

ESTUDO DE MATERIAIS PARA USO EM DEPÓSITOS FINAIS DE REJEITOS RADIOATIVOS

A. F. Amaral¹ & C. C. O. Tello²

^{1,2}Comissão Nacional de Energia Nuclear / Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear, Laboratório de Cimentação - LABCIM, Avenida Antônio Carlos, 6627, Pampulha, CEP: 30161-970, Belo Horizonte, Minas Gerais, Brasil.

¹Rua Prof. Estevão Pinto 637 apto 1003, Serra. CEP: 30220-060, Belo Horizonte, Minas Gerais, Brasil. Email: marau666@hotmail.com

RESUMO

Argila é utilizada em repositórios (depósitos finais de rejeitos radioativos) devido a sua capacidade de sorção de radionuclídeos e de impermeabilização do solo. Os objetivos deste trabalho são pesquisar e implementar testes de caracterização pertinentes a utilização de argilas em repositórios, além de caracterizar argilas nacionais e implantar um banco de dados com informações de seus fornecedores e resultados obtidos nos testes realizados. Apresentam-se os resultados dos testes para identificação dos constituintes minerais, determinação da curva compactação em função da umidade, distribuição granulométrica, capacidade de troca catiônica, superfície específica, entre outros, de dois materiais. Tais informações possibilitarão selecionar entre estes materiais o melhor para a utilização no repositório nacional e em outras aplicações, além de indicar os testes mais confiáveis para estimar as características de diferentes materiais.

Palavras-chave: Argilas, Materiais, Camada de Recheio, Repositório, Contaminantes.

INTRODUÇÃO

Deposição é a colocação de rejeito radioativo, sem a intenção de removê-lo, em local selecionado e construído para este fim, o repositório. Na sua construção adota-se o conceito de múltiplas barreiras, utilizadas para isolar o rejeito e prevenir a migração dos radionuclídeos para o meio ambiente. A camada de recheio age como uma barreira impermeável e sorvedora de radionuclídeos ⁽¹⁾.

A camada de recheio deve possuir uma série de características químicas e de engenharia para que o seu uso seja efetivo ⁽²⁾. Entre as características de engenharia estão: habilidade de evitar a migração do recipiente contendo o resíduo, habilidade de conduzir o calor do decaimento para longe do recipiente, fornecer baixa permeabilidade hidráulica, reter um alto potencial de expansão e possuir uma alta eficiência de compactação. Entre as características químicas estão: habilidade de retardar o transporte de nuclídeos e de manter a água que infiltra em um estado reduzido (ao não reagir com ela).

Argilas, que são constituídas principalmente por areia e argilominerais, são utilizadas na camada de recheio por cumprirem bem os requerimentos do conjunto de propriedades enunciadas acima. Enquanto a areia é responsável pelas altas condutividade térmica e resistência mecânica os argilominerais conferem a capacidade de expansão, a baixa permeabilidade hidráulica e a habilidade de absorver radionuclídeos.

MATERIAIS E MÉTODOS

Este trabalho foi realizado em seis etapas: pesquisa de características e propriedades das argilas, busca de fornecedores nacionais de argilas, obtenção de amostras dos fornecedores, estudo de métodos de caracterização das amostras, caracterização das amostras e construção de uma tabela com os resultados obtidos.

Argilas e outros materiais semelhantes foram obtidos de diversos fornecedores nacionais, entre produtores, centros industriais e/ou tecnológicos. Na Tabela 1 apresentam-se os nomes dos fornecedores e dos produtos, além do código de identificação destes. Alguns desses materiais não possuem identificação, pois tal processo só foi adotado a partir de um determinado ponto, a partir do qual estes materiais (antigos e sem código) já não seriam mais testados. À alguns materiais foi atribuído um código mais provável, já que os registros não eram completos.

Tabela 1. Argilas e fornecedores nacionais

Argilas	Fornecedores
Argila EPB 1 (ALI-E0005/06)	Aligra Ind. e Com. de Argila Ltda.
Argila EPB 2 (ALI-E0006/06)	
Bentonita Argel CN40 (BNT-E0007/06)	Bentonit União Nordeste Ind. e Com. Ltda.
Bentonita Brasgel NT25 (BNT-E0008/06)	
Bentonita Brasgel FF (BNT-E0009/06)	
Bentonita Argel CN10 (BNT-E0010/06)	
Vermiculita Vermifloc 4B (VFL-E0001)	Brasil Minérios Ltda.
Vermiculita Vermifloc (VFL-E0002)	
Bentonita cálcica Dolomil (DOL-E0001/06)	Dolomil Industrial Ltda.
Bentonita sódica Dolomil (DOL-E0002/06)	
Vermiculita Eucatex médio (EUC-E0001)	Eucatex Química e Mineral Ltda.
Bentonita Fundipol	Mineração Antônio Mendes
Argila marrom Inducal (IND-E0001/06)	Inducal - Indústria de Calcários Caçapava
Argila cinza Inducal (IND-E0002/06)	
Argila preta Inducal (IND-E0003/06)	
Argila Nigri malha 40(NIG-E0001)	Joseph Nigri
Argila Nigri malha 60 (NIG-E0002)*	
Argila Paolo Comini (PAC-E0001)	Paolo Comini
Bentonita sódica M.200 (RBR-E0001/98)*	Refratários Brasil
Bentonita branca M. 200 (RBR-E0002/98)	
Argila Pasek escura (nova) (PSK-E0001)	Refratários Pasek Ltda.
Argila Pasek clara (nova) (PSK-E0002)*	
Argila Pasek Argiflex 100 (antiga)	
Bentonita sódica UBM (UBM-E0001/98)	União Brasileira de Mineração (Mineração Pedra Lavada)
Vermiculita fina(UBM-E0003/06)	
Vermiculita super-fina (UBM-E0004/06)	
Vermiculita crua (MPL-E0005/07)	
Vermiculita expandida (MPL-E0006/07)	
Vermiculita Izo-Flok	Vermiculita Isolantes Termo-Acústicos Ltda. (Mineração Phoenix Ltda.)

*: Identificação mais provável.

Após a determinação da composição mineral selecionaram-se para testes somente os materiais considerados argilas, uma vez que se constatou que alguns não o eram. Além disso, devido à flutuação da disponibilidade de vários dos materiais no mercado decidiu-se dar um maior enfoque no desenvolvimento dos testes que na implementação do banco de dados. Assim que os testes forem estabelecidos espera-se que a montagem do banco de dados seja relativamente rápida.

Em trabalhos passados foram abordados temas como: produção e consumo de argila no Brasil, estruturas e características dos diferentes materiais, testes estabelecidos e testes que ainda serão pesquisados. Dar-se-á um enfoque parcial na continuação da pesquisa, abordando-se o teste de caracterização granulométrica, e serão apresentados alguns resultados anteriores. Dentre os testes e resultados discutidos e apresentados anteriormente estão: determinação da composição mineral, determinação do conteúdo de umidade, da curva de compactação, da capacidade de troca catiônica (CTC), do conteúdo de matéria orgânica, da massa específica e do coeficiente de adsorção de Freundlich.

Composição mineral

O teste de fornece as principais fases (e as suas quantidades) do material. É feito antes de outros testes, para se determinar a possibilidade de uso de um material no sistema do repositório. Utilizou-se a difração de raios X, de acordo com o 'método do pó'.

Capacidade de troca catiônica (CTC)

Utilizou-se o método do cátion de azul de metileno para determinar a quantidade específica de cátions trocáveis (em miliequivalentes) para um material ⁽³⁾. A Figura 1 mostra o resultado do teste do toque para diferentes quantidades de solução, sendo as gotas do centro são as do final da titulação (gota com halo azul claro em volta). No futuro será implementado o teste com cátion amônio, devido a limitação do teste de azul de metileno quanto à determinação da CTC em vermiculitas.

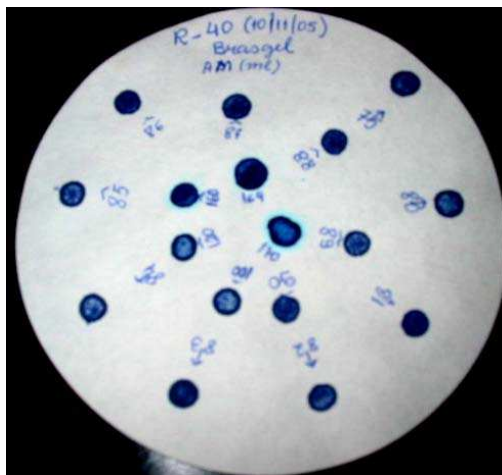


Figura 1. Resultado de um teste do toque ⁽⁴⁾.

Curva de compactação

A curva de compactação é determinada para um material através do teste de Proctor normal ⁽⁵⁾. Futuramente, testes com maiores energias de compactação serão elaborados, visando atingir restrições de valores de permissividade hidráulica no sistema do repositório.

Superfície específica

Determinou-se a superfície específica através do método de BET, através do aparelho Autosorb Nova, modelo 1200, da Quantachrome. Deve-se atentar para o fato de que este método não contabiliza as superfícies interlamelares de vermiculitas e montmorilonitas (bentonitas).

Distribuição granulométrica

Este teste fornece a distribuição dos tamanhos da população de partículas de um material. Utilizou-se o método com peneiras e agitadores ⁽⁶⁾. No futuro será implantado um método a base de ciclones.

Teor de umidade

O teor de umidade do solo foi determinado através de um equipamento digital, Halogen Moisture Analyzer HG53, da Mettler Toledo.

Teor de matéria orgânica

O teor de matéria orgânica foi determinado através da perda de massa do material seco submetido a uma temperatura de 400 °C. Este parâmetro influencia na CTC, na condutividade térmica do material, no teor de umidade, entre outros.

Massa específica

Este parâmetro é necessário para o cálculo do grau de saturação de um solo. Este teste foi baseado nos procedimentos publicados pela ASTM ⁽⁷⁾ e ABNT ⁽⁸⁾.

Coeficiente de adsorção de Freundlich

Determinou-se este coeficiente para os cátions Césio e Estrôncio, através do ensaio de equilíbrio em batelada ⁽⁹⁾.

RESULTADOS E DISCUSSÃO

Na Tabela 2 são apresentados alguns resultados de testes para duas argilas, entre outras informações. Tais dados foram retirados do banco de dados que será futuramente completado, pois nem todos os testes foram realizados em todos os materiais. Dentre os materiais analisados até agora estes dois são os melhores candidatos para a utilização no repositório devido ao extenso conhecimento que já se possui de ambos, devido à presença de seus fornecedores no mercado e devido a natureza da interação que ocorre com estes produtos e os radionuclídeos no sistema de deposição, ainda que algumas de suas propriedades não tenham sido determinadas.

Tabela 2. Informações disponíveis de duas argilas ⁽¹⁰⁾.

Argila Característica	Bentonita Brasgel FF (BNT-E0009/06)	Vermiculita Super-Fina (UBM-E0004/06)
Fornecedor	Bentonit União	UBM - MPL
Local de armazenamento	LABCIM	LABCIM
Quantidade (kg)	1,3	0,3
Cor	Marrom-clara	Bege-escura
Mineral Predominante	Montmorillonita (>40%)	Vermiculita (>60%)
Umidade (% m/m)	12,0	8,8
Massa Específica (g/cm ³)	2,79±0,05	-
Matéria Orgânica (% m/m)	2,2±0,1	-
CTC (meq/100 g)	80	Não detectado
Superfície Específica (m ² /g)	75,7	3
Const. Freundlich - Césio	-	5,41E+06
Const. Freundlich - Estrôncio	-	7,47E+05
pH	10,4	6,2
Observações	Antiga 'Bentonita Brasgel' (BRG-E0001)	-

Pode-se perceber um ótimo de umidade em torno de 4% (massa de água por massa de argila), valor para o qual a energia de compactação fornece uma compactação máxima de 1,175 g/cm³. Anteriormente o teste foi realizado com valores maiores de umidade, para os quais se achou um outro máximo. Acredita-se que tal fenômeno foi causado pela presença acentuada de sílica no material, além

de montmorilonita, sendo cada um destes responsável por um dos máximos de massa específica seca.

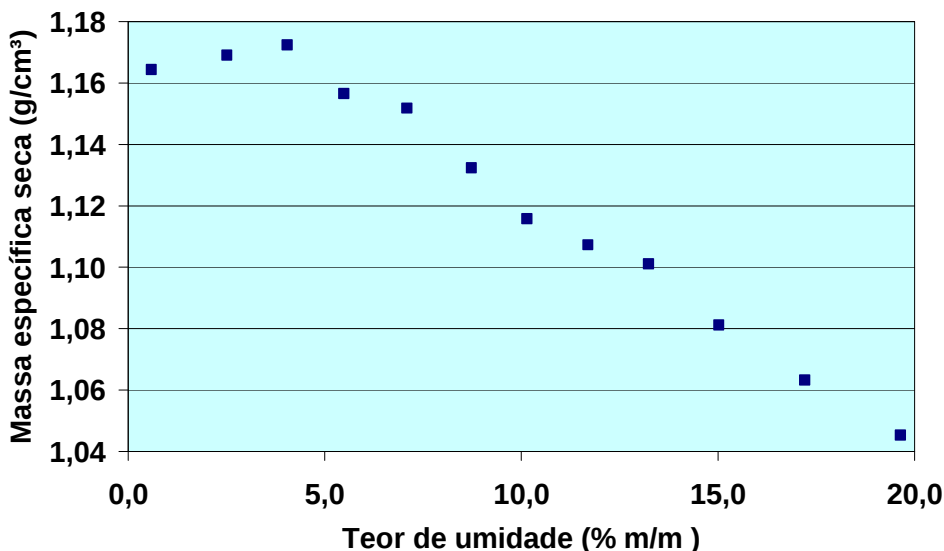


Figura 2.a. Curva de compactação (esforço normal) da bentonita Brasgel FF.

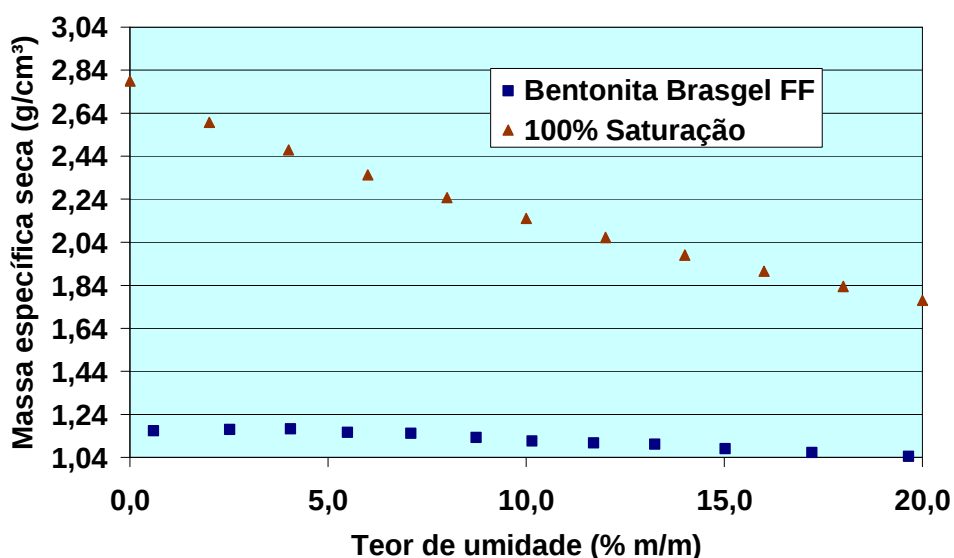


Figura 2.b. Curvas de compactação e saturação da bentonita Brasgel FF.

Os valores da permissividade hidráulica podem ser previstos baseados na saturação do solo. Assim, para garantir menores valores de permissividade deve-se obter um solo com uma maior taxa de saturação. Tais valores baixos implicam em uma menor velocidade de migração de radionuclídeos, o que aumenta as margens de segurança do projeto. Por outro lado este aumento na compactação acarreta um custo adicional que deve ser levado em consideração no projeto de construção do repositório.

Nas Figuras 3.a e 3.b são apresentadas as distribuições granulométricas da bentonita Brasgel FF e a vermiculita Super-Fina, respectivamente. A legenda 'LABCIM' e 'Moderno' indica o agitador utilizado no teste, parâmetro este que verificou-se não influenciar no resultado do teste. A vermiculita, por possuir partículas maiores, não gera um entupimento nas peneiras, permitindo que a análise ocorra de modo reproduzível e confiável. Já com a bentonita, a existência de partículas com tamanhos da ordem de (e menores que) $1\ \mu$ impede tal reprodutibilidade e exatidão do teste devido a este efeito.

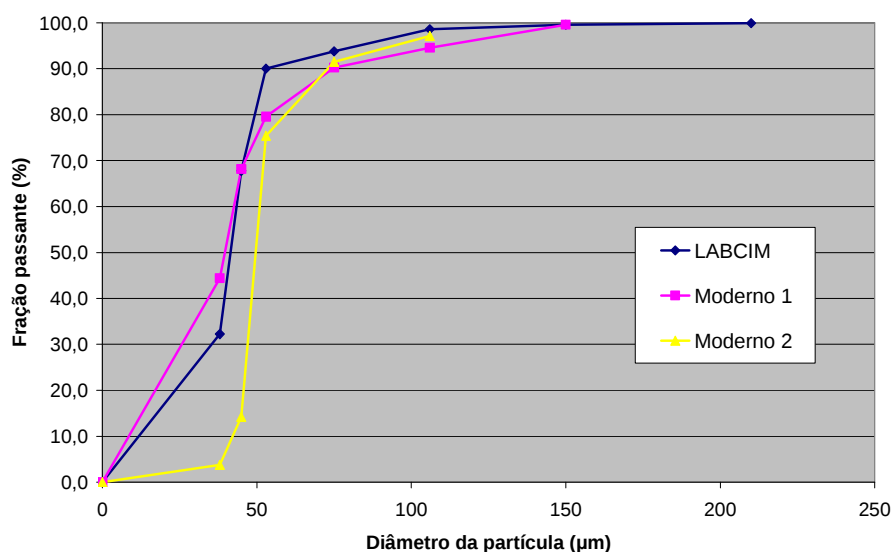


Figura 3.a. Distribuição granulométrica (bentonita Brasgel FF).

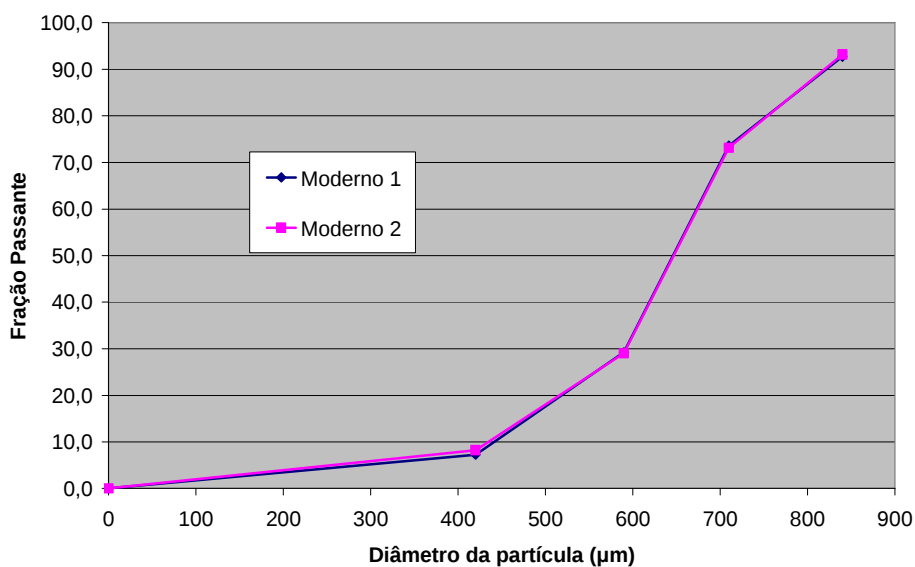


Figura 3.b. Distribuição granulométrica (vermiculita Super-Fina).

No caso de materiais finos o levantamento de tal gráfico deve ser feito com o uso de centrífugas ou aparelhos semelhantes. O cálculo dos diâmetros das frações passantes em centrífugas envolve valores de densidade dos componentes constituintes do material (sílica, argilominerais, etc), assim, é necessário quantificar as fases desses componentes.

O teste com peneiras, quando realizado à úmido (através do deslamamento), gasta uma grande quantidade de tempo, além de ser pouco prático e reprodutível. Deve-se sempre utilizar uma quantidade adequada de material (menor quantidade para materiais mais finos), além de uma série adequada de peneiras (visando a separação do material em faixas granulométricas).

CONCLUSÃO

Os objetivos deste trabalho são pesquisar e implantar testes de caracterização pertinentes a utilização de argilas em repositórios, além de caracterizar argilas nacionais e desenvolver um banco de dados com informações de seus fornecedores e resultados obtidos nos testes realizados. Devido à flutuação da disponibilidade de vários dos materiais no mercado decidiu-se dar um maior enfoque no desenvolvimento dos testes que na implementação do banco de dados. No estado atual da pesquisa, os materiais mais indicados para a utilização no repositório são a vermiculita Super-Fina (UBM-E0004/06) e a bentonita Brasgel (BNT-E0009/06), devido ao extenso conhecimento que já se possui de ambos, devido à presença de seus fornecedores no mercado e devido a natureza da interação que ocorre com estes produtos e os radionuclídeos no sistema de deposição, ainda que algumas de suas propriedades não tenham sido determinadas.

Atualmente existem 10 testes estabelecidos: inspeção visual, determinação da composição mineral, determinação da curva de compactação, CTC, distribuição granulométrica, teor de umidade e matéria orgânica, superfície específica, massa específica e determinação do coeficiente de sorção. No futuro as informações obtidas nestes testes possibilitarão a escolha do melhor material para o uso na camada de recheio do repositório, assim como em muitas outras aplicações.

AGRADECIMENTOS

A Clédola Cássia Oliveira De Tello pela orientação, à FAPEMIG pela bolsa de estudos, ao CDTN pela local de trabalho, ao pessoal do LABCIM pela ajuda com os testes e à todos que contribuíram para a coleta de dados que tornou este trabalho possível.

REFERENCIAS

- (1) TELLO, C.C.O. **Uso de Materiais Naturais no Tratamento de Rejeitos**. 1980, 175p. Tese (Especialização em Tecnologia Nuclear - Materiais) - Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear, CDTN-CNEN/MG, Belo Horizonte.
- (2) JAN, Y.-L.; TSAI, S.-C.; CHENG, H.-P.; HSU, C.-N. Evaluation of buffer materials by associating engineering and sorption properties. **Applied Radiation and Isotopes**, v. 61, n. 6, p.1163–1172, 2004.
- (3) ASTM. C 837 - Standard Test Method for Methylene Blue Index of Clay. Philadelphia: ASTM, 1990.
- (4) FREIRE, C.B. **Estudo de Sorção de Césio e Estrôncio em Argilas Nacionais para sua Utilização como Barreira em Repositórios de Rejeitos Radioativos**. 2007, 105p. Tese (Mestrado em Geoquímica e Geologia em Recursos Minerais e Meio Ambiente) - Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear, CDTN-CNEN/MG, Belo Horizonte.
- (5) CDTN. Ensaio de compactação. Belo Horizonte: CDTN, 2007.
- (6) CDTN. Análise granulométrica de minérios. Belo Horizonte: CDTN, 2001.
- (7) ASTM. D 854 - Standard Test Method for Specific Gravity of Soils. Philadelphia: ASTM, 1992.
- (8) ABNT. NBR 6508 - Grãos de solos que passam na peneira de 4,8 mm - Determinação da massa específica. Rio de Janeiro: ABNT, 1984.
- (9) EPA. Technical Resource Document: Batch-type Procedures for estimating soil adsorption of chemicals. Washington, DC: EPA, 1992.
- (10) AMARAL, A.F.; TELLO, C.C.O.; Estudo de materiais para uso em camada de recheio em repositórios. In: 4th International Nuclear Atlantic

Conference, Rio de Janeiro, RJ, 2009. **Anais...** Rio de Janeiro: ABEN, 2009, INAC 2009 DVD.

STUDY OF MATERIALS FOR USE IN FINAL DEPOSITS OF RADIOACTIVE WASTE

ABSTRACT

Clays are used in repositories (final deposits of radioactive waste) due to their radionuclide sorption and soil waterproofing capacities. The objectives of this work are to research and develop tests of characterization relevant to the use of clays in repositories, to characterize national clays and to assemble a database with information on the suppliers and the tests that were done. Results are shown for the mineral identification test, for the determination of the normal Proctor compaction curve, size distribution, cationic exchange capacity, specific surface, and others, for two materials. Such information will allow the selection of the best among these materials for use in the backfill and in other applications, besides indicating the most reliable test for estimating characteristics of different materials.

Key-words: Clays, Buffer Materials, Backfill, Repository, Contaminants.