966, p.901.
94. VAN de VOORDE N.; PEETERS, K. Developments in treatment of low and intermediate level radioactive liquid waste at Mol. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Management of radioactive wastes from the nuclear fuel cycle: proceedings of a Symposium... jointly organized by the IAEA and OECD Nuclear Energy Agency, and held in Vienna, 22-26 March 1976. Vienna, 1976, v.1, p.688.
95. VAN TUYL, H.H. ISOGEN - A computer code for radioisotope generation calculations, 1964. (HW-83785).
96. VOLKOVA, O.I.; ZAKHAROVA, K.P.; KULICHENKO, V.V.; KONDRATYEV, A.N. Incorporation of radioactive wastes containing sodium nitrate into bitumen. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Management of low-and-intermediate-level radioactive wastes: proceedings of a Symposium... jointly organized by the IAEA and ENEA, and held in Aix-en-Provence, 7-11 September 1970. Vienna, 1970, p.725.

97. WATSON, L.C.; AIKIN, A.M.; BANCROFT, A.R. The permanent disposal of highly radioactive wastes by incorporation into glass. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Disposal of Radioactive Wastes: proceedings of the Conference... jointly sponsored by IAEA and UNESCO, at Monaco, 16-21 November 1959. Vienna, 1960, v.1, p. 373.
98. WATSON, L.C.; DURHAM, R.W.; ERLBACH, W.E.; RAE, A.K. The disposal of fission products in glass. In: United Nations New York. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the second International Conference... held by the United Nations at Geneva, 1-13 September, 1958, v.18: Waste treatment and environmental aspects of atomic energy. Geneva, 1958. p.19.
99. WINSHE, W.E.; DAVIS Jr., M.W.; GOODLETT, C.B.; OCCHIPINTI, E. S.; WEBSTER, D.S. Calcination of radioactive waste in molten sulphur. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Treatment and storage of high-level radioactive wastes: proceedings of a Symposium... held by the IAEA, in Vienna, 8-12 October 1962. Vienna, 1963, p.195.
100. ZAHN, L.L.; SMITH, C.W.; JUNKINS, R.L. Shipment of gross quantities of radiostrontium. In: International Atomic Energy Agency, Vienna. Treatment and storage of high-level radioactive wastes: proceedings of a Symposium held by the IAEA, in Vienna, 8-12 October 1962. Vienna, 1963, p.623.

101. ZHAKOV, P.; KOLYCHEV, B.; KOLICHENKO, V.V.; MARTINOV, Y.P.
The behavior of radioisotopes incorporated in glass
blocks. In: International Atomic Energy Agency, Vienna.
Treatment and storage of high-level radioactive wastes:
proceedings of a Symposium...held by the IAEA, in Vienna,
8-12 October 1962. Vienna, 1963, p.397.

APÊNDICE A

No apêndice A, apresentamos as tabelas referentes aos diagramas do capítulo IV.

Table 1 - Composição isotópica, em átomos-grama, do rejeito radioativo em função do tempo após o processamento.

Nuclídeo	1	10	10^2	10^3	10^4	10^5	10^6	10^7
^{226}Ra	$6,26 \times 10^{-13}$	$3,95 \times 10^{-12}$	$6,36 \times 10^{-10}$	$2,34 \times 10^{-7}$	$1,07 \times 10^{-5}$	$8,46 \times 10^{-5}$	$2,19 \times 10^{-3}$	$7,02 \times 10^{-6}$
^{229}Th	$2,48 \times 10^{-10}$	$3,94 \times 10^{-10}$	$1,45 \times 10^{-8}$	$1,43 \times 10^{-6}$	$1,14 \times 10^{-4}$	$2,63 \times 10^{-3}$	$5,92 \times 10^{-3}$	$3,02 \times 10^{-4}$
^{230}Th	$3,41 \times 10^{-8}$	$3,79 \times 10^{-2}$	$2,05 \times 10^{-6}$	$6,66 \times 10^{-5}$	$6,88 \times 10^{-4}$	$4,23 \times 10^{-3}$	$1,09 \times 10^{-3}$	$3,51 \times 10^{-4}$
^{233}U	$7,78 \times 10^{-7}$	$6,75 \times 10^{-6}$	$6,69 \times 10^{-5}$	$6,95 \times 10^{-4}$	$7,11 \times 10^{-3}$	$5,85 \times 10^{-2}$	$1,31 \times 10^{-1}$	$6,70 \times 10^{-3}$
^{234}U	$1,52 \times 10^{-4}$	$1,71 \times 10^{-3}$	$1,29 \times 10^{-2}$	$2,60 \times 10^{-2}$	$2,55 \times 10^{-2}$	$2,00 \times 10^{-2}$	$2,60 \times 10^{-3}$	$1,08 \times 10^{-3}$
^{236}U	$1,01 \times 10^{-1}$	$1,01 \times 10^{-1}$	$1,02 \times 10^{-1}$	$1,15 \times 10^{-1}$	$1,95 \times 10^{-1}$	$2,47 \times 10^{-1}$	$2,40 \times 10^{-1}$	$1,85 \times 10^{-1}$
^{237}Np	2,05	2,05	2,08	2,21	2,25	2,19	1,63	$8,85 \times 10^{-2}$
^{238}Pu	$1,88 \times 10^{-2}$	$2,15 \times 10^{-2}$	$1,14 \times 10^{-2}$	$2,90 \times 10^{-5}$	$6,76 \times 10^{-23}$	0,0	0,0	0,0
^{239}Pu	$1,10 \times 10^{-1}$	$1,10 \times 10^{-1}$	$1,13 \times 10^{-1}$	$1,36 \times 10^{-1}$	$2,57 \times 10^{-1}$	$3,56 \times 10^{-2}$	$1,24 \times 10^{-8}$	$8,47 \times 10^{-9}$
^{240}Pu	$4,80 \times 10^{-2}$	$7,67 \times 10^{-2}$	$1,43 \times 10^{-1}$	$1,33 \times 10^{-1}$	$5,27 \times 10^{-2}$	$5,17 \times 10^{-6}$	$3,57 \times 10^{-11}$	$3,86 \times 10^{-11}$
^{241}Am	$1,86 \times 10^{-1}$	$1,90 \times 10^{-1}$	$1,76 \times 10^{-1}$	$4,19 \times 10^{-2}$	$1,47 \times 10^{-4}$	$8,16 \times 10^{-8}$	0,0	0,0
^{242}Cm	$4,17 \times 10^{-3}$	$8,56 \times 10^{-6}$	$5,69 \times 10^{-6}$	$9,38 \times 10^{-6}$	$1,41 \times 10^{-25}$	0,0	0,0	0,0
^{242}Pu	$6,73 \times 10^{-3}$	$6,76 \times 10^{-3}$	$6,98 \times 10^{-3}$	$7,47 \times 10^{-3}$	$7,80 \times 10^{-3}$	$6,75 \times 10^{-3}$	$1,30 \times 10^{-3}$	$9,23 \times 10^{-11}$
^{243}Am	$3,43 \times 10^{-1}$	$3,43 \times 10^{-1}$	$3,40 \times 10^{-1}$	$3,14 \times 10^{-1}$	$1,39 \times 10^{-1}$	$3,99 \times 10^{-5}$	$3,88 \times 10^{-9}$	$2,66 \times 10^{-9}$
^{243}Cm	$2,89 \times 10^{-4}$	$2,38 \times 10^{-4}$	$3,19 \times 10^{-5}$	$1,15 \times 10^{-13}$	0,0	0,0	0,0	0,0
^{244}Cm	$9,87 \times 10^{-2}$	$6,99 \times 10^{-2}$	$2,23 \times 10^{-3}$	$2,67 \times 10^{-18}$	$2,83 \times 10^{-18}$	$2,60 \times 10^{-17}$	$1,24 \times 10^{-16}$	$1,14 \times 10^{-16}$

Tabela A2 - Radiatividade, em curies, da rejeito em função do tempo após o reprocessamento.

Nuclídeos	tempo em anos						
	1	10	10 ²	10 ³	10 ⁴	10 ⁵	10 ⁷
⁵⁴ Hr	$1,15 \times 10^1$	$6,21 \times 10^{-3}$	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
⁵⁵ Fe	$3,33 \times 10^1$	3,02	$1,15 \times 10^{-10}$	0,0	0,0	0,0	0,0
⁵⁸ Co	1,26	$1,66 \times 10^{-14}$	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
⁶⁰ Co	$3,48 \times 10^2$	$1,06 \times 10^2$	$7,51 \times 10^{-4}$	0,0	0,0	0,0	0,0
¹⁰⁶ Rh	$1,94 \times 10^5$	$3,90 \times 10^2$	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
¹³⁴ Cs	$1,48 \times 10^5$	$7,04 \times 10^3$	$4,27 \times 10^{-10}$	0,0	0,0	0,0	0,0
¹³⁷ Cs	$1,40 \times 10^5$	$8,46 \times 10^4$	$1,06 \times 10^4$	$9,82 \times 10^{-6}$	0,0	0,0	0,0
²³⁷ Np	$3,42 \times 10^{-1}$	$3,43 \times 10^{-1}$	$3,47 \times 10^{-1}$	$3,69 \times 10^{-1}$	$3,76 \times 10^{-1}$	$3,66 \times 10^{-1}$	$2,73 \times 10^{-1}$
²³⁹ Np	$1,61 \times 10^1$	$1,60 \times 10^1$	$1,59 \times 10^1$	$1,47 \times 10^1$	6,49	$1,86 \times 10^{-3}$	$1,82 \times 10^{-7}$
²³⁹ Pu	1,61	1,62	1,66	2,00	3,77	$5,21 \times 10^{-1}$	$1,82 \times 10^{-7}$
²⁴¹ Am	$1,54 \times 10^2$	$1,57 \times 10^2$	$1,45 \times 10^2$	$3,46 \times 10^1$	$1,21 \times 10^{-1}$	$6,74 \times 10^{-5}$	0,0
²⁴³ Am	$1,61 \times 10^1$	$1,60 \times 10^1$	$1,59 \times 10^1$	$1,47 \times 10^1$	6,49	$1,86 \times 10^{-3}$	$1,82 \times 10^{-7}$
T ₁	$1,63 \times 10^6$	$3,08 \times 10^5$	$3,44 \times 10^4$	$2,10 \times 10^1$	$2,00 \times 10^1$	$1,54 \times 10^1$	3,31
T ₂	$6,05 \times 10^3$	$2,00 \times 10^3$	$2,98 \times 10^2$	$7,47 \times 10^1$	$2,08 \times 10^1$	2,66	3,22
T ₃	$5,28 \times 10^4$	$1,04 \times 10^4$	$6,69 \times 10^2$	7,11	5,92	2,83	$1,47 \times 10^{-1}$
TOTAL	$1,69 \times 10^6$	$3,20 \times 10^5$	$3,54 \times 10^4$	$1,03 \times 10^2$	$4,67 \times 10^1$	$2,09 \times 10^1$	6,68
							$3,24 \times 10^{-1}$

Tabela A3 - Energia emitida pelos raios γ , em watts (j/s), no rejeito radioativo, em função do tempo após o reprocessamento.

Nucleídeos	tempo em anos							
	1	10	10^2	10^3	10^4	10^5	10^6	10^7
^{106}Rh	$1,91 \times 10^2$	$7,87 \times 10^{-1}$	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
$^{126\text{-m}}\text{Sb}$	$3,39 \times 10^{-3}$	$3,39 \times 10^{-3}$	$3,38 \times 10^{-3}$	$3,36 \times 10^{-3}$	$3,16 \times 10^{-3}$	$1,69 \times 10^{-3}$	$3,36 \times 10^{-6}$	0,0
^{126}Sb	$4,40 \times 10^{-3}$	$4,40 \times 10^{-3}$	$4,40 \times 10^{-3}$	$4,37 \times 10^{-3}$	$4,11 \times 10^{-3}$	$2,20 \times 10^{-3}$	$4,39 \times 10^{-6}$	0,0
^{126}Sn	$2,89 \times 10^{-4}$	$2,89 \times 10^{-4}$	$2,89 \times 10^{-4}$	$2,87 \times 10^{-4}$	$2,70 \times 10^{-4}$	$1,44 \times 10^{-4}$	$2,86 \times 10^{-7}$	0,0
^{134}Cs	$1,39 \times 10^3$	$6,64 \times 10^1$	$4,03 \times 10^{-12}$	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
^{137}Cs	1,87	1,52	$1,90 \times 10^{-1}$	$1,77 \times 10^{-10}$	0,0	0,0	0,0	0,0
$^{137\text{-m}}\text{Ba}$	$3,83 \times 10^2$	$3,11 \times 10^2$	$3,88 \times 10^1$	$3,61 \times 10^1$	0,0	0,0	0,0	0,0
^{144}Pr	$1,49 \times 10^2$	$4,90 \times 10^{-2}$	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
^{213}Bi	$3,07 \times 10^{-11}$	$4,89 \times 10^{-11}$	$1,80 \times 10^{-9}$	$1,77 \times 10^{-7}$	$1,41 \times 10^{-5}$	$3,28 \times 10^{-4}$	$7,36 \times 10^{-4}$	$3,73 \times 10^{-5}$
^{214}Bi	$1,31 \times 10^{-12}$	$8,30 \times 10^{-12}$	$1,34 \times 10^{-9}$	$4,91 \times 10^{-7}$	$2,25 \times 10^{-5}$	$1,78 \times 10^{-4}$	$4,59 \times 10^{-3}$	$1,48 \times 10^{-5}$
^{233}Pa	$3,06 \times 10^{-4}$	$3,07 \times 10^{-4}$	$3,11 \times 10^{-4}$	$3,31 \times 10^{-4}$	$3,36 \times 10^{-4}$	$3,27 \times 10^{-4}$	$2,44 \times 10^{-6}$	$1,32 \times 10^{-5}$
^{239}Np	$5,03 \times 10^{-3}$	$5,03 \times 10^{-3}$	$4,99 \times 10^{-3}$	$4,60 \times 10^{-3}$	$2,03 \times 10^{-3}$	$5,84 \times 10^{-7}$	$5,69 \times 10^{-11}$	$3,89 \times 10^{-11}$
^{243}Am	$6,86 \times 10^{-2}$	$6,85 \times 10^{-2}$	$6,80 \times 10^{-2}$	$6,26 \times 10^{-2}$	$2,77 \times 10^{-2}$	$7,96 \times 10^{-6}$	$7,76 \times 10^{-10}$	$5,30 \times 10^{-10}$
T_1	$2,53 \times 10^3$	$4,21 \times 10^2$	$4,08 \times 10^1$	$8,04 \times 10^{-3}$	$7,55 \times 10^{-3}$	$4,05 \times 10^{-3}$	$1,61 \times 10^{-5}$	$5,55 \times 10^{-6}$
T_2	$7,47 \times 10^{-2}$	$7,45 \times 10^{-2}$	$7,34 \times 10^{-2}$	$6,76 \times 10^{-2}$	$3,01 \times 10^{-2}$	$9,00 \times 10^{-4}$	$1,11 \times 10^{-3}$	$7,19 \times 10^{-5}$
T_3	$3,51 \times 10^2$	$1,01 \times 10^2$	$7,41 \times 10^{-4}$	$2,72 \times 10^{-5}$	$2,54 \times 10^{-5}$	$2,29 \times 10^{-5}$	$1,63 \times 10^{-5}$	$3,00 \times 10^{-6}$
TOTAL	$2,86 \times 10^3$	$5,22 \times 10^2$	$4,09 \times 10^1$	$7,57 \times 10^{-2}$	$3,77 \times 10^{-2}$	$4,97 \times 10^{-3}$	$1,14 \times 10^{-3}$	$8,05 \times 10^{-5}$

Tabela A4 - Neutrons emitidos em reações n,n, no rejeito radioativo, em neutrons/segundo, em função do tempo depois do reprocessamento. tempo em anos

Nuclídeo	1	10	10 ²	10 ³	10 ⁴	10 ⁵	10 ⁶	10 ⁷
210Po	6,05x10 ⁻⁹	2,15x10 ⁻⁷	1,17x10 ⁻⁴	8,57x10 ⁻²	3,92	3,10x10 ¹	8,01	2,57
214Po	8,85x10 ⁻⁷	5,58x10 ⁻⁶	8,99x10 ⁻⁴	3,31x10 ⁻¹	1,51x10 ¹	1,20x10 ²	3,09x10 ¹	9,93
217At	5,66x10 ⁻⁵	9,00x10 ⁻⁵	3,32x10 ⁻³	3,25x10 ⁻¹	2,60x10 ¹	6,04x10 ²	1,35x10 ³	6,90x10 ¹
218Po	3,83x10 ⁻⁷	2,42x10 ⁻⁶	3,89x10 ⁻⁴	1,43x10 ⁻¹	6,55	5,18x10 ¹	1,34x10 ¹	4,30
222Rn	2,60x10 ⁻⁷	1,64x10 ⁻⁶	2,64x10 ⁻⁴	9,73x10 ⁻²	4,45	3,52x10 ¹	9,09	2,92
225Ac	2,73x10 ⁻⁵	4,34x10 ⁻⁵	1,60x10 ⁻⁵	1,57x10 ⁻¹	1,25x10 ¹	2,92x10 ²	6,52x10 ²	3,33x10 ¹
230Th	1,64x10 ⁻⁴	2,86x10 ⁻⁴	1,01x10 ⁻²	3,29x10 ⁻¹	3,40	2,09x10 ¹	5,40	1,74
238Pu	1,49x10 ⁵	1,71x10 ⁵	9,02x10 ⁴	2,30x10 ²	5,36x10 ⁻¹⁶	0,0	0,0	0,0
239Pu	2,52x10 ³	2,53x10 ³	2,59x10 ³	3,13x10 ³	5,90x10 ³	8,16x10 ²	2,84x10 ⁻⁴	1,94x10 ⁻⁴
240Pu	4,01x10 ³	6,41x10 ³	1,20x10 ⁴	1,11x10 ⁴	4,40x10 ³	4,32x10 ⁻¹	2,98x10 ⁻⁶	3,27x10 ⁻⁶
241Am	3,12x10 ⁵	3,19x10 ⁵	2,94x10 ⁵	7,02x10 ⁵	2,46x10 ²	1,37x10 ⁻¹	0,0	0,0
242Cm	9,74x10 ⁶	2,00x10 ⁴	1,33x10 ⁴	2,19x10 ²	3,28x10 ⁻¹⁶	0,0	0,0	0,0
243Am	4,52x10 ⁴	4,52x10 ⁴	4,48x10 ⁴	4,13x10 ⁴	1,83x10 ⁴	5,25	5,11x10 ⁻⁴	3,50x10 ⁻⁴
243Cm	9,33x10 ³	7,68x10 ³	1,09x10 ³	3,73x10 ⁻⁶	0,0	0,0	0,0	0,0
244Cm	4,70x10 ⁶	3,33x10 ⁶	1,06x10 ⁵	1,27x10 ⁻¹⁰	1,35x10 ⁻¹⁰	1,24x10 ⁻⁹	5,93x10 ⁻⁹	6,40x10 ⁻⁹
245Cm	4,54x10 ²	4,54x10 ²	4,51x10 ²	4,18x10 ²	1,96x10 ²	1,03x10 ⁻¹	0,0	0,0
246Cm	1,02x10 ²	1,02x10 ²	1,00x10 ²	8,79x10 ¹	2,34x10 ¹	4,14x10 ⁻⁵	0,0	0,0
T	1,50x10 ⁷	3,90x10 ⁶	5,66x10 ⁵	1,27x10 ⁵	2,97x10 ⁴	4,35x10 ³	6,54x10 ³	3,66x10 ²

Tabela A5 - Neutrons emitidos em fissões espontâneas, no rejeito radioativo, em neutrons/segundo, em função do tempo depois do reprocessamento.

Nuclídeo	tempo em anos						
	10	10^2	10^3	10^4	10^5	10^6	10^7
^{238}Pu	$1,04 \times 10^4$	$1,19 \times 10^4$	$6,27 \times 10^3$	$1,60 \times 10^1$	$3,72 \times 10^{-17}$	0,0	0,0
^{240}Pu	$1,08 \times 10^4$	$1,73 \times 10^4$	$3,24 \times 10^4$	$3,00 \times 10^4$	$1,19 \times 10^4$	$1,17 \times 10^4$	$8,07 \times 10^{-6}$
^{242}Cm	$1,98 \times 10^7$	$4,08 \times 10^4$	$2,70 \times 10^4$	$4,46 \times 10^2$	$6,68 \times 10^{-16}$	0,0	0,0
^{242}Pu	$3,25 \times 10^3$	$3,27 \times 10^3$	$3,38 \times 10^3$	$3,61 \times 10^3$	$3,77 \times 10^3$	$3,27 \times 10^3$	$6,30 \times 10^2$
^{264}Cm	$2,75 \times 10^8$	$1,95 \times 10^8$	$6,19 \times 10^6$	$7,44 \times 10^{-9}$	$7,89 \times 10^{-9}$	$7,23 \times 10^{-8}$	$3,46 \times 10^{-7}$
^{246}Cm	$1,60 \times 10^6$	$1,59 \times 10^6$	$1,57 \times 10^6$	$1,38 \times 10^6$	$3,66 \times 10^5$	$6,49 \times 10^{-1}$	$1,24 \times 10^{-23}$
^{248}Cm	$5,82 \times 10^3$	$5,82 \times 10^3$	$5,82 \times 10^3$	$5,81 \times 10^3$	$5,70 \times 10^3$	$4,76 \times 10^3$	$8,12 \times 10^2$
TOTAL	$2,96 \times 10^8$	$1,96 \times 10^8$	$7,84 \times 10^6$	$1,42 \times 10^6$	$3,88 \times 10^5$	$8,05 \times 10^3$	$1,44 \times 10^3$

Tabela A6 - Quantidade de calor produzido, em watts, no rejeito radioativo, em função do tempo depois do reprocessamento.

Nuclídeos	Tempo em anos							
	1	10	10 ²	10 ³	10 ⁴	10 ⁵	10 ⁶	10 ⁷
⁹⁰ Sc	1,00x10 ²	8,01x10 ¹	8,69	1,98x10 ⁻⁹	0,0	0,0	0,0	0,0
⁹⁰ Y	4,49x10 ²	3,60x10 ¹	3,91x10 ¹	8,50x10 ⁻⁹	0,0	0,0	0,0	0,0
⁹⁹ Tc	9,70x10 ⁻³	9,70x10 ⁻³	9,70x10 ⁻³	9,67x10 ⁻³	9,39x10 ⁻³	7,00x10 ⁻³	3,69x10 ⁻⁴	6,11x10 ⁻¹⁷
¹⁰⁶ Rh	2,04x10 ³	4,10	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
¹²⁶ Sb	6,82x10 ⁻³	6,82x10 ⁻³	6,81x10 ⁻³	6,77x10 ⁻³	6,36x10 ⁻³	3,41x10 ⁻³	6,79x10 ⁻⁶	0,0
^{126-m} Sb	3,58x10 ⁻³	3,58x10 ⁻³	3,57x10 ⁻³	3,55x10 ⁻³	3,54x10 ⁻³	1,79x10 ⁻³	3,56x10 ⁻⁶	0,0
¹³⁴ Cs	1,56x10 ³	7,45x10 ¹	4,52x10 ⁻¹²	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
¹³⁷ Cs	1,70x10 ²	1,38x10 ²	1,73x10 ¹	1,61x10 ⁻⁸	0,0	0,0	0,0	0,0
^{137-m} Ba	3,83x10 ²	3,11x10 ²	3,88x10 ¹	3,61x10 ⁻⁸	0,0	0,0	0,0	0,0
¹⁴⁴ Pr	2,41x10 ³	7,90x10 ⁻¹	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
²¹⁰ Po	1,16x10 ⁻¹³	4,13x10 ⁻¹²	2,25x10 ⁻⁹	1,65x10 ⁻⁶	7,53x10 ⁻⁵	5,96x10 ⁻⁴	1,54x10 ⁻⁴	4,9x10 ⁻⁵
²¹³ Po	5,90x10 ⁻¹⁰	9,17x10 ⁻¹⁰	3,45x10 ⁻⁸	3,39x10 ⁻⁶	2,71x10 ⁻⁴	6,30x10 ⁻³	1,41x10 ⁻²	7,19x10 ⁻⁴
²¹⁴ Bi	1,95x10 ⁻¹²	1,23x10 ⁻¹¹	1,98x10 ⁻⁹	7,28x10 ⁻⁷	3,33x10 ⁻⁵	2,63x10 ⁻⁴	6,80x10 ⁻⁵	2,19x10 ⁻⁵
²¹⁸ Po	5,07x10 ⁻¹²	3,20x10 ⁻¹¹	5,15x10 ⁻¹⁹	1,89x10 ⁻⁶	8,67x10 ⁻⁵	6,85x10 ⁻⁴	0,0	0,0
²²⁹ Th	3,67x10 ⁻¹⁰	5,83x10 ⁻¹⁰	2,15x10 ⁻⁸	2,11x10 ⁻⁶	1,69x10 ⁻⁴	3,97x10 ⁻³	8,77x10 ⁻³	4,47x10 ⁻⁴
²³⁹ Pu	5,01x10 ⁻²	5,02x10 ⁻²	5,14x10 ⁻²	6,21x10 ⁻²	1,17x10 ⁻¹	1,62x10 ⁻²	5,64x10 ⁻⁹	3,86x10 ⁻⁹
²⁴⁰ Pu	7,91x10 ⁻²	1,26x10 ⁻¹	2,76x10 ⁻¹	2,19x10 ⁻¹	8,69x10 ⁻²	8,53x10 ⁻⁶	5,89x10 ⁻¹¹	6,36x10 ⁻¹¹
²⁴³ Cm	1,19x10 ⁻¹	9,77x10 ⁻²	1,39x10 ⁻²	4,74x10 ⁻¹¹	0,0	0,0	0,0	0,0
²⁴³ Am	5,86x10 ⁻¹	5,86x10 ⁻¹	5,81x10 ⁻¹	5,35x10 ⁻¹	2,37x10 ⁻¹	6,80x10 ⁻⁵	6,63x10 ⁻⁹	4,51x10 ⁻⁹
T ₁	7,61x10 ³	1,01x10 ³	1,06x10 ²	2,22x10 ⁻²	2,05x10 ⁻²	1,32x10 ⁻²	8,80x10 ⁻⁴	3,92x10 ⁻⁵
T ₂	2,00x10 ²	5,76x10 ¹	9,00	2,02	4,73x10 ⁻¹	6,27x10 ⁻²	7,64x10 ⁻²	4,46x10 ⁻³
T ₃	4,08x10 ²	1,10x10 ²	1,07x10 ⁻¹	2,71x10 ⁻⁴	1,24x10 ⁻⁴	8,06x10 ⁻⁵	4,00x10 ⁻⁵	4,06x10 ⁻⁶
TOTAL	8,22x10 ³	1,18x10 ³	1,15x10 ²	2,04	4,94x10 ⁻¹	2,60x10 ⁻²	7,73x10 ⁻²	4,50x10 ⁻³

APÊNDICE B

No apêndice B, apresentamos as tabelas contendo os valores dos volumes de rejeito colocados nos diagramas do capítulo V.

Tabela B1 - Volume de rejeito produzido na Usina de Conversão a UF₆ - Processo "Wet".

TEMPO EM (ANOS)	VOLUME (m ²)
1985	292
1986	637
1987	1036
1988	1648
1989	2366
1990	3511
1991	5029
1992	6814
1993	8865
1994	11183
1995	13767
1996	16617
1997	19894
1998	23491
1999	27408
2000	31644
2001	36040
2002	40703
2003	45792
2004	51201
2005	57090
2006	63512
2007	70360
2008	77794
2009	85868
2010	94475

Tabela B2 - Volume do rejeito produzido na Usina de Conversão a UF_6 - Processo "Dry".

TEMPO EM (ANOS)	VOLUME (m^3)
1985	635
1986	1430
1987	2325
1988	3698
1989	5311
1990	7880
1991	11286
1992	15291
1993	19893
1994	25093
1995	30892
1996	37288
1997	44641
1998	52712
1999	61501
2000	71007
2001	80871
2002	91334
2003	102754
2004	114891
2005	128105
2006	142515
2007	157881
2008	174563
2009	192680
2010	211993

Tabela B3 - Volume do rejeito produzido na Usina de Enriquecimento - Difusão Gasosa.

TEMPO EM (ANOS)	VOLUME (m ³)
1985	2
1986	4
1987	6
1988	10
1989	14
1990	21
1991	30
1992	40
1993	52
1994	66
1995	81
1996	98
1997	117
1998	138
1999	161
2000	186
2001	212
2002	240
2003	270
2004	301
2005	336
2006	374
2007	414
2008	458
2009	506
2010	556

Tabela B4 - Volume do rejeito produzido na fabricação dos elementos combustíveis

TEMPO EM (ANOS)	VOLUME (m ³)
1985	206
1986	451
1987	733
1988	1165
1989	1674
1990	2484
1991	3557
1992	4820
1993	6270
1994	7910
1995	9737
1996	1175
1997	14071
1998	16616
1999	19386
2000	22382
2001	25492
2002	28790
2003	32389
2004	36215
2005	40380
2006	44923
2007	49766
2008	55025
2009	60736
2010	66824

Tabela B5 - Volume dos elementos combustíveis irradiados

TEMPO EM (ANOS)	VOLUME (m ³)
1980	21
1981	43
1982	65
1983	87
1984	155
1985	222
1986	335
1987	493
1988	697
1989	947
1990	1287
1991	1718
1992	2332
1993	3173
1994	4241
1995	5537
1996	7060
1997	8811
1998	10790
1999	13041
2000	15566
2001	18318
2002	21297
2003	24504
2004	27938
2005	31646
2006	35626
2007	39925
2008	44588
2009	49615
2010	55051

Tabela B6 - Volume do rejeito produzido na Usina Nuclear

TEMPO EM (ANOS)	VOLUME (m ³)
1980	274
1981	549
1982	824
1983	1099
1984	1944
1985	2790
1986	4206
1987	6193
1988	8751
1989	11879
1990	16149
1991	21560
1992	29254
1993	39801
1994	53202
1995	69456
1996	88564
1997	110526
1998	135341
1999	163580
2000	195243
2001	229760
2002	267131
2003	307354
2004	350432
2005	396933
2006	446859
2007	500780
2008	559266
2009	622318
2010	690506

Tabela B7 - Volume do rejeito de baixa atividade
produzido na Usina de Reprocessamento

TEMPO EM (ANOS)	VOLUME (m ³)
1995	4
1996	8
1997	13
1998	17
1999	31
2000	44
2001	67
2002	98
2003	139
2004	189
2005	257
2006	343
2007	466
2008	634
2009	848
2010	1107

Tabela B8 - Volume do rejeito de alta atividade produzido
na Usina de Reprocessamento - dados americanos-

TEMPO EM (ANOS)	VOLUME (m ³)
1995	5
1996	10
1997	15
1998	20
1999	35
2000	50
2001	76
2002	112
2003	159
2004	216
2005	294
2006	392
2007	533
2008	725
2009	969
2010	1265

Tabela B9 - Volume do rejeito de alta atividade produzido
na Usina de Reprocessamento - dados alemães -

TEMPO EM (ANOS)	VOLUME (m ³)
1995	2
1996	4
1997	6
1998	8
1999	14
2000	20
2001	30
2002	44
2003	63
2004	86
2005	117
2006	156
2007	213
2008	290
2009	387
2010	506

Tabela B10 - Volume do rejeito contaminado com elementos transurânicos produzidos na Usina de Reprocessamento

TEMPO EM (ANOS)	VOLUME (m ³)
1995	27
1996	55
1997	82
1998	110
1999	194
2000	279
2001	421
2002	620
2003	877
2004	1190
2005	1618
2006	2160
2007	2932
2008	3989
2009	5332
2010	6961

Tabela B11 - Volume do projeto contaminado com Pu produzido na Usina de Reprocessamento

TEMPO EM (ANOS)	VOLUME (m ³)
1995	3
1996	7
1997	11
1998	15
1999	26
2000	38
2001	57
2002	84
2003	119
2004	162
2005	220
2006	294
2007	399
2008	543
2009	727
2010	949