



AVALIAÇÃO NUMÉRICA DO TRANSPORTE DE RADIONUCLÍDEOS EM ROCHA FRATURADA

Claudia Siqueira da Silveira

Tese de Doutorado apresentada ao Programa de Pós-graduação em Engenharia Nuclear, COPPE, da Universidade Federal do Rio de Janeiro, como parte dos requisitos necessários à obtenção do título de Doutor em Engenharia Nuclear.

Orientador: Antonio Carlos Marques Alvim

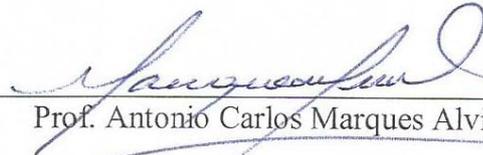
Rio de Janeiro
Novembro de 2013

AVALIAÇÃO NUMÉRICA DO TRANSPORTE DE RADIONUCLÍDEOS EM
ROCHA FRATURADA

Claudia Siqueira da Silveira

TESE SUBMETIDA AO CORPO DOCENTE DO INSTITUTO ALBERTO LUIZ
COIMBRA DE PÓS-GRADUAÇÃO E PESQUISA DE ENGENHARIA (COPPE) DA
UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO DE JANEIRO COMO PARTE DOS
REQUISITOS NECESSÁRIOS PARA A OBTENÇÃO DO GRAU DE DOUTOR EM
CIÊNCIAS EM ENGENHARIA NUCLEAR.

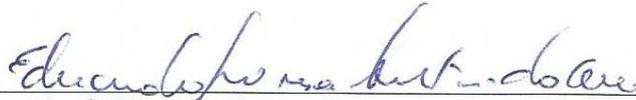
Examinada por:



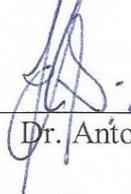
Prof. Antonio Carlos Marques Alvim, Ph.D.



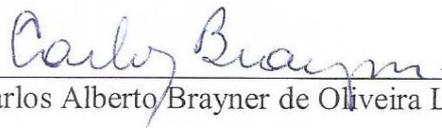
Prof. Paulo Fernando Ferreira Frutuoso e Melo, D.Sc.



Prof. Eduardo Gomes Dutra do Carmo, D.Sc.



Dr. Antonio Carlos de Abreu Mól, D.Sc.



Prof. Carlos Alberto Brayner de Oliveira Lira, Ph.D.

RIO DE JANEIRO, RJ - BRASIL

NOVEMBRO DE 2013

Silveira, Claudia Siqueira da

Avaliação Numérica do Transporte de Radionuclídeos em Rocha Fraturada/ Claudia Siqueira da Silveira. – Rio de Janeiro: UFRJ/COPPE, 2013.

XV, 127 p.: il.; 29,7 cm.

Orientador: Antonio Carlos Marques Alvim

Tese (doutorado) – UFRJ/ COPPE/ Programa de Engenharia Nuclear, 2013.

Referências Bibliográficas: p. 120-127.

1. Migração de radionuclídeos. 2. Método de diferenças finitas. I. Alvim, Antonio Carlos Marques. II. Universidade Federal do Rio de Janeiro, COPPE, Programa de Engenharia Nuclear. III. Título.

*An electron, while traveling in space,
met a positron there "face-to-face".
The electron then sighed,
at the sight of his bride
and they "died" in a loving embrace.*

-W. Rolnick

AGRADECIMENTOS

Ao professor Antonio Carlos Marques Alvim, pela oportunidade que me deu ao orientar-me neste trabalho; pelo carinho, confiança e amizade que posso dizer: *meu Mestre*.

Ao corpo docente da Engenharia Nuclear da COPPE/UFRJ, com os quais tive a satisfação de muito aprender nestes anos.

A todos os funcionários do programa de Engenharia Nuclear da COPPE.

À Banca pelo tempo disponibilizado para avaliação do trabalho e pelas sugestões para o aprimoramento da tese.

Aos amigos que trilharam mais este caminho ao meu lado, às vezes perto, às vezes longe. Aos antigos e aos novos que tive o prazer de conhecer.

À amiga Daniela Maiolino Norberto Santiago pela inestimável amizade e que muito me ouviu nestes anos...

Às minhas crianças: George, Yasmin, Pedro e Yago. Neste momento, metade maior do que eu, mas mesmo assim, *meus miudinhos!!!*

Aos meus familiares.

Ao Cnpq pelo auxílio financeiro que possibilitou a realização deste trabalho.

A todos que de alguma forma contribuíram positivamente com este trabalho.

Resumo da Tese apresentada à COPPE/UFRJ como parte dos requisitos necessários para a obtenção do grau de Doutor em Ciências (D.Sc.)

AVALIAÇÃO NUMÉRICA DO TRANSPORTE DE RADIONUCLÍDEOS EM ROCHA FRATURADA

Claudia Siqueira da Silveira

Novembro/2013

Orientador: Antonio Carlos Marques Alvim

Programa: Engenharia Nuclear

Este trabalho desenvolve uma avaliação numérica do transporte de radionuclídeos em rocha fraturada, através de um código simplificado para a avaliação de desempenho da região *far field* de um repositório geológico profundo para rejeito radioativo de alta atividade, especificamente o combustível irradiado. Faz uso de um modelo conservativo de migração de radionuclídeos através da geosfera e dados reais de radionuclídeos em combustível irradiado do tipo PWR. Tal modelagem numérica foi desenvolvida em diferenças finitas e pode ser utilizada para efetuar uma análise preliminar de segurança, de forma a prever o comportamento dos radionuclídeos em estudo. A verificação da modelagem numérica com cadeia de decaimento foi realizada contra uma solução analítica da literatura. Os principais resultados quantitativos foram expressos como taxas de dose indicativas do consumo de água potável, taxas de liberações de atividade da cavidade de deposição para a geosfera e da geosfera para a biosfera e quantificação da massa transportada.

Abstract of Thesis presented to COPPE/UFRJ as a partial fulfillment of the requirements for the degree of Doctor of Science (D.Sc.)

NUMERICAL EVALUATION OF RADIONUCLIDE TRANSPORT IN
FRACTURED ROCK

Claudia Siqueira da Silveira

November/2013

Advisor: Antonio Carlos Marques Alvim

Department: Nuclear Engineering

This work develops a numerical evaluation of radionuclides transport in fractured rock through a simplified code for the performance evaluation of the far field region of a deep geological repository for high-level radioactive waste, specifically spent fuel, using a conservative model of radionuclide migration through the geosphere and real data of radionuclides in spent fuel from PWR. Such numerical modeling was developed in finite differences technique and can be used to perform a preliminary safety analysis, in order to predict the behavior of radionuclides in this study. The verification of this numerical model with decay chain was performed against an analytical solution of literature. The main quantitative results were expressed as indicative dose rates of drinking water consumption, activity releases rates from borehole deposition to geosphere and from geosphere into the biosphere and quantifying of transported mass.

ÍNDICE DO TEXTO

ÍNDICE DE FIGURAS.....	X
ÍNDICE DE TABELAS.....	XIV
ÍNDICE DE SIGLAS.....	XV
1 INTRODUÇÃO.....	01
1.1 Objetivo.....	08
1.2 Relevância e originalidade.....	09
2 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA.....	12
2.1 Rejeito de alta atividade, HLW (<i>High Level Waste</i>).....	12
2.2 Gerência de rejeitos radioativos.....	15
2.3 Partição e transmutação.....	18
2.4 Evolução da radiotoxicidade do combustível irradiado e HLW.....	20
2.4.1 Radiotoxicidade dos produtos de fissão.....	25
2.4.2 Acondicionamento avançados dos actínídeos menores.....	25
2.4.3 Transmutação dos actínídeos menores.....	26
2.5 Considerações sobre gerenciamento do rejeito de alta atividade.....	27
2.6 Repositório para rejeitos radioativos de alta atividade.....	31
2.6.1 Conceito de disposição geológica profunda.....	34
2.6.2 Modelo genérico para um repositório hipotético baseado no modelo KBS-3.....	35
2.7 Análogos naturais e arqueológicos.....	38

2.7.1	Análogos naturais.....	39
2.7.2	Análogo societal.....	40
2.8	Descrição de alguns trabalhos da literatura.....	41
3	METODOLOGIA.....	52
3.1	Descrição do modelo físico.....	52
3.2	Equações governantes.....	54
3.3	Método numérico.....	59
4	RESULTADOS.....	62
4.1	Resolução das Equações.....	62
4.2	Verificação do método numérico empregado com uma solução analítica.....	66
4.3	Cenário de liberação para a avaliação de desempenho.....	69
4.4	Ilustração numérica da avaliação de desempenho.....	76
4.5	Variação de massa de radioisótopos na cápsula de deposição.....	94
4.6	Avaliação da taxa de liberação.....	103
4.7	Estimativa de dose.....	111
5	CONCLUSÃO.....	117
	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	120

ÍNDICE DE FIGURAS

Fig. 1.1 - Ciclo aberto do combustível nuclear (IAEA, 2005).....	02
Fig. 1.2 – Ciclo fechado do combustível nuclear (IAEA, 2005).....	03
Fig. 2.1 - Os principais elementos encontrados no combustível nuclear irradiado (CACUCI, 2010).....	14
Fig. 2.2 - Exemplo da transmutação de um actínídeo menor e um produto de fissão (EURATOM, 2001).....	19
Fig. 2.3 - Comparação da radiotoxicidade do combustível irradiado com rejeito de alta atividade proveniente de reprocessamento, (CACUCI, 2010).....	21
Fig. 2.4 - Raditoxicidade advindo de 1ton de combustível irradiado (AIEA, 2004).	22
Fig. 2.5 - Radiotoxicidade no combustível irradiado vs tempo. Os resultados estão agrupados por elementos presentes após 6 anos de resfriamento (AIEA, 2004).....	24
Fig. 2.6 - Caminhos da liberação dos radionuclídeos e o conceito de multibarreiras para disposição geológica profunda, (BAIK et alii, 2008).....	34
Fig. 2.7 - Conceito de armazenamento do combustível irradiado KBS-3, (BAIK et alii, 2008).....	35
Fig. 2.8 - Diagrama esquemático de um modelo de avaliação de desempenho, (MILLER et alii, 2000).....	37
Fig. 3.1 - Geometria do modelo com uma fratura singular, plana e infinita.....	53
Fig. 4.1 - Perfis das concentrações c_1 , c_2 e c_3	68
Fig. 4.2 - Geometria modificada do modelo proposto.....	69
Fig. 4.3 - Perfis das concentrações na bentonita/fratura (a,c) e lineamento (b,d), para o grupo 1 de nuclídeos relevantes no combustível irradiado, em 10^2 (a,b) e 10^3 (c,d) anos.....	77

Fig. 4.4 - Perfis das concentrações na bentonita/fratura (a,c) e lineamento (b,d), para o grupo 1 de nuclídeos relevantes no combustível irradiado, em 10^4 (a,b) e 10^5 (c,d) anos.....	78
Fig. 4.5 - Perfis das concentrações na bentonita/fratura (a,c) e lineamento (b,d), para o grupo 2 de nuclídeos relevantes no combustível irradiado, em 10^2 (a,b) e 10^3 (c,d) anos	80
Fig. 4.6 - Perfis das concentrações na bentonita/fratura (a,c) e lineamento (b,d), para o grupo 2 de nuclídeos relevantes no combustível irradiado, em 10^4 (a,b) e 10^5 (c,d) anos	81
Fig. 4.7 - Perfis das concentrações na bentonita/fratura (a,c) e lineamento (b,d), para os nuclídeos relevantes na cadeia 4n ($^{240}\text{Pu} \rightarrow ^{236}\text{U}$), em 10^2 (a,b) e 10^3 (c,d) anos.....	83
Fig. 4.8 - Perfis das concentrações na bentonita/fratura (a,c) e lineamento (b,d), para os nuclídeos relevantes na cadeia 4n ($^{240}\text{Pu} \rightarrow ^{236}\text{U}$), em 10^4 (a,b) e 10^5 (c,d) anos	84
Fig. 4.9 - Perfis das concentrações na bentonita/fratura (a,c) e lineamento (b,d), para os nuclídeos relevantes na cadeia 4n+1 ($^{245}\text{Cm} \rightarrow ^{241}\text{Am} \rightarrow ^{237}\text{Np} \rightarrow ^{233}\text{U} \rightarrow ^{229}\text{Th}$), em 10^2 (a,b) e 10^3 (c,d) anos.....	86
Fig. 4.10 - Perfis das concentrações na bentonita/fratura (a,c) e lineamento (b,d), para os nuclídeos relevantes na cadeia 4n+1 ($^{245}\text{Cm} \rightarrow ^{241}\text{Am} \rightarrow ^{237}\text{Np} \rightarrow ^{233}\text{U} \rightarrow ^{229}\text{Th}$), em 10^4 (a,b) e 10^5 (c,d) anos	87
Fig. 4.11 - Perfis das concentrações na bentonita/fratura (a,c) e lineamento (b,d), para os nuclídeos relevantes na cadeia 4n+2 ($^{246}\text{Cm} \rightarrow ^{242}\text{Pu} \rightarrow ^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{U} \rightarrow ^{230}\text{Th} \rightarrow ^{226}\text{Ra}$), em 10^2 (a,b) e 10^3 (c,d) anos.....	89
Fig. 4.12 - Perfis das concentrações na bentonita/fratura (a,c) e lineamento (b,d), para os nuclídeos relevantes na cadeia 4n+2 ($^{246}\text{Cm} \rightarrow ^{242}\text{Pu} \rightarrow ^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{U} \rightarrow ^{230}\text{Th} \rightarrow ^{226}\text{Ra}$), em 10^4 (a,b) e 10^5 (c,d) anos	90

Fig. 4.13 - Perfis das concentrações na bentonita/fratura (a,c) e lineamento (b,d), para os nuclídeos relevantes na cadeia $4n+3$ ($^{243}\text{Am} \rightarrow ^{239}\text{Pu} \rightarrow ^{235}\text{U} \rightarrow ^{231}\text{Pa}$), em 10^2 (a,b) e 10^3 (c,d) anos	92
Fig. 4.14 - Perfis das concentrações na bentonita/fratura (a,c) e lineamento (b,d), para os nuclídeos relevantes na cadeia $4n+3$ ($^{243}\text{Am} \rightarrow ^{239}\text{Pu} \rightarrow ^{235}\text{U} \rightarrow ^{231}\text{Pa}$), em 10^4 (a,b) e 10^5 (c,d) anos	93
Fig. 4.15 - Variação da massa no tempo para os nuclídeos do grupo 1, na cavidade de deposição e o acumulado liberado para a fratura e transportado para o meio ambiente.....	95
Fig. 4.16 - Variação da massa no tempo para os nuclídeos do grupo 2, na cavidade de deposição e o acumulado liberado para a fratura e transportado para o meio ambiente.....	96
Fig. 4.17 - Variação da massa no tempo para os nuclídeos da cadeia $4n$, na cavidade de deposição e o acumulado liberado para a fratura e transportado para o meio ambiente.....	97
Fig. 4.18 - Variação da massa no tempo para os nuclídeos da cadeia $4n+1$, na cavidade de deposição e o acumulado liberado para a fratura e transportado para o meio ambiente.....	98
Fig. 4.19 - Variação da massa no tempo para os nuclídeos da cadeia $4n+2$, na cavidade de deposição e o acumulado liberado para a fratura e transportado para o meio ambiente.....	99
Fig. 4.20 - Variação da massa no tempo para os nuclídeos da cadeia $4n+3$, na cavidade de deposição e o acumulado liberado para a fratura e transportado para o meio ambiente.....	100
Fig. 4.21 - Perfil da taxa de liberação em função do tempo, em Bq/ano, dos nuclídeos do grupo 1, a 1m (a), a 50m (b) e para o meio ambiente (c).....	105
Fig. 4.22 - Perfil da taxa de liberação em função do tempo, em Bq/ano, dos nuclídeos do grupo 2, a 1m (a), a 50m (b) e para o meio ambiente (c).....	106

Fig. 4.23 - Perfil da taxa de liberação em função do tempo, em Bq/ano, dos nuclídeos da cadeia $4n$, a 1m (a), a 50m (b) e para o meio ambiente (c).....	107
Fig. 4.24 - Perfil da taxa de liberação em função do tempo, em Bq/ano, dos nuclídeos da cadeia $4n+1$, a 1m (a), a 50m (b) e para o meio ambiente (c).....	108
Fig. 4.25 - Perfil da taxa de liberação em função do tempo, em Bq/ano, dos nuclídeos da cadeia $4n+2$, a 1m (a), a 50m (b) e para o meio ambiente (c).....	109
Fig. 4.26 - Perfil da taxa de liberação em função do tempo, em Bq/ano, dos nuclídeos da cadeia $4n+3$, a 1m (a), a 50m (b) e para o meio ambiente (c).....	110
Fig. 4.27 - Taxa de dose máxima recebida por um indivíduo do público pela ingestão de água contendo os radionuclídeos considerados no estudo, em Sv/ano...	111
Fig. 4.28 - Dose recebida por um individuo do público, em Sv/ano, pela ingestão de água contendo radionuclídeos relevantes do combustível irradiado do grupo 1 que foram liberados pelo repositório.....	114
Fig. 4.29 - Dose recebida por um individuo do público, em Sv/ano, pela ingestão de água contendo radionuclídeos relevantes do combustível irradiado do grupo 2 que foram liberados pelo repositório.....	114
Fig. 4.30 - Dose recebida por um individuo do público, em Sv/ano, pela ingestão de água contendo os radionuclídeos relevantes da cadeia $4n$, que foram liberados pelo repositório.....	115
Fig. 4.31 - Dose recebida por um individuo do público, em Sv/ano, pela ingestão de água contendo os radionuclídeos relevantes da cadeia $4n+1$, que foram liberados pelo repositório.....	115
Fig. 4.32 - Dose recebida por um individuo do público, em Sv/ano, pela ingestão de água contendo os radionuclídeos relevantes da cadeia $4n+2$, que foram liberados pelo repositório.....	116
Fig. 4.33 - Dose recebida por um individuo do público, em Sv/ano, pela ingestão de água contendo os radionuclídeos relevantes da cadeia $4n+3$, que foram liberados pelo repositório.....	116

ÍNDICE DE TABELAS

Tabela 2.1 - Inventário dos actínídeos principais para o combustível <i>UOX</i> – <i>Uranium OXide</i> , após três anos de armazenagem em piscina, (CEA, 2005/2006).....	13
Tabela 2.2 - Programas para repositórios finais para rejeitos de alta atividade, AREVA NP (2008).....	33
Tabela 4.1 - Parâmetros físicos utilizados na simulação, (BAUER et alii, 2001).....	67
Tabela 4.2 - Malhas utilizadas nos gráficos comparativos.....	67
Tabela 4.3 – Desvio percentual entre a solução analítica e a numérica proposta.....	68
Tabela 4.4 - Dados para radionuclídeos relevantes das cadeias de decaimento.....	73
Tabela 4.5 - Dados para radionuclídeos relevantes.....	74
Tabela 4.6 - Parâmetros constantes para todos os nuclídeos considerados no modelo.....	74
Tabela 4.7 - Dados para os elementos considerados no estudo: coeficiente de distribuição na bentonita - $K_{f,k}$, coeficiente de distribuição na rocha matriz - $K_{p,k}$, coeficiente de difusão na matriz porosa - D_{pl} , coef. de difusão na bentonita - D_b , (NYKYRI et alii, 2008).....	75
Tabela 4.8 - Análise da liberação de radionuclídeos no tempo para início da fratura e meio ambiente.....	101
Tabela 4.9 - Análise da liberação de radionuclídeos no tempo para início da fratura e meio ambiente.....	102

ÍNDICE DE SIGLAS

ADS – *Accelerator-Driven Systems* (Sistemas guiados por aceleradores de partículas)

Bq – Becquerel

CNEN - Comissão Nacional de Energia Nuclear

EBS – *Engineered Barrier System* (Sistema de barreira de engenharia)

g/tiU – Grama por tonelada inicial de urânio

GWd/t – Gigawatt dia por tonelada

HLW - *High Level Waste* (Rejeito de alta atividade)

IAEA - *International Atomic Energy Agency*

LWR – *Light Water Reactor* (Reator de água leve)

MOX - *Mixed OXide* (Óxido misto de urânio e plutônio)

PUREX - *Plutonium-Uranium Refining by EXtraction*

P&T – Partição e transmutação

PWR - *Pressurized Water Reactor* (Reator de água pressurizada)

Sv – Sievert

UOX – *Uranium OXide* (Óxido de urânio)

CAPÍTULO 1

1. INTRODUÇÃO

Os rejeitos radioativos são gerados em diferentes fases do ciclo do combustível e podem aparecer sob a forma de líquidos, gases e sólidos em um largo espectro de toxicidade. O tratamento, acondicionamento e armazenagem do material radioativo são dependentes do nível e natureza da radiação, bem como de sua meia-vida. Enquanto grandes volumes de rejeitos radioativos de meia-vida curta já são tratados pela indústria nuclear em instalações de estocagem na superfície, o gerenciamento dos rejeitos de alta atividade de meia-vida longa ainda não está decidido em detalhes e está em progressivos estudos nos países que fazem uso intenso da energia nucleoe elétrica.

Todo rejeito radioativo gerado pela indústria nuclear deve ser armazenado de forma segura e isolado do público e meio ambiente. Sua natureza radioativa o torna potencialmente perigoso para a saúde, devendo assim ser especificamente gerenciado.

Para entender a origem dos resíduos nucleares, uma abordagem possível, de acordo com CACUCI (2010), é a de seguir passo a passo o ciclo do combustível nuclear. No início do ciclo do combustível, os resíduos são produzidos durante as operações de mineração. Após a extração química do urânio do minério, os resíduos ainda contêm os núcleos dos átomos filhos do urânio. Estes resíduos de mineração podem ser considerados como rejeitos. A sua atividade é muito baixa, certamente menos radioativo que o minério original, mas seu volume é muito grande.

O principal fluxo de resíduos vem da fase final do ciclo do combustível: o combustível irradiado pode ser considerado rejeito, se seu uso posterior não for previsto. Se o combustível irradiado for reprocessado, rejeitos de processo serão produzidos. Por exemplo, a solução de produtos de fissão e actínídeos menores que serão vitrificados, ou as estruturas dos elementos combustíveis que serão compactadas. Este tipo de rejeito é normalmente de média ou alta atividade, o volume correspondente é relativamente pequeno: na produção de 1GW de eletricidade durante um ano para um

típico LWR – *Light Water Reactor* - geram-se: 5m³ de rejeitos de média atividade de meia-vida longa e 2,5m³ de rejeitos vitrificados de alta atividade de meia-vida longa (com reprocessamento) ou 40m³ de combustível irradiado (se não houver o reprocessamento).

A IAEA (2005) identifica dois tipos de ciclos, um aberto, onde o combustível irradiado é considerado rejeito sendo armazenado preliminarmente até a sua disposição final; e outro fechado, onde é feito o reprocessamento ou armazenagem para futuro reprocessamento, de forma a extrair o combustível (urânio e plutônio) ainda existente no material irradiado para produzir MOX - *Mixed OXide* (óxido misto de urânio e plutônio) que será usado em usinas próprias para esse combustível. A experiência de mais de 50 anos no manuseio deste material se mostrou segura e eficiente em ambas as tecnologias até agora empregadas - *Wet and Dry Technologies*. As Figuras 1.1 e 1.2 mostram os dois fluxos.

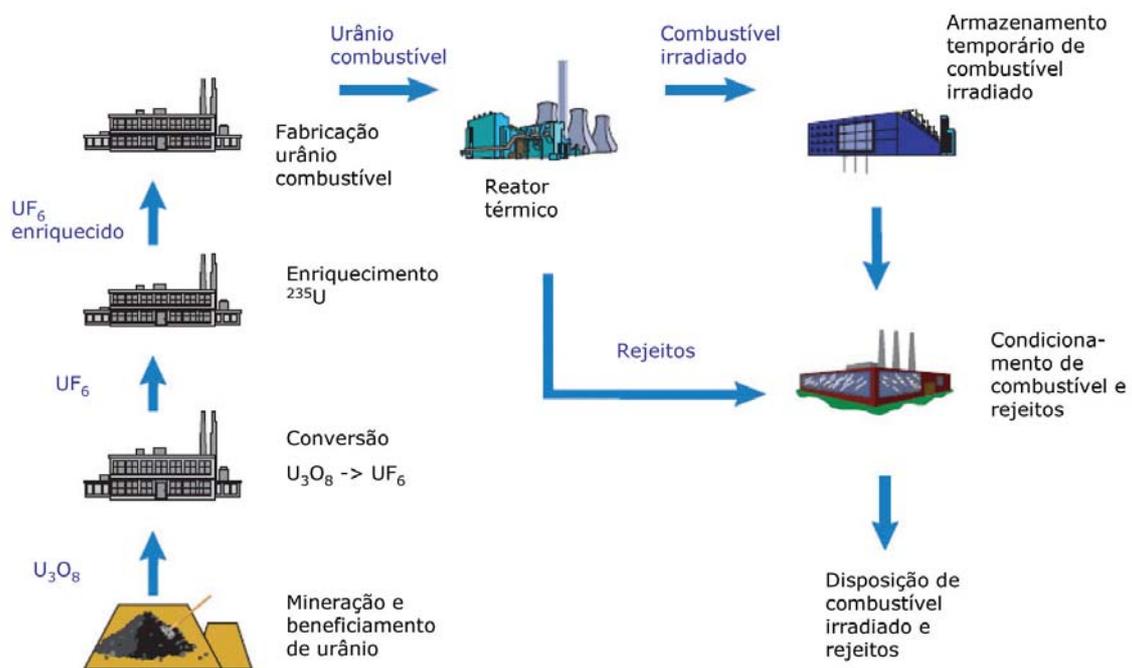


Figura 1.1 – Ciclo aberto do combustível nuclear (IAEA, 2005)

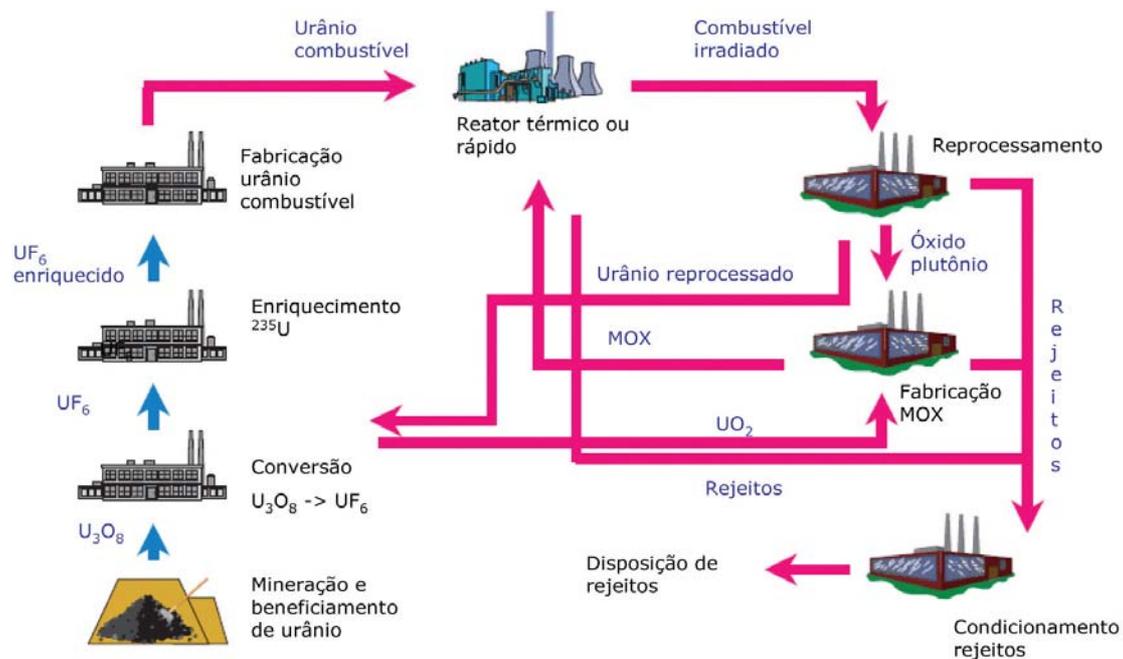


Figura 1.2 – Ciclo fechado do combustível nuclear (IAEA, 2005)

Alguns países veem o combustível irradiado como rejeito que deve ser disposto em repositórios definitivos para alta atividade. Outros países veem este material como um recurso energético para ser reprocessado e reutilizado.

A opção pelo ciclo fechado, tradicionalmente considerada quando se esperava um rápido crescimento da geração nuclear, não se mostrou, posteriormente, tão atrativa e muitos países optaram pelo ciclo aberto, ou postergaram sua decisão, como o Brasil, para um futuro onde as opções sejam mais claras. Isso implica em manter em armazenamento temporário os rejeitos por mais tempo.

Atualmente os países que reprocessam o combustível nuclear são China, França, Índia, Japão, Rússia e Reino Unido. Os que guardam para reprocessar no futuro são Canadá, Finlândia e Suécia. Os Estados Unidos não estão completamente definidos sobre a tecnologia a usar. A grande maioria dos demais países sequer definiu a estratégia e estão armazenando seu combustível irradiado, aguardando o desenvolvimento das tecnologias associadas a ambas as estratégias, IAEA (2013).

Países com programas de geração nuclear reconhecem a necessidade do planejamento a longo prazo para a disposição de rejeitos, mas o tempo e os custos da

disposição são incertos. Atualmente, nenhum país tem uma instalação para disposição geológica profunda. Como os Estados Unidos rescindiram o seu plano para a disposição em *Yucca Mountain*, os únicos países propensos a ter depósitos geológicos profundos em operação até 2025 são Finlândia, França e Suécia. Outros, incluindo a China e a Espanha, não obterão depósitos geológicos até 2050, EIA/DOE (2011). O fato de não haver nenhum depósito definitivo não significa que não se tenha concebido uma solução para o tratamento dos rejeitos.

De acordo com IAEA (2004), a questão da disposição do rejeito domina a opinião pública. A base disso é a percepção do risco associado à decisão referente à disposição dos rejeitos nucleares em repositório subterrâneo por longos períodos de tempo. Essa tomada de decisão envolve risco, no entanto, abster-se de tal tomada de decisão também envolve risco. Quais as necessidades energéticas de um país a médio e longo prazo? Este assunto requer uma análise fundamentada, tendo em conta não só os prós e contras da decisão, mas também as consequências indiretas desta ação.

Tornou-se moda invocar o “princípio da precaução” ao lidar com questões tecnológicas delicadas. De acordo com REIS (2011) o princípio da precaução tem sua aplicação com base em dois pressupostos: a possibilidade de que condutas humanas causem danos coletivos vinculados a situações catastróficas que podem afetar o conjunto de seres vivos; e a falta de evidência científica (incerteza) a respeito da existência do dano temido. Lida-se com um risco não mensurável, potencial, não avaliável. Sua aplicação demanda um exercício ativo da dúvida, uma vez que a sua lógica visa ampliar a incerteza, sendo que esta não exonera de responsabilidade: pelo contrário, ela reforça a criação de um dever de prudência. Na maioria dos casos, o argumento básico é negativo: *in dubio, abstine*. Em contrapartida, porém, o princípio da precaução não implica não tomar nenhuma decisão ou o adiamento de uma decisão – a aplicação do princípio da precaução implica investigação ativa de cursos alternativos da ação. A implantação do princípio da precaução não tem por finalidade imobilizar as atividades humanas. Não se trata da precaução que tudo impede ou que em tudo vê catástrofes ou males. O princípio da precaução visa à durabilidade da sadia qualidade de vida das gerações humanas e à continuidade da natureza existente no planeta. A precaução deve ser visualizada não só em relação às gerações presentes, como em relação ao direito ao meio ambiente das gerações futuras.

Voltando aos elementos combustíveis irradiados, quando considerados rejeitos de alta atividade, são colocados dentro de piscinas no interior das usinas ou em um depósito intermediário de longa duração, cercado de todos os requisitos de segurança exigidos internacionalmente. A tecnologia de tratamento para disposição definitiva compreende o isolamento dos materiais através de blindagem e/ou vitrificação e, em seguida, o seu depósito em cavidades rochosas estáveis. Neste local o material deverá permanecer contido até o seu decaimento a níveis que não causem danos à espécie humana ou ao meio ambiente.

Uma das principais finalidades das investigações para a localização de um repositório é obter uma descrição coerente de todos os aspectos da rocha, a fim de ser capaz de prever a migração de qualquer radionuclídeo que, possivelmente, seja liberado do repositório. Na avaliação de segurança de sistemas de repositórios geológicos profundos de rejeitos nucleares, a análise do transporte hidrogeológico é essencial, PUSCH (2008).

A disposição geológica é um exemplo claro de “concentrar e conter”, abordagem onde o confinamento é alcançado de tal forma a se ter um efeito irrisório sobre a biosfera por milhares de anos, NEA (1999). A disposição geológica dos resíduos radioativos de meia-vida longa se destina a isolar os radionuclídeos do ambiente acessível para que decaiam *in situ* a níveis insignificantes, ou para que qualquer eventual liberação seja em concentração que constitua um risco insignificante para as pessoas e o meio ambiente. É um princípio amplamente aceito de disposição onde os rejeitos são isolados em um repositório selado, de forma que a segurança a longo prazo do sistema de disposição deve exigir nenhuma ação adicional por parte das gerações futuras. Este princípio da equidade intergeracional exige que as gerações presentes, que tiveram os benefícios da energia nuclear, não devam passar os encargos da gestão dos rejeitos para as gerações futuras que não usufruíram de seus benefícios, OECD (1995).

A disposição geológica é também vista como uma abordagem multibarreira, em que as barreiras de engenharia e ambiente geológico no entorno do rejeito atuam em conjunto para fornecer uma variedade de funções de segurança, que controlam todas as eventuais liberações de radioatividade do repositório e os seus movimentos através da rocha hospedeira, FALCK e NISSON (2009).

O desenvolvimento da energia nuclear pressupõe um comprometimento desta indústria na gestão dos rejeitos, mas pode-se continuar operando as usinas por certo tempo, todavia não para sempre.

Para consolidar a sustentabilidade da opção nuclear a longo prazo, reatores de Geração IV estão sendo desenvolvidos utilizando combustíveis avançados, obtidos a partir do reprocessamento dos combustíveis irradiados nos reatores atuais e aptos para atingirem altas taxas de queima. As estratégias de ciclo de combustível visam permitir a utilização eficiente do minério de urânio e minimizar desperdícios. Muitas inovações futuras incidirão em sistemas que utilizarão nêutrons rápidos e que poderão produzir mais material físsil, na forma de ^{239}Pu , do que será consumido. Nêutrons rápidos em reatores rápidos também habilitam estas instalações para serem utilizadas na transmutação de certos radioisótopos de meia-vida longa, reduzindo a carga ambiental e a gestão de rejeitos radioativos de alta atividade, IAEA (2004), DoE (2005).

Assim, as implicações econômicas de uma política de partição e transmutação não podem ser desprezadas, no entanto, a responsabilidade associada com esta escolha tem de ser tomada pela atual geração para um número desconhecido de gerações futuras. A decisão de reduzir o estoque radiotóxico do material nuclear por transmutação é um passo importante que deve ser tomada pelas autoridades responsáveis.

E, para auxiliar e dar embasamento ao gerenciamento do rejeito de alta atividade, o destino a longo prazo dos rejeitos nucleares em condições naturais é comparado com o comportamento de análogos naturais (por exemplo, o reator de fissão natural em Oklo) em períodos geológicos, MILLER et alii (2000). A capacidade da geração atual em garantir a durabilidade das estruturas de disposição de rejeitos baseada na tecnologia humana é ilustrada através da preservação de monumentos históricos e objetos feitos pelo homem, confeccionados há cerca de 5.000 anos.

Em prol da energia nuclear pode-se dizer que antes do desastre em Fukushima as perspectivas para a energia nuclear tinham melhorado significativamente ao longo dos últimos anos, e muitos países estavam reavaliando seus programas de energia nuclear e considerando a extensão da vida útil ou construção de novas plantas. Pois estes consideravam a ampliação da energia nuclear uma opção à mudança climática e uma

alternativa às oscilações do preço dos produtos energéticos, além de ser uma proteção contra a incerteza sobre os combustíveis fósseis.

As consequências do devastador terremoto e tsunami que atingiram o nordeste do Japão em 11 de março de 2011, que resultou em extensa perda de vidas e danos de infraestrutura, incluindo danos severos em reatores nucleares em Fukushima Daiichi ofereceram uma fonte de incerteza no EIA/DoE (2011).

O evento pode ter implicações mais profundas para o futuro da energia nuclear mundial. As projeções do EIA/DoE (2011) não refletem as possíveis ramificações dos eventos de Fukushima para o desenvolvimento global a longo prazo da energia nuclear ou nas políticas que alguns países já adotaram em relação à continuidade do funcionamento das centrais nucleares existentes.

Quanto à incerteza sobre o futuro da energia nuclear, há uma série de questões que podem retardar o desenvolvimento de novas usinas nucleoeletricas. Questões relacionadas com a segurança da planta, a disposição dos rejeitos radioativos e a proliferação de materiais nucleares continuam a preocupar o público em muitos países e podem prejudicar os planos para novas instalações. Capital elevado e os custos de manutenção também podem retardar a expansão de programas nucleares. Além disso, a falta de recursos humanos treinados bem como a capacidade de produção global limitada para certos componentes podem conter seu avanço.

Finalmente, as implicações a longo prazo do desastre na usina nuclear de Fukushima Daiichi para o desenvolvimento da energia nuclear são incertas. Alemanha, Suíça e Itália já anunciaram planos de eliminar ou cancelar todos os seus reatores existentes e futuros. Esses planos, e novas políticas que outros países possam adotar em resposta ao desastre na usina de Fukushima Daiichi, que embora não estejam refletidas nas projeções do EIA/DoE (2011), indicam que uma redução no desenvolvimento da energia nuclear deve ser esperada.

Contudo, as preocupações ambientais e a importância da segurança energética fornecem suporte para geração a nuclear (segurança energética – ter energia suficiente para atender às necessidades de uma população de forma confiável e ininterrupta, a um preço razoável. Esta segurança tem que atender a quatro dimensões específicas: a física, a econômica, a social e a ambiental).

A opção pela energia nuclear está associada à demanda futura por energia e à estratégia de diversificar a matriz energética de forma a evitar colapsos no fornecimento, uma vez que a matriz energética deve acompanhar o crescimento do consumo. Uma política energética que privilegia a geração nucleoe elétrica leva em consideração a segurança e a confiabilidade no suprimento de energia.

O Brasil encontra-se em boa situação, com uma das dez maiores reservas mundiais de urânio, capaz de sustentar a geração doméstica a longo prazo, sem a necessidade do reprocessamento. A Austrália, o Cazaquistão e a Rússia possuem as maiores reservas de urânio do planeta, ocupando o Brasil a sétima posição neste *ranking*. Contudo, como apenas 25% do território nacional foram prospectados, motivo pelo qual estudos indicam que o Brasil pode ter a segunda maior reserva de urânio do mundo, podendo passar a ocupar o primeiro lugar no *ranking*, BRASIL (2007). Além disso, já dominamos a tecnologia de enriquecimento do urânio, fazendo com que o Brasil possa, além de aproveitá-lo internamente, ter um papel importante no cenário mundial no fornecimento de combustível nuclear.

E por fim, segundo TENNENBAUM (2009), a energia nuclear é muito mais que uma boa fonte de eletricidade. Que embora a energia nuclear se mostre de forma vantajosa nas comparações habituais de custos com outras tecnologias de energia primária, tais comparações omitem os benefícios econômicos indiretos gerados pelas atividades do setor nuclear, que são geradas adicionalmente à produção de eletricidade. Pois, os benefícios econômicos reais da energia nuclear são ligados, acima de tudo, ao impacto do setor nuclear sobre toda a estrutura econômica, da produtividade da força de trabalho e indústria, à capacitação técnico-científica e ao potencial geral para desenvolvimento futuro.

1.1 Objetivo

Neste estudo será considerado um repositório hipotético para combustível irradiado, uma vez que a política vigente no país não faz planos para o reprocessamento. A modelagem da migração será na região *far-field*, podendo assim desconsiderar as implicações da geração de calor do combustível irradiado na matriz hospedeira. É um estudo conservador, uma vez que no cenário considerado assume-se que os

radionuclídeos relevantes já se encontram dissolvidos na água subterrânea no seu limite de solubilidade como concentração inicial na entrada da fratura no início da simulação.

Esta tese é uma continuação do estudo do mestrado em SILVEIRA (2008), onde se realizou um estudo numérico das equações de migração de radionuclídeos em meio fraturado. Agora no doutorado tivemos como meta aprimorar o código desenvolvido em Fortran 90 levando em conta a cadeia de decaimento, para a avaliação de desempenho da região *far field* de um repositório geológico profundo para rejeito radioativo de alta atividade, especificamente o combustível irradiado, utilizando modelos conservadores de migração de radionuclídeos através da geosfera até a biosfera, e dados reais de radionuclídeos em combustível irradiado de um PWR - *Pressurized Water Reactor*.

Assim, o objetivo principal é apresentar uma modelagem simples (modelo conservador da migração através da geosfera) para a simulação da liberação de radionuclídeos relevantes e o transporte das cadeias de decaimento, a partir do repositório de rejeito radioativo de alta atividade – combustível irradiado. Assim, delimitam-se como objetivos específicos:

- Apresentar uma modelagem numérica com cadeia de decaimento em uma fratura singular e comparar com modelo analítico da literatura para a sua verificação.
- Apresentar um cenário de liberação na região *far field*.
- Avaliar a segurança e o desempenho do repositório através da análise da migração e quantificação dos radionuclídeos liberados a partir de uma cavidade de disposição, e a estimativa da dose para um adulto através da ingestão de água.

1.2 Relevância e Originalidade

Analisando a conjuntura do país, o Brasil não possui rejeitos radioativos de alta atividade. Os elementos combustíveis irradiados não são classificados como rejeitos, CNEN (2013). Aguarda-se até que se defina uma política nacional de processamento, reprocessamento ou simples descarte destes combustíveis irradiados, atualmente armazenados em piscinas nas próprias instalações onde foram utilizados. Este é o panorama dos rejeitos radioativos de alta atividade no Brasil. Como dito anteriormente,

a utilização e desenvolvimento da geração nuclear de energia pressupõem um comprometimento desta indústria na gestão dos rejeitos. Pois em algum momento futuro terá que ser feito o desmantelamento da unidade. Desta forma, este estudo se enquadra neste comprometimento, procurando dar sua contribuição e aprimoramento do conhecimento nacional de forma a propiciar desenvolvimento científico nesta área.

A responsabilidade da deposição é da Comissão Nacional de Energia Nuclear, CNEN, de acordo com suas atribuições definidas na lei federal 7.781 de 27 de junho de 1989 e também através da lei federal 10.308 de 20 de novembro de 2001 que estabelece normas para o destino final dos rejeitos radioativos produzidos em território nacional, incluídos a seleção de locais, a construção, o licenciamento, a operação, a fiscalização, os custos, a indenização, a responsabilidade civil e as garantias referentes aos depósitos radioativos, PLANALTO (2013).

Para a implantação de um repositório são necessários estudos técnicos e operações em diversas áreas do conhecimento, como por exemplo: geologia, hidrologia, corrosão, processos de engenharia, transferência de calor, desempenho da forma do rejeito, meteorologia, proteção radiológica, comportamento humano e modelagem. E, é por meio da modelagem que se pode efetuar uma análise preliminar de segurança do repositório, mostrando a relevância da tese ao prever o comportamento dos radionuclídeos em estudo e identificando os relevantes para estudos futuros mais elaborados.

A originalidade se encontra na construção do cenário de liberação, onde, através do conhecimento adquirido, montou-se uma geometria simples para o transporte dos radionuclídeos na região *far field* e sua implementação em Fortran 90, na qual obtivemos resultados para uma avaliação preliminar de segurança.

O Capítulo 2 tem por finalidade a introdução do assunto pela apresentação da composição e radiotoxicidade do combustível irradiado típico dos nossos reatores. Aborda as responsabilidades de uma gerência de rejeitos radioativos. Abstrai sobre as promissoras tecnologias de partição e transmutação. E, apresenta de forma concisa o conceito de disposição geológica profunda. Finaliza descrevendo alguns trabalhos da literatura inseridos no contexto da disposição geológica profunda.

O Capítulo 3 apresenta a descrição do modelo físico considerado. São expostas

as equações diferenciais parciais que descrevem o transporte da cadeia de decaimento em um meio poroso fraturado. E apresenta de forma sucinta o método numérico utilizado na modelagem proposta.

O Capítulo 4 prima pela resolução das equações e sua validação contra uma solução analítica da literatura. Apresenta o cenário de liberação do modelo proposto e ilustra através de gráficos e tabelas a avaliação de desempenho para o modelo genérico de repositório hipotético. Os principais resultados quantitativos foram expressos como taxas de dose indicativas do consumo de água potável, taxas de liberações de atividade da cavidade de deposição para a geosfera e da geosfera para a biosfera e quantificação da massa transportada.

O Capítulo 5 finaliza com a apresentação das conclusões do trabalho e de recomendações para estudos futuros.

CAPÍTULO 2

2. REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

2.1 Rejeito de Alta Atividade, *HLW (High Level Waste)*

O combustível nuclear para reatores PWR é feito de dióxido de urânio, o qual é primeiramente comprimido e então sinterizado em pastilhas de, aproximadamente, 1cm de diâmetro e 1cm de comprimento. O urânio no combustível é enriquecido no isótopo físsil ^{235}U ao nível de 4% e essas pastilhas de dióxido de urânio montadas em tubos de uma liga metálica especial, o *zircaloy*, formam um conjunto de varetas denominado elemento combustível, cuja estrutura tem até 5 metros de altura e preenchida com gás inerte e selada. Os componentes do conjunto são feitos de aço inoxidável e ligas de níquel. O elemento combustível produzido pela INB para a Usina Angra 1 é de tecnologia *Westinghouse*. Seu conjunto possui 235 varetas combustíveis. Já o elemento combustível fabricado para abastecer Angra 2 é de tecnologia *Siemens/Areva* e seu conjunto possui 236 varetas combustíveis, INB (2013).

Durante a sua utilização no reator, o ^{235}U no combustível sofre fissão, produzindo produtos de fissão e nêutrons. Uma parte dos nêutrons induz mais fissões e uma porção é absorvida pelo combustível e outra por componentes no elemento combustível. Se o isótopo de urânio mais abundante, ^{238}U , absorve um nêutron, o produto torna-se ^{239}Pu , que também pode fissionar, ou pode absorver nêutron, conduzindo à produção de actínídeos superiores. Nêutrons que interagem com as impurezas no combustível ou com os outros componentes do elemento combustível dão origem a produtos de ativação. Após a sua utilização no reator, o combustível irradiado é altamente radioativo. As propriedades do combustível irradiado, incluindo o revestimento e os componentes de montagem, devem ser entendidas de modo a conceber a cápsula de disposição e o repositório, bem como as instalações de armazenamento e transporte.

O urânio encontrado no combustível irradiado exibe uma composição que é, obviamente, diferente do combustível inicial. Quanto maior a irradiação, maior o consumo dos núcleos físeis e, conseqüentemente, maior será a depleção do isótopo físsil ^{235}U . Para um tempo de residência médio do combustível dentro do reator de, aproximadamente, 4 anos a uma taxa de queima próxima a 50 GWd/t, resulta na redução do teor de ^{235}U final para um valor muito próximo ao do urânio natural (menos de 1%), implicando em um potencial energético muito próximo deste último, CACUCI (2010). Embora o urânio permaneça ligeiramente mais rico no isótopo físsil que o urânio natural, onde o teor de ^{235}U está em torno de 0,7%, existe também a presença, em quantidade significativa, de isótopos com efeitos adversos em termos neutrônicos ou radiológicos que não são encontrados no combustível inicial, Tabela 2.1.

Tabela 2.1 – Inventário dos actinídeos principais para o combustível *UOX – Uranium Oxide*, após três anos de armazenagem em piscina (CEA, 2005/2006)

Elemento	Isótopo	Meia-vida (anos)	<i>UOX</i> 33 GWd/tiU (^{235}U : 3,5%)	
			Teor do isótopo (%)	Quantidade (g/tiU)
U	234	$2,46 \cdot 10^5$	0,02	222
	235	$7,04 \cdot 10^8$	1,05	10.300
	236	$2,34 \cdot 10^7$	0,43	4.224
	238	$4,47 \cdot 10^9$	98,4	941.000
Pu	238	87,7	1,8	166
	239	24.100	58,3	5.680
	240	6.560	22,7	2.214
	241	14,4	12,2	1.187
	242	$3,75 \cdot 10^5$	5,0	490

A composição do combustível se altera durante a sua irradiação no interior do reator. Logo após a sua retirada, o combustível irradiado em reatores de água leve, PWR, contém aproximadamente: 95,6% de urânio (menos de 1% é ^{235}U); 2,9% de produtos de fissão estáveis; 0,9% de plutônio; 0,3% de céscio e estrôncio (produtos de fissão); 0,1% de iodo e tecnécio (produtos de fissão); 0,1% outros produtos de fissão de meia-vida longa, e 0,1% de actinídeos menores (amerício, cúrio, neptúnio). Os produtos de fissão exibem níveis significativos de radioatividade, cerca de 1.017 Bq por tonelada

de urânio inicial (tiU), o que exige apropriadas medidas de gestão de segurança, CACUCI (2010).

Os produtos de fissão são os nuclídeos produzidos pela fissão do urânio 235, mas também pelo plutônio gerado (isótopos 239 e 241), que são a fonte essencial da radioatividade no combustível irradiado logo após a retirada do núcleo. Mais de 300 radionuclídeos foram identificados, no entanto, dois terços serão dissipados através de decaimento radioativo em poucos anos. Estes radionuclídeos são distribuídos por cerca de 40 elementos da tabela periódica, como mostra a Figura 2.1, do germânio (³²Ge) ao disprósio (⁶⁶Dy), com a presença de trício da fissão, isto é, a partir da fissão em três fragmentos (fissão ternária) do ²³⁵U.

1 H																	2 He
3 Li	4 Be											5 B	6 C	7 N	8 O	9 F	10 Ne
11 Na	12 Mg											13 Al	14 Si	15 P	16 S	17 Cl	18 Ar
19 K	20 Ca	21 Sc	22 Ti	23 V	24 Cr	25 Mn	26 Fe	27 Co	28 Ni	29 Cu	30 Zn	31 Ga	32 Ge	33 As	34 Se	35 Br	36 Kr
37 Rb	38 Sr	39 Y	40 Zr	41 Nb	42 Mo	43 Tc	44 Ru	45 Rh	46 Pd	47 Ag	48 Cd	49 In	50 Sn	51 Sb	52 Te	53 I	54 Xe
55 Cs	56 Ba	<i>Ln</i>	72 Hf	73 Ta	74 W	75 Re	76 Os	77 Ir	78 Pt	79 Au	80 Hg	81 Tl	82 Pb	83 Bi	84 Po	85 At	86 Rn
87 Fr	88 Ra	<i>An</i>	104 Rf	105 Db	106 Sg	107 Bh	108 Hs	109 Mt	110 Uun								
Lantanídeos			57 La	58 Ce	59 Pr	60 Nd	61 Pm	62 Sm	63 Eu	64 Gd	65 Tb	66 Dy	67 Ho	68 Er	69 Tm	70 Yb	71 Lu
Actinídeos			89 Ac	90 Th	91 Pa	92 U	93 Np	94 Pu	95 Am	96 Cm	97 Bk	98 Cf	99 Es	100 Fm	101 Md	102 No	103 Lr

Legenda:

	Núcleos pesados		Produtos de ativação
	Produtos de fissão		Produtos de fissão e ativação
			Radionuclídeos de longa vida

Fig. 2.1 - Os principais elementos encontrados no combustível nuclear irradiado (CACUCI, 2010)

O plutônio presente no combustível irradiado é produzido por processos de captura sucessiva e decaimento. Esses processos ainda provocam a formação de núcleos pesados radioativos de meia-vida longa, diretamente ou através dos produtos filhos. Estes são os elementos da série dos actínídeos, incluindo, essencialmente, o plutônio (do ^{238}Pu ao ^{242}Pu), mas igualmente neptúnio (Np), amerício (Am) e cúrio (Cm), conhecido como actínídeos menores (*MAs - minor actinides*), devido à menor abundância destes elementos, quando comparada com a do U e Pu, sendo estes últimos denominados actínídeos principais – *major actinides*.

Processos de ativação que afetam os núcleos de elementos não radioativos envolvem principalmente os materiais estruturais, por exemplo, o elemento combustível que garante a resistência mecânica do combustível nuclear. Esses materiais levam, em particular, para a formação do ^{14}C , com meia-vida de 5.730 anos, em quantidades muito pequenas, muito menos de um grama por tonelada de urânio inicial (g/tiU) em condições normais.

2.2 Gerência de Rejeitos Radioativos

A gerência de rejeitos radioativos é o conjunto de atividades administrativas e técnicas, envolvidas na coleta, segregação, manuseio, tratamento, acondicionamento, transporte, armazenamento, controle, eliminação e deposição de rejeitos radioativos. De acordo com a AIEA (1995), a gerência responsável de rejeitos radioativos está fundamentada em nove princípios com o objetivo de lidar com esses materiais de forma a proteger a saúde humana e o meio ambiente, no presente e no futuro, sem impor encargos desnecessários às gerações futuras.

Princípio 1: “Os rejeitos radioativos devem ser gerenciados de forma a garantir um nível aceitável de proteção à saúde humana”. Considerando que a natureza dos rejeitos radioativos implica na possibilidade de exposição à radiação ionizante, é necessário prover um nível aceitável de proteção, em particular, o controle das vias pelas quais os seres humanos poderiam estar expostos, de modo a atender aos requisitos de proteção radiológica estabelecidos na legislação.

Princípio 2: “*Os rejeitos radioativos devem ser gerenciados de forma a garantir um nível aceitável de proteção do meio ambiente*”. Considerando que o gerenciamento de rejeitos radioativos pode incluir a liberação de efluentes para o meio ambiente, bem como pode ocorrer a migração de radionuclídeos contidos em depósitos, devem ser mantidos controles e deve ser realizada uma avaliação de impacto ambiental de modo a minimizar a possibilidade de efeitos indesejados, tanto os radiológicos como os não radiológicos associados, por ocasião da utilização de recursos naturais pelo ser humano.

Princípio 3: “*Os rejeitos radioativos devem ser gerenciados de forma a garantir que sejam considerados os possíveis efeitos à saúde humana e ao meio ambiente, além das fronteiras nacionais*”. Considerações éticas levam à premissa de que um país tem o dever de agir responsavelmente e não impor risco à saúde humana e ao meio ambiente em países vizinhos maior do que aquele julgado aceitável dentro do seu próprio país.

Princípio 4: “*Os rejeitos radioativos devem ser gerenciados de modo a assegurar que os impactos previstos para as gerações futuras não superem aqueles considerados aceitáveis para a geração atual*”. Considerações éticas levam à premissa de que deve ser assegurado para as gerações futuras, por meio de barreiras artificiais, o mesmo nível de segurança que aquele adotado para a geração atual.

Princípio 5: “*Os rejeitos radioativos devem ser gerenciados de forma que não sejam transferidos ônus para as gerações futuras*”. Considerações éticas levam à premissa de que a geração que se beneficiou da prática geradora de rejeitos radioativos deve arcar com a responsabilidade do gerenciamento adequado desses rejeitos, por meio do desenvolvimento de tecnologias, construção e operação das instalações pertinentes, podendo ser transmitido para as gerações futuras a continuidade do controle institucional, se necessário.

Princípio 6: “*Os rejeitos devem ser gerenciados dentro de uma estrutura legal nacional adequada, incluindo o estabelecimento claro de responsabilidades e a provisão para funções reguladoras independentes*”. Uma estrutura legal apropriada deve ser estabelecida no país para a gerência de rejeitos radioativos, por meio de leis, regulamentos e normas, assegurando a separação das funções reguladoras daquelas operacionais. Deve ser levado em consideração que a gerência de rejeitos radioativos envolve um longo período de tempo, podendo abarcar várias gerações, fato esse que

exige que sejam assegurados a continuidade das responsabilidades e o financiamento ao longo das décadas.

Princípio 7: “*A geração de rejeitos deve ser minimizada*”. A geração de rejeitos radioativos deve ser mantida tão baixa quanto praticável, tanto em termos de atividade como de volume, por meio da implantação de projetos e procedimentos adequados, tanto durante a operação como no descomissionamento de instalações, estando incluídos a seleção e controle de materiais, a reciclagem e a reutilização de materiais. Ênfase deve ser dada à segregação dos diferentes tipos de materiais, de forma a reduzir o volume de rejeitos gerados.

Princípio 8: “*Devem ser levada em consideração as interdependências existentes entre a geração dos rejeitos e todas as etapas de sua gerência*”. Decisões tomadas em cada estágio da gerência de rejeitos radioativos devem levar em conta a necessidade de evitar requisitos conflitantes entre as diversas etapas operacionais do processo de gerência, alcançando um equilíbrio entre a efetividade desse processo e sua segurança, sem comprometer a segurança operacional e a segurança a longo prazo.

Princípio 9: “*A segurança de instalações para gerenciamento de rejeitos radioativos deve ser apropriadamente assegurada durante toda a sua existência*”. Durante as etapas de seleção de local, projeto, construção, comissionamento, operação e descomissionamento de uma instalação de gerenciamento de rejeitos ou de um repositório, prioridade deve ser dada à segurança, incluindo a prevenção de acidentes e a eliminação e/ou mitigação de suas consequências, caso venham a ocorrer.

Na gestão dos rejeitos radioativos de alta atividade o conceito internacionalmente consagrado para o armazenamento destes rejeitos compreende duas fases. Inicialmente, o combustível utilizado nos reatores - que gera uma grande quantidade de calor - é resfriado por um período em piscinas especiais localizadas dentro da própria usina onde foi produzido. Esse processo pode ser estendido por até 40 anos, que é o tempo médio de vida de um reator. Trata-se de uma prática adotada em usinas nucleares do mundo inteiro, de acordo com as diretrizes da IAEA – *International Atomic Energy Agency*, e que, no Brasil, é regulada pela CNEN.

Depois de resfriado, o combustível pode ser reprocessado ou ser preparado para a armazenagem intermediária (de curta, média ou longa duração) ou definitiva. Nesse

caso, o material será acondicionado em cápsulas metálicas, soldadas e lacradas, que serão colocadas em repositório subterrâneo a grande profundidade, localizado em área com condições geológicas naturais milenarmente estáveis (baixa probabilidade de abalo sísmico), baixo índice pluviométrico e pouca densidade populacional. Os terrenos preferenciais são formações rochosas, que funcionam como uma blindagem que evita a corrosão dos recipientes onde os rejeitos são acondicionados.

De acordo com IAEA (2004), quase todos os países com instalações nucleoeletricas consideram a disposição geológica como ponto final para o combustível irradiado, quando declarado como rejeito, e também para os radionuclídeos de meia-vida longa e alta atividade resultante do reprocessamento. No entanto, vários países estão considerando ou investigando a partição/transmutação como uma potencial rota complementar na gestão do material radioativo resultante da geração nuclear de energia.

2.3 Partição e Transmutação

O risco associado com a disposição de HLW avaliado em sítios geológicos pode ser reduzido por meio de técnicas conhecidas como partição (separação de produtos químicos) e transmutação (conversão de radionuclídeos).

a) Partição (separação química)

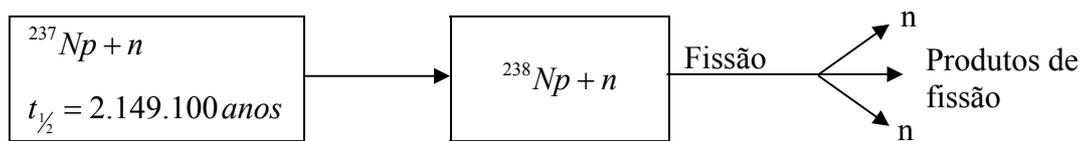
Atualmente, a tecnologia de reprocessamento baseia-se no processo PUREX (*Plutonium-Uranium Refining by EXtraction*), na qual o combustível irradiado é dissolvido em ácido nítrico. Usando um extrator orgânico, urânio e plutônio são recuperados e podem ser usados para a fabricação de combustível nuclear. No entanto, o líquido restante contém os actinídeos menores (amerício, cúrio e neptúnio) e produtos de fissão, alguns dos quais de meia-vida longa (como os isótopos de tecnécio, célio e iodo). Juntos, formam o rejeito de alta atividade a ser disposto. Para reduzir a radiotoxicidade a longo prazo do rejeito, um pequeno número de isótopos perigosos (como o amerício, neptúnio, célio, tecnécio e iodo) precisam ser separados antes da vitrificação dos resíduos, que serão imersos em blocos de vidro para armazenamento geológico. Os isótopos mencionados podem ser convertidos em isótopos menos radiotóxicos (ou até mesmo estáveis) através da transmutação nuclear em reatores

rápidos ou em sistemas guiados por aceleradores de partículas (ADS - *Accelerator-Driven Systems*), EURATOM (2001)

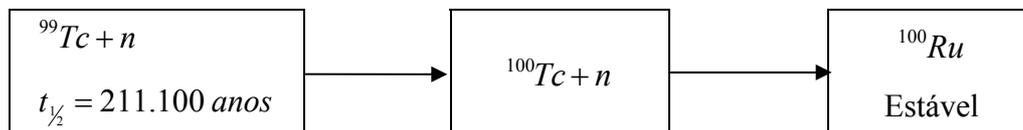
b) Transmutação

Os componentes problemáticos do rejeito de alta atividade são um pequeno grupo de isótopos que são radioativos por dezenas de milhares de anos. Se bombardeados com nêutrons após a separação, estes isótopos podem ser transmutados em outros que são radioativos por centenas ou mesmo por dezenas de anos, reduzindo a duração necessária para a disposição do rejeito.

Em alguns casos, atinge-se a estabilidade do isótopo como no exemplo apresentado na Figura 2.2 que demonstra a transmutação do ^{237}Np , um actínídeo menor, e do ^{99}Tc , um produto de fissão.



Transmutação por fissão do actínídeo menor neptúnio (Np) por nêutron externo levando a produtos de fissão.



Transmutação do produto de fissão tecnécio (Tc) por nêutron externo levando ao isótopo estável Rutênio (Ru).

Figura 2.2 - Exemplo da transmutação de um actínídeo menor e um produto de fissão (EURATOM, 2001)

Um reator rápido subcrítico acoplado a um acelerador de partículas é um conceito que permite que grandes quantidades de actínídeos menores sejam queimados eficientemente. Reactores de água leve operaram em criticalidade, onde os nêutrons necessários para a reação em cadeia são gerados no próprio processo de fissão. Em um reator subcrítico, por outro lado, nêutrons adicionais são fornecidos por uma fonte externa, a partir de reações de espalação (espalação ou esfoliação é um processo no qual

o impacto de uma partícula de alta energia contra um núcleo causa a sua desintegração em um grande número de fragmentos, inclusive nêutrons, (TENNENBAUM, 2009)).

Objeto de estudos mais detalhado, um ADS aparenta ser mais seguro, pois a reação em cadeia pode, em princípio, ser interrompida quando desejado, desligando a fonte adicional de nêutrons (o acelerador). Isso, no entanto, ainda deixa a tarefa de retirar o calor de decaimento.

2.4 Evolução da Radiotoxicidade do Combustível Irradiado e HLW

Por um dado período após a retirada do combustível, a toxicidade do combustível irradiado é partilhada igualmente entre actínídeos e produtos de fissão. Após algumas décadas, os actínídeos (e especialmente o plutônio) predominam, WHIPPLE (2010).

Assim, o perigo a longo prazo do combustível irradiado e HLW está associada aos actínídeos, particularmente com os elementos transurânicos, enquanto os riscos de curto e longo prazo são devido à mobilidade dos produtos de fissão na geosfera e à possibilidade de sua entrada na biosfera.

Radiotoxicidade (definida como a atividade ou a quantidade de radionuclídeos no combustível irradiado ou HLW multiplicado por seu coeficiente de dose efetivo) refere-se aos efeitos biológicos adversos em seres humanos ao contato com o material radioativo no combustível irradiado, CACUCI (2010). A evolução da radiotoxicidade do combustível irradiado é muito bem conhecida e depende do tipo de combustível e das taxas de queima.

Assim, o maior problema relacionado com o uso da energia nuclear está em como cuidar de forma segura dos seus rejeitos de alta atividade. Somente rejeitos com meia-vida excedendo, aproximadamente, 10 anos são considerados um significativo problema de armazenagem; todos os outros, depois de apropriado tratamento, podem ser seguramente estocados em unidades especializadas até que suas radiotoxicidades tornem-se irrisórias.

O plutônio é o principal contribuinte da toxicidade a longo prazo do rejeito. A toxicidade do rejeito diminui com o tempo. A regra prática adotada pela gestão de rejeitos é confinar o rejeito por tempo suficiente para que a sua radiotoxicidade diminua a um nível inferior à do minério urânio.

Destarte, se o combustível irradiado for considerado rejeito, então deverá ser confinado durante várias centenas de milhares de anos, como se pode ver na Figura 2.3 de CACUCI (2010):

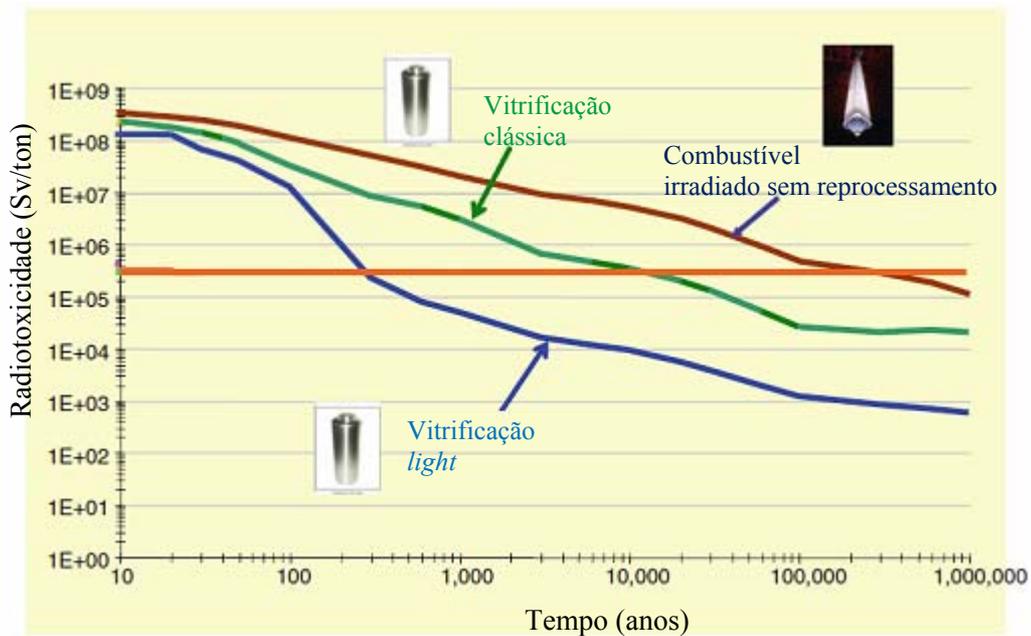


Figura 2.3 - Comparação da radiotoxicidade do combustível irradiado com rejeito de alta atividade proveniente de reprocessamento, (CACUCI, 2010)

Diferentes estratégias para garantir que estes rejeitos de meia-vida longa sejam tratados e confinados de forma segura têm sido propostas ao longo dos anos, os mais importantes são:

1- Armazenagem subterrânea direta do elemento combustível irradiado, sem qualquer reprocessamento;

2- Partição e transmutação para reduzir a quantidade, a radiotoxicidade e a meia-vida, e após este tratamento, disposição do rejeito remanescente em repositório geológico.

A opção inicialmente considerada foi a primeira, mas as dificuldades em encontrar um sítio apropriado, o custo de construção e o vasto horizonte de tempo para a redução do nível de radiotoxicidade do rejeito têm tornado a segunda opção mais atrativa. Se o plutônio e os actínídeos menores - *minor actinides*, os quais são os principais responsáveis pela radiotoxicidade a longo prazo do rejeito, forem removidos do rejeito (partição) e transformados, em elementos de menor meia-vida ou estáveis, através da absorção de nêutrons (transmutação) o rejeito remanescente perde a maioria da radiotoxicidade a longo prazo.

Desta forma, com o reprocessamento obtém-se uma redução drástica na toxicidade do rejeito, bem como do tempo de confinamento necessário, denominada de vitrificação *clássica*. Com a remoção dos actínídeos da matriz a ser vitrificada, chamada de vitrificação *light*, permite uma maior redução da toxicidade e do tempo de confinamento, o qual pode ser reduzido a alguns séculos, como mostrado na Figura 2.3, CACUCI (2010).

Ainda, para melhor demonstrar os efeitos das diferentes estratégias na redução da radiotoxicidade através do partição e transmutação (P&T), a AIEA (2004) apresenta alguns processos cujas curvas de radiotoxicidade resultantes são mostradas na Fig. 2.4.

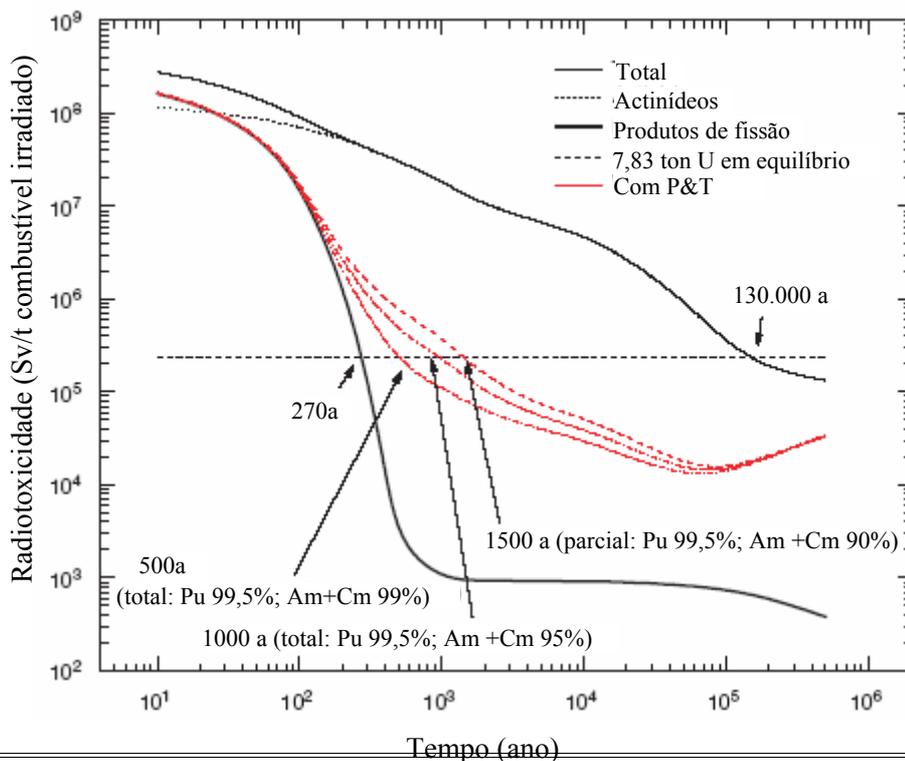


Figura 2.4 - Radiotoxicidade advindo de 1ton de combustível irradiado (AIEA, 2004)

O ponto de cruzamento indica o momento em que a toxicidade do rejeito atinge o nível de referência. As seguintes observações foram feitas:

(a) *Ciclo aberto*: o combustível irradiado é enviado diretamente para o armazenamento a longo prazo sem partição e transmutação. Leva 130.000 anos até que a toxicidade atinja o nível de referência.

(b) *Reciclagem do plutônio, amerício e cúrio com alta eficiência nos processos de P&T*: (99,5% para o plutônio e 99% para o amerício e cúrio). Ponto de cruzamento é em 500 anos. Se o cúrio for deixado no rejeito, este tempo é estendido para 1.000 anos.

(c) *Reciclagem do plutônio, amerício e cúrio, com menor eficiência nos processos de partição e transmutação*: (99,5% do plutônio e de 95% para o amerício e cúrio). O ponto de cruzamento das curvas é em 1.000 anos.

(d) *Reciclagem parcial*: reciclagem do plutônio (99,5% de eficiência) e reciclagem do amerício e cúrio. Neste caso, o amerício e cúrio são transmutados em um reator rápido, a eficiência prevista é de 90%. Assim, o ponto de cruzamento é em, aproximadamente, 1.500 anos. Nesta estratégia também se pode considerar deixar o cúrio no rejeito e, neste caso, 3.000 anos serão necessários.

O P&T pode ajudar a reduzir o tempo durante o qual os rejeitos nucleares devem ser isolados da biosfera de 130.000 anos para 500 a 1.500 anos. A curva de radiotoxicidade dos produtos de fissão dá o limite teórico para a redução total de radiotoxicidade no caso em que todos os actínídeos são separados e transmutados (isto é, sem perdas). Este tempo é de, aproximadamente, 270 anos.

Durante os primeiros anos, os produtos da fissão ^{137}Cs e ^{90}Sr determinam a toxicidade e a emissão de calor. De várias décadas a um período de 250.000 anos, o plutônio e os isótopos do amerício são os principais contribuintes para o radiotoxicidade. Para além de 250.000 anos, o ^{237}Np emerge juntamente com os produtos de decaimento do urânio.

É também de interesse ver como os principais componentes contribuem para a ingestão total de radiotoxicidade. Isto é mostrado na Figura 2.5, na qual os resultados são agrupados de acordo com os elementos químicos presentes no combustível irradiado, depois de seis anos de resfriamento. Nota-se que “U” refere-se à soma de

todos os isótopos de urânio depois de seis anos de resfriamento. Em tempos posteriores, o decaimento dos isótopos de urânio e de outros elementos químicos, também são contabilizados na curva U. A vantagem de agrupar desta maneira é que fica mais fácil ver os efeitos do partição.

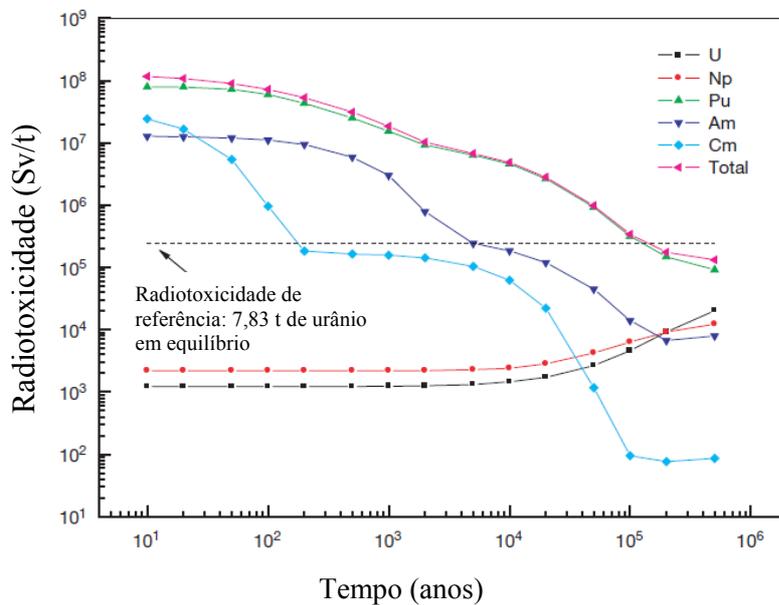


Figura 2.5 - Radiotoxicidade no combustível irradiado vs tempo. Os resultados estão agrupados por elementos presentes após seis anos de resfriamento (AIEA, 2004)

Nível de referência: ingestão de radiotoxicidade do urânio natural (em equilíbrio com seus produtos de decaimento = $1,47 \cdot 10^5$ Sv), necessário para produzir 1ton de combustível de urânio enriquecido (4,2% ^{235}U), JUNGHANS (2013).

Como pode ser visto na Figura 2.5, a maior parte da radiotoxicidade referente a ingestão total de substâncias tóxicas advém de isótopos de plutônio. Por volta de 200 anos, a radiotoxicidade do plutônio é de $4,3 \cdot 10^7$ Sv, isto é, um fator de 180 ($4,3 \cdot 10^7 / 2,4 \cdot 10^5$) acima do valor de referência indicado pela linha tracejada. Por outro lado, para reduzir a toxicidade do rejeito a níveis de referência nesta escala de tempo, a eficiência da remoção de plutônio precisa ser igual a 0,994 (isto é, $1 - 1/180$). De igual modo, em 200 anos, a radiotoxicidade do amerício é de $9,4 \cdot 10^6$ Sv (isto é, um fator de 40 maior do que o nível de referência). Assim, uma remoção eficiente necessita ser de aproximadamente 0,975 ($1 - 1/40$). As curvas do neptúnio e urânio estão muito abaixo dos níveis de referência.

Para o cúrio, pode ser visto que a radiotoxicidade em 200 anos é efetivamente inferior ao nível de referência, de modo que não há necessidade de removê-lo do rejeito. No entanto, isto depende da estratégia de P&T seguida. A radiotoxicidade do cúrio segue por 200-5.000 anos em um patamar em torno do valor de 10^5 Sv. Se o P&T do plutônio e amerício for eficaz em reduzir significativamente a radiotoxicidade total do rejeito, o cúrio pode ser deixado no rejeito (sua própria radiotoxicidade é abaixo do nível de referência).

2.4.1 Radiotoxicidade dos Produtos de Fissão

No contexto da redução do risco radiológico (relativo a um repositório geológico profundo), os produtos de fissão solúveis em água ^{129}I , ^{137}Cs , ^{135}Cs , ^{126}Sn e ^{79}Se são os radionuclídeos mais importantes, devido a uma combinação de toxicidade, meia-vida e concentração, NEA (2010).

O mais tóxico dos produtos de fissão é o ^{129}I , que tem uma toxicidade específica (Sv/Bq) semelhante à dos actínídeos. O cézio-137, um dos principais produtos de fissão no rejeito radioativo de alta atividade, tem uma toxicidade que é dez vezes inferior. Os outros produtos de fissão solúveis são menos tóxicos por duas ou três ordens de grandeza em comparação com os actínídeos.

Alguns produtos de fissão (por exemplo, ^{99}Tc e ^{107}Pd) apresentam meias-vidas longas, mas são apenas ligeiramente solúveis em meio redutor, condição característica em repositório geológico profundo.

2.4.2 Acondicionamento Avançado dos Actínídeos Menores

Um ciclo de combustível avançado com partição seguido por um acondicionamento adequado de radionuclídeos selecionados diminuirá substancialmente o risco de migração, mas não o perigo.

A separação dos actínídeos menores antes da vitrificação e acondicionamento especial destes radionuclídeos em matrizes de cerâmica ou cristalina com uma

solubilidade muito baixa em água subterrânea é o que irá oferecer vantagens substanciais na redução do risco de migração a longo prazo.

Contudo, tais práticas não reduzem o inventário radiotóxico e seu perigo associado. A redução do inventário dos actínídeos, ou sua meia-vida média, representa a única possibilidade para reduzir significativamente o perigo a longo prazo. Para atingir este objetivo apenas processos nucleares são capazes de modificar a natureza dos radioisótopos envolvidos e suas meias-vidas ou esquemas de decaimento.

2.4.3 Transmutação dos Actínídeos Menores

A maior redução do perigo pode ser obtida através da fissão (incineração) dos actínídeos principais, o que diminui a radiotoxicidade intrínseca por um fator de 100-1.000. Este processo nuclear é realizado com nêutrons rápidos, se estiverem disponíveis em excesso, por causa da economia de nêutrons por fissão. Para incineração dos actínídeos menores com nêutrons térmicos, o rendimento da transmutação é maior, mas a economia de nêutrons é menos eficiente devido à absorção.

Mesmo com partição e transmutação integrados no ciclo do combustível nuclear, uma quantidade substancial de material radioativo (produtos de ativação, actínídeos menores e traços de urânio e plutônio) acompanharão os produtos de fissão.

A irradiação dos actínídeos também leva à captura de nêutrons e à formação de outros actínídeos. Se a meia-vida desses actínídeos resultantes for menor, a radiotoxicidade aumentará proporcionalmente. Um exemplo é a transmutação de ^{237}Np , que conduz à geração de ^{238}Pu resultando num aumento da radiotoxicidade das frações transmutadas, que é proporcional à razão entre as meias-vidas ($2 \cdot 10^6$ e 87 anos, respectivamente). O risco do produto da irradiação, que é menos solúvel e de menor meia-vida, é menor do que o do nuclídeo inicial, mas a radiotoxicidade é quatro ordens de magnitude maior.

O inverso também pode ocorrer, por exemplo, com o ^{244}Cm de meia-vida 18,1 anos, o qual é gerado em combustíveis com altas taxas de queima. Após dez meias-vidas (~180 anos), 99,9% do cúrio terão decaído em Pu^{240} , com meia-vida de 6.560 anos. Por transmutação, o ^{244}Cm pode ser transformado em ^{245}Cm , com meia-vida de

8.500 anos, tendo a radiotoxicidade ligeiramente reduzida em comparação com o ^{240}Pu , produto de decaimento natural.

A partição dos actínídeos menores seguido pelo acondicionamento avançado é uma tecnologia complementar, que está sob investigação. Deve ser cuidadosamente analisada para determinar quais radionuclídeos se beneficiam da transmutação e que transmutador iria proporcionar um produto final mais limpo. Neste cenário de partição/acondicionado as frações particionadas permanecem disponíveis para uma possível transmutação no futuro, se esta tecnologia estiver totalmente implantada. A transmutação com fissão é atualmente a tecnologia mais eficaz para reduzir o inventário dos actínídeos e, conseqüentemente, sua radiotoxicidade e perigo a longo prazo, AIEA (2004).

2.5 Considerações sobre o Gerenciamento do Rejeito de Alta Atividade

Para se conceber um repositório, faz-se necessário inicialmente saber qual o rejeito que será depositado, suas propriedades e características de acordo com as quantidades de radionuclídeos presentes. Atualmente, grandes esforços estão direcionados ao desenvolvimento da tecnologia de partição e/ou transmutação, pois espera-se que esta tecnologia reduza o ônus do gerenciamento do rejeito radioativo de alta atividade. Os potenciais benefícios da introdução desta tecnologia no ciclo do combustível têm sido analisados e discutidos em termos da redução da toxicidade do rejeito, da dose ao público a partir do repositório e do volume total do rejeito radioativo, NISHIHARA et alii (2008).

Assim, o principal objetivo do partição e transmutação (P&T) é reduzir o inventário dos resíduos radiotóxicos de longo prazo (> 300 anos), tornando a sua eliminação segura e atenuar as incertezas inerentes às longas escalas de tempo. A transmutação apropriada de isótopos radioativos de meia-vida longa permite formar isótopos de meia-vida curta ou até mesmo estáveis. Essas tecnologias também visam reduzir o volume de rejeitos que requerem disposição em camadas geológicas profundas e, portanto, os requisitos de espaço e custos associados. Os principais objetivos da partição e transmutação são:

(a) A redução do risco associado com o combustível irradiado a médio e longo prazo por uma redução significativa do estoque de plutônio e actínidos menores.

(b) A redução do intervalo de tempo necessário para os nuclídeos decaírem a um nível de referência de inventário de radiotoxicidade através da reciclagem dos elementos transurânicos.

(c) Uma diminuição do volume de rejeito pela separação do urânio, para permitir o armazenamento ou disposição mais eficiente. Isto deve resultar num melhor aproveitamento do repositório, aumentando sua capacidade efetiva. No entanto, esta abordagem pode exigir manuseio especial de estrôncio e cézio depois da partição.

Progressos científicos têm sido feitos na construção da barreira metálica e em tecnologia de mineração. No entanto, ninguém pode garantir total confinamento dos materiais radiotóxicos em estruturas feitas pelo homem para além de 10.000 anos. A redução da solubilidade dos radionuclídeos de meia-vida longa em águas subterrâneas pode ser um primeiro passo para reduzir a migração. Particionar os rejeitos nucleares e acondicionar os radionuclídeos de meia-vida longa em matrizes estáveis pode ser um segundo passo nessa direção antes da disposição, IAEA (2004).

O P&T tem potencial para abrir novos caminhos para a gestão de rejeito de meia-vida longa e para reduzir o risco radiológico (em termos de magnitude e duração), para atenuar a evolução do calor de decaimento (por exemplo, eliminando os actínidos de meia-vida longa geradores de calor) e para reduzir as quantidades dos radionuclídeos fisséis e/ou férteis que apresentam preocupações com relação à proliferação.

Assim, esta técnica tende a contribuir para a redução do inventário radioativo e da radiotoxicidade associada por um fator de 100 ou mais, para a redução do tempo necessário a aproximar a radioatividade do rejeito dos níveis de radioatividade das matérias-primas: urânio e os seus produtos de decaimento em equilíbrio, originalmente utilizados para produzir energia.

Enquanto os países que fazem uso intenso de energia nuclear são potencialmente capazes de desenvolver uma atividade de P&T autossustentada, os países com programas mais modestos estão estudando o impacto desta tecnologia em seus próprios programas de gestão de rejeito. Se a geração nucleoe elétrica expandir e for operada por

mais dezenas de anos, a reciclagem e reutilização de material fissil e fértil se tornarão uma necessidade. Em contrapartida, a disposição dos nuclídeos radiotóxicos de meia-vida longa por P&T reduziria o inventário radiotóxico e o ônus para as gerações futuras.

A introdução da opção de P&T em escala industrial é uma questão a longo prazo com aspectos econômicos, técnicos e políticos, que têm de ser pesados em relação ao benefício radiológico a longo prazo. Segundo WHIPPLE (2010), em um horizonte de 1.000 anos, há pouca diferença entre o armazenamento do combustível irradiado e armazenamento de HLW uma vez que o ^{241}Am determina o risco radiológico. Para tempos superiores a 1.000 ou até 100.000 anos, o teor de Pu no combustível irradiado é o mais importante em termos de carga radiológica. No caso de HLW vitrificado resultante do reprocessamento convencional, o ^{241}Am e o ^{243}Am são os radionuclídeos mais importantes. Para um horizonte muito longo (10^5 a 10^6 anos) ^{237}Np , ^{129}I e ^{99}Tc constituem os radionuclídeos mais críticos cujo confinamento não pode ser assegurado pelo depósito geológico.

A partição é uma tecnologia que pode ser considerada como uma forma de “super-reprocessamento”, no qual o urânio, plutônio e iodo (^{129}I) são removidos durante o processamento, e os actinídeos menores e os produtos de fissão de meia-vida longa (^{99}Tc e $^{137,135}\text{Cs}$) podem ser extraídos a partir do rejeito líquido de alta atividade. Alguns produtos de fissão de meia-vida longa que são significantes nas avaliações de disposição de rejeito a longo prazo (por exemplo, ^{93}Zr , ^{107}Pd e ^{97}Se) não podem ser extraídos, a menos que seja considerada a separação isotópica.

A partição não cria novas substâncias radioativas; ele lida com o mesmo inventário de radionuclídeos como no reprocessamento tradicional PUREX. Contudo, podem surgir dificuldades consideráveis devido às maiores taxas de queima ou menores tempos de resfriamento. O partição requer processamento adicional do combustível irradiado (isto é, novas etapas nos fluxogramas de processamento e instalações mais complicadas resultando em um aumento no risco). O manuseio de materiais altamente radiotóxicos, como amerício e cúrio obtidos e separados numa forma concentrada têm alta taxa de emissão gama e/ou de nêutrons e estão associados a complexos problemas de blindagem.

A partição gera mais radionuclídeos individuais (por exemplo, iodo, tecnécio e neptúnio) ou grupos de radionuclídeos com propriedades químicas semelhantes, os quais podem ser gerenciados de forma mais segura para o armazenamento intermediário a longo prazo ou disposição (e.g., amerício e cúrio).

Um acondicionamento adequado, que resulta em redução da solubilidade, é a abordagem mais utilizada. A incorporação em uma matriz estável reduz o risco de migração, caso a forma do rejeito entre em contato com a água subterrânea durante o período de armazenamento.

No entanto, grandes mudanças na segurança surgirão em um ciclo de combustível com partição e transmutação devido à transição para os novos combustíveis, que são geralmente muito mais radioativos, tanto antes quanto após a irradiação, com altos níveis de calor residual e produção de hélio resultante da emissão de radiação alfa. A transmutação requer novas instalações de fabricação de combustível e tecnologias de irradiação, que devem ser desenvolvidas e implantadas em escala industrial, IAEA (2004).

Um dos principais objetivos da P&T é o de reduzir o perigo a longo prazo do combustível irradiado ou HLW, este perigo está associado com a própria fonte radioativa.

Em contraste, na gestão de rejeito o risco radiológico a longo prazo é salientado, este risco radiológico a longo prazo é uma combinação do perigo e das propriedades de confinamento do meio geológico. As medidas que devem ser tomadas para a redução do perigo são muito diferentes e muito mais fundamentais do que aquelas para redução do risco.

Para se obter um fator de redução de 1.000 na radiotoxicidade total do rejeito, tem de ser atingida uma recuperação de 99,9% de cada um dos elementos transurânicos durante as operações de reprocessamento-partição. Com uma redução de 100 vezes no teor de transurânicos, esta redução na radiotoxicidade poderia, teoricamente, ser alcançado em menos de 1.000 anos, NEA (2006).

Assim, uma redução de 100 vezes na quantidade de transurânicos no rejeito em comparação com o ciclo de combustível aberto não pode ser alcançada em um único ciclo do reator. A reciclagem múltipla será, portanto, necessária.

Na verdade, o sistema ideal de P&T deverá ter um ciclo do combustível totalmente fechado para os transurânicos. Apenas os produtos de fissão entrarão no fluxo de rejeito, junto com uma fração de 0,1% do acumulado e/ou reciclado dos transurânicos. Dadas as limitações das instalações, tal sistema deverá ser operado por várias décadas até que o equilíbrio seja atingido entre o núcleo e a saída radiotóxica de rejeito.

As implicações econômicas de uma política de P&T não podem ser desprezadas. A decisão de reduzir o estoque radiotóxico do material nuclear por transmutação é um passo importante que deve ser tomado pelas autoridades responsáveis.

2.6 Repositório para Rejeitos Radioativos de Alta Atividade

Três principais tipos de rochas hospedeiras estão atualmente sob investigação: o granito, rochas sedimentares (argilas) e sal. Nos EUA, tufos vulcânicos também estavam em estudos (*Yucca Mountain*). Dependendo da rocha hospedeira, diferentes ênfases são dadas nos diversos elementos do sistema de disposição, FALCK e NISSON (2009).

Em granitos existem rotas de migração distintas, mas a sua frequência e duração são difíceis de avaliar quantitativamente. Por esta razão, tem-se dado uma ênfase maior à integridade das embalagens dos rejeitos, o *buffer/backfill* e outros elementos de engenharia do próprio repositório. Sistemas graníticos estão sob investigação na Suécia, Finlândia e Suíça (como uma segunda opção), República Checa e Espanha, FALCK e NISSON (2009).

Formações de argila são escolhidas de tal modo que os caminhos distintos na forma de fraturas são mínimos. Assim, a capacidade de retenção das rochas hospedeiras pode desempenhar um papel importante na retenção de qualquer radionuclídeos e menos ênfase pode ser colocada, em termos relativos, em outros componentes do

sistema. Bélgica, França e Suíça estão investigando essa opção em vários tipos de argilas, FALCK e NISSON (2009).

Nas formações salinas o principal vetor para a migração de radionuclídeos, água nos poros, é praticamente ausente. Assim, os vários elementos da barreira podem ter uma ponderação mais equilibrada. A Alemanha é o único país que considera esta opção, FALCK e NISSON (2009).

Espera-se que o ambiente geológico contribua para a segurança do sistema de disposição por três caminhos principais:

(a) prover isolamento físico da forma do rejeito da superfície próxima e de possíveis falhas que venham a ocorrer;

(b) manter o ambiente geoquímico, hidrogeológico e geomecânico favorável à preservação e desempenho do EBS; e

(c) atuar como uma barreira natural, restringindo o acesso de água para o rejeito e a migração dos radionuclídeos imobilizados, IAEA (2003).

A importância relativa destas três características não é a mesma em todos os sistemas de deposição. Desta forma, variações significativas são possíveis como consequência da natureza da rocha hospedeira e do projeto do repositório.

Assim, para um repositório em granito, as características (a) e (b) são as mais importantes, enquanto para um repositório em formação salina ou argilosa, a característica (c) domina.

A Tabela 2.2 apresenta os programas para repositórios finais para rejeitos de alta atividade de acordo com AREVA NP (2008).

Tabela 2.2 - Programas para repositórios finais para rejeitos de alta atividade (AREVA NP, 2008)						
País	Reprocessamento	Disposição final direta	Descrição do programa	Laboratório subterrâneo	Sítio candidato para o repositório final	Geologia
Bélgica	X		Investigação da formação de argila em Boom com HADES para adequação para todos os tipos de rejeitos.	HADES URF, Mol	Mol	Argila
Canadá		X	Demonstração de conceito no Laboratório de Pesquisa Subterrânea em Pinaba, Manitoba.	URL		Granito
Finlândia		X	Sítio aprovado pelo parlamento. Procedimento de licenciamento para começar em 2015, começo da operação programada para 2025.	Onkalo	Olkiluoto	Granito
França	X		Conceito referência é o armazenamento geológico profundo com recuperabilidade. Procedimento de licenciamento a partir de 2015, operação a partir de 2025.	Bure	Bure	Argila
Alemanha	X 1)	X 2)	Investigação do sítio Gorleben desde 1979. Contudo, moratória política desde 2000 por um máximo de 10 anos.	Asse (localização e pesquisa completada)	Gorleben (possivelmente sítios alternativos)	Sal (argila) (granito)
Japão	X		Dois laboratórios subterrâneos sob construção.	Mitzunami Horonobe (em Hokkaido)		Granito Rocha sedimentar
Rússia	X		Inspeção de possíveis sítios na península de Kola.		Península de Kola	Granito
Espanha		X	Inspeção de formações geológicas favoráveis completadas. Decisão do sítio após 2010.	-		Granito Argila
Suécia		X	Atualmente, caracterização detalhada de dois sítios voluntários. Seleção de sítio programada para 2009.	Stripa (até 1992) HRL Äspö		Granito
Suíça	X	X	Viabilidade técnica de um repositório final confirmada pelo governo em 2006. Seleção do sítio em progresso.	Grimsel Mont Terri	Benken	Granito Opaline clay
Reino Unido	X		Decisão em princípio a favor do armazenamento geológico profundo	-	-	
USA*		X	Sítio aprovado pelo Presidente e Congresso em 2002. Procedimento de licenciamento em progresso. Início da operação programada para 2017.	Yucca Mountain (Nevada)	Yucca Mountain (Nevada)	Tufo vulcânico

1) Reprocessamento permitido até meados de 2005

2) Disposição final direta permitida desde 1994

*Programa cancelado pela gestão Obama, EIA/Doe (2011)

2.6.1 Conceito de Disposição Geológica Profunda

O objetivo fundamental da disposição geológica é reter os radionuclídeos nas barreiras de engenharia e/ou na rocha hospedeira para que eles não alcancem a biosfera. O armazenamento geológico depende de uma sequência de barreiras complementares e/ou redundantes (o conceito de defesa em profundidade), ou seja, a forma do rejeito, a cápsula, o preenchimento - *buffer/backfill* e a rocha hospedeira, Figura 2.6.

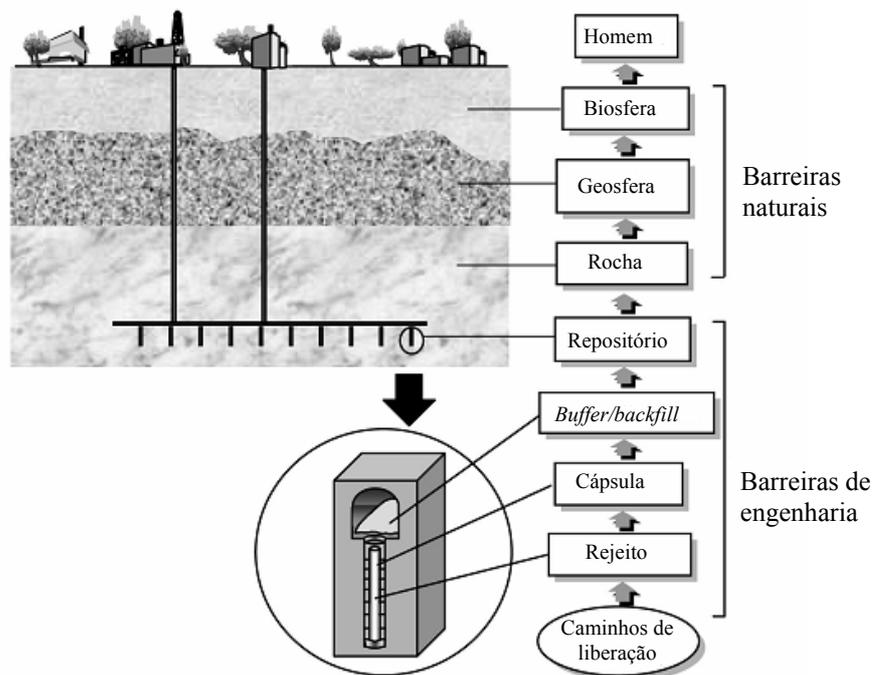


Figura 2.6 - Caminhos da liberação dos radionuclídeos e o conceito de multibarreiras para a disposição geológica profunda, (BAIK et alii, 2008)

Cada componente natural ou de engenharia do sistema de disposição é considerado para cumprir determinadas funções, isoladamente ou em combinação, de forma que a falha de um componente não comprometa a segurança do repositório. As barreiras de engenharia são projetadas para fornecer completo confinamento dos radionuclídeos por um período de algumas centenas a milhares de anos. Depois deste tempo, podem se degradar, permitindo a penetração da água subterrânea na forma do rejeito, mudando então sua função para limitadoras da liberação dos radionuclídeos dissolvidos.

A segurança a longo prazo deve ser fornecida sem depender de controles ativos ou manutenção contínua. Os depósitos geológicos são, portanto, concebidos para serem passivamente seguros, de modo que o controle institucional, indefinido e contínuo, não se faz necessário para garantir a segurança. O controle institucional, no entanto provavelmente será mantido por um longo período inicial para dar garantias adicionais e cumprir salvaguardas e requisitos de segurança, IAEA (2001).

As principais características que regem a gestão do combustível irradiado e rejeitos de alta atividade são o teor de radioatividade de meia-vida longa do combustível irradiado ou HLW – *High Level Waste*, a geração de calor e o nível de radiação. A geração de calor limita a quantidade de rejeito que pode ser disposta em um determinado volume de rocha. Altos níveis de radiação exigem que todo o tratamento do rejeito seja blindado e/ou utilize sistemas de manipulação à distância. E a quantidade de radioatividade de meia-vida longa significa que a segurança de um repositório é uma questão que deve ser considerada por dezenas a centenas de milhares de anos.

2.6.2 Modelo Genérico para um Repositório Hipotético Baseado no Modelo KBS-3

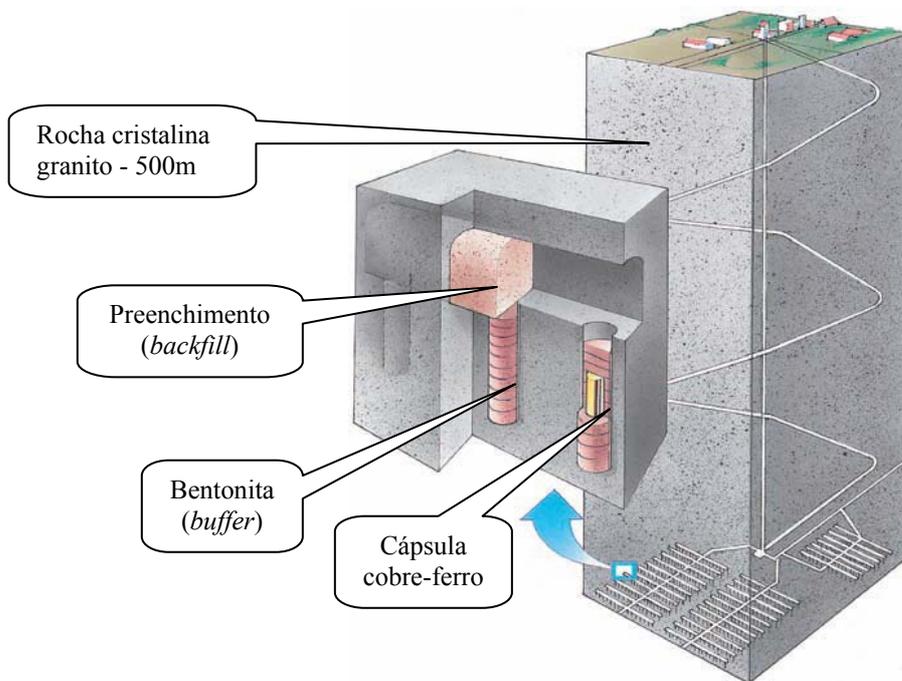


Figura 2.7 - Conceito de armazenamento do combustível irradiado KBS-3, (BAIK et alii, 2008)

Este conceito de repositório para combustível nuclear irradiado, KBS-3 de disposição consiste nos seguintes passos conforme a Figura 2.7:

1. O combustível irradiado é primeiro estocado em armazenamento temporário por 30 anos.
2. Após o período de estocagem, o combustível irradiado é encapsulado em cápsulas de aço-boro, sendo que para elementos do PWR, as cápsulas comportam 4 elementos combustíveis irradiados.
3. As cápsulas de aço-boro são alocadas em cápsulas de cobre de 50 mm.
4. As cápsulas de cobre são depositadas em cavidades de deposição verticais perfuradas nos pisos dos túneis de deposição (de 8m de profundidade e 2m de diâmetro) e são preenchidos com argila bentonítica (*buffer*)
5. Após todas as cavidades serem preenchidas os túneis são selados (*backfill*). Estes túneis se encontram a uma profundidade de 500m em meio geológico saturado.

A estrutura rochosa é fissurada mesmo a esta profundidade e a água infiltra-se por estas fissuras. A grande distância – da ordem de quilômetros, longas zonas são observadas. Estas zonas são chamadas lineamentos, e são geralmente verticais ou proximamente verticais e se estendem a grandes profundidades. Considera-se que o repositório estará situado na rocha menos fraturada. Se a cápsula de cobre se degradar, e a água entrar em contato com o combustível irradiado, os radionuclídeos poderão ser lixiviados pela água subterrânea que se infiltra no repositório. Os radionuclídeos primeiro se moverão na rocha sã e então, eventualmente, emergirão no lineamento. Este pode ter fluxo ascendente e, assim, conduzir estes radionuclídeos para a biosfera, NERETNIEKS e RASMULSON (1983). A Figura 2.8 mostra um diagrama esquemático de um modelo de avaliação de desempenho, MILLER et alii (2000).

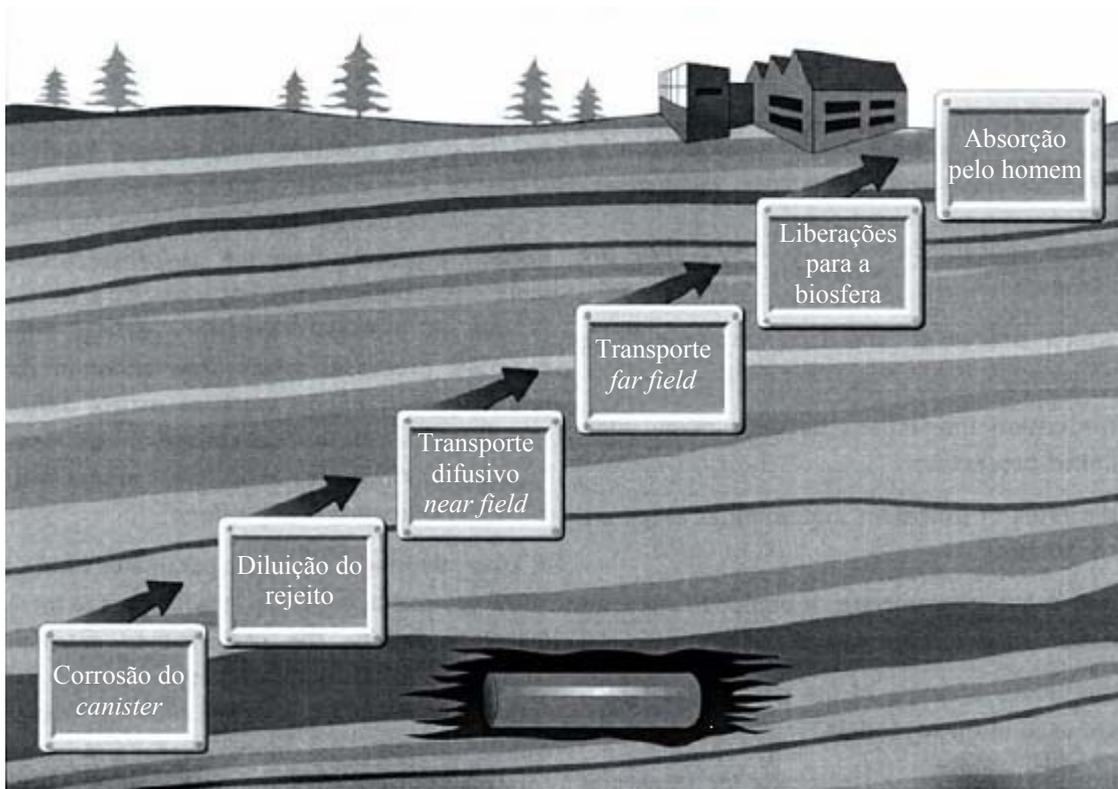


Figura 2.8 – Diagrama esquemático de um modelo de avaliação de desempenho, (MILLER et alii, 2000)

Um modelo de avaliação de desempenho inicia-se com modelos de degradação das barreiras de engenharia e da forma do rejeito, levando a modelos de emissões para a superfície e absorção pelos seres humanos. O ponto final de muitos cálculos de avaliações de desempenho são as previsões de dose e risco radiológicos para os seres humanos que vivem na vizinhança do repositório.

Ainda para o sistema de armazenamento geológico, distinguem-se duas zonas na barreira geológica:

- O *near-field* é a zona da geosfera perturbada direta e rapidamente através do repositório. As perturbações podem ser térmicas, mecânicas, hidráulicas e químicas. Geram gradientes elevados (tensão, pressão, temperatura e concentração). O sistema é bem caracterizado (sabe-se o que o repositório contém), mas sua descrição é difícil porque os fenômenos que ocorrem no *near-field* são acoplados. Abrange as barreira de engenharia e uma parte da barreira geológica: a zona de dano de escavação - EDZ, ("*Excavation Disturbed Zone*").

- O *far-field* é a zona da geosfera não perturbada diretamente pelo repositório, que se estende até a biosfera. Os gradientes são pequenos, os acoplamentos termo-hidro-mecânico-químicos são fracos. Os fenômenos são mais simples de descrever, mas o meio geológico é geralmente mal caracterizado e heterogêneo. O *far-field* engloba a barreira geológica menos a zona de dano de escavação.

2.7 Análogos Naturais e Arqueológicos

A disposição de rejeito nuclear é um exemplo extremo de “empacotamento” dos radionuclídeos. Uma das responsabilidades da indústria nuclear é demonstrar que um repositório subterrâneo pode conter o rejeito nuclear por longos períodos de tempo e que quaisquer liberações que venham a ocorrer no futuro, não representem um risco significativo para a saúde ou meio-ambiente, MILLER et alii (2000). Deve ser levado em conta que as barreiras artificiais que inicialmente contêm o rejeito se degradarão e alguns radionuclídeos podem migrar para a superfície em baixas concentrações, em algum momento no futuro, devido ao movimento das águas subterrâneas através das barreiras naturais do repositório e devido às mudanças ambientais (por exemplo, as mudanças climáticas e os fenômenos geológicos).

Uma maneira de adquirir confiança nas barreiras naturais e artificiais é estudar os processos que operam em sistemas naturais e arqueológicos, fazendo um paralelo apropriado com um repositório, IAEA (2003). Estes processos são chamados análogos naturais. Cuidadosamente aplicados, os análogos proveem ilustrações úteis do conceito desenvolvido, dando, por exemplo, evidência natural da longevidade dos materiais do repositório no ambiente considerado ou que as substâncias radioativas podem ser imobilizadas em sistemas naturais. Ocasionalmente, podem prover informação quantitativa direta de valores de parâmetros, por exemplo, taxa de corrosão de metais, a evolução da química do cimento no tempo ou o comportamento geoquímico dos radionuclídeos que deve ser semelhante ao encontrado em minas de urânio ou tório em condições geológicas não perturbadas.

Modernas barreiras feitas pelo homem podem proporcionar isolamento de todos os tipos de materiais por milhares de anos, período durante o qual a maioria dos produtos de fissão decaem completamente, MILLER et alii (2000).

2.7.1 Análogos Naturais

Existem muitos materiais radioativos que ocorrem naturalmente e que podem ser encontrados em rochas e sedimentos. Em particular, o urânio, o qual é o principal componente do combustível nuclear, ocorre na natureza. Ao estudar sua distribuição na natureza, podem-se obter informações sobre o movimento do urânio em rochas e águas subterrâneas.

Análogos naturais fornecem uma maneira de informar ao público sobre os processos que ocorrem em um repositório. Um dos conceitos que pode ser apresentado utilizando análogos é a degradação muito lenta de materiais ao longo de milhares de anos, IAEA (2004). Alguns exemplos de análogos naturais:

- A floresta Dunarobba. Troncos de árvores mortas na floresta Dunarobba na Itália têm cerca de 2 milhões de anos. Em contraste com fósseis típicos de árvores, as árvores em Dunarobba ainda são compostas de madeira, uma vez que a madeira tem sido preservada pela argila que bloqueou o acesso da água. As árvores em Dunarobba têm relevância no conceito de repositório, pois a madeira é considerada análoga aos materiais orgânicos que compreendem uma parte do rejeito.
- O sítio de Needle's Eye. Este sítio no sudoeste da Escócia, compreende uma falésia em que os veios de minério de urânio e outros metais estão parcialmente expostos. O processo de dissolução leva a uma perda preferencial de ^{234}U em relação ao ^{238}U . O local é ideal para investigar a migração de radionuclídeos.
- O reator natural de fissão Oklo. Reações de fissão ocorreram em Oklo na África Ocidental de forma intermitentemente há 10^5 - 10^6 anos. O reator de fissão natural em Oklo pode ser considerado como análogo para repositório de rejeito radioativo, e também pode ser utilizado para estudar o comportamento do transporte de radionuclídeos transurânicos e a estabilidade de minerais de urânio que foram submetidos à criticalidade.

2.7.2 Análogo Societal

Baseado nos objetivos de partição/transmutação pode ser apenas necessário demonstrar contenção ao longo de um período de 500-700 anos, em vez de centenas de milhares de anos, no caso de decaimento natural. Nesta escala de tempo reduzida, existem muitos exemplos de objetos feitos pelo homem que resistiram à degradação. Alguns exemplos são as construções erguidas pelos faraós egípcios e imperadores romanos e muitos objetos de uso diário em sofisticadas culturas antigas, AIEA, (2004).

- As pirâmides egípcias. De acordo com descobertas recentes, as pirâmides do Egito foram construídas com cimento natural que resistiram às condições atmosféricas naturais da região semidesérticas do norte do Egito por 4.700 anos. Muitos objetos religiosos em madeira, metal e têxtil foram encontrados intactos nas tumbas.
- Edifícios romanos. O exemplo mais notável é o Panteão, que foi construído pelo imperador romano Vespasiano (118-125 dC) e ainda permanece intacto depois de 2.000 anos no meio da movimentada cidade de Roma. O concreto romano foi feito através da mistura de cinzas vulcânicas (cinzas pozolânicas) com areia e água. Modernas espécies de cimento Portland podem ser feitos tão resistentes como estes exemplos arqueológicos, se for dada a devida atenção à natureza e à temperatura de queima (~ 1.450 °C) do silicato de cálcio hidratado antes da mistura com areia e água.
- Pregos do forte de Inchtuthil. Estes pregos romanos foram descobertos na década de 1950 em Perth, Reino Unido. Mais de um milhão de pregos havia sido enterrado em uma cova de 5m e coberto com terra compactada. Os pregos na periferia foram seriamente corroídos. Os pregos mais internos, no entanto, apresentaram uma corrosão moderada. Isso foi atribuído ao fato de os pregos periféricos removerem o oxigênio da água subterrânea infiltrante de modo que no momento em que a água entrou em contato com os pregos internos já se encontrava menos corrosiva. Do mesmo modo, espera-se que os grandes volumes de ferro utilizados nas cápsulas de rejeito mantenham as condições

quimicamente redutoras num ambiente que é rico em oxigênio devido à decomposição radiolítica de água.

- O canhão Kronan. Um dos canhões de bronze a bordo do Kronan, um navio de guerra sueco afundado em 1676, manteve-se parcialmente enterrado em uma posição vertical, envolto por sedimentos argilosos, desde que o navio afundou. Este canhão é uma boa analogia para a cápsula a ser usada no repositório de combustível irradiado, que tem uma camada externa de cobre. A partir de uma análise da superfície do canhão, uma taxa de corrosão de 0,15 $\mu\text{m/a}$ foi estabelecida. Com essa taxa de corrosão, levaria cerca de 70.000 anos para corroer um 1cm de espessura de cobre. Isso fornece evidência para a durabilidade da cápsula de cobre do combustível irradiado em um repositório
- Muralha de Adriano. A Muralha de Adriano, no Reino Unido, foi construída em 122 dC a partir de blocos de pedra colados. A parede é de interesse como um análogo devido à longevidade do cimento romano usado para ligar as pedras em conjunto. O cimento Portland moderno é muito semelhante química e mineralogicamente. A partir desses estudos, é possível tirar conclusões quanto à estabilidade e longevidade do cimento moderno em repositório.

2.8 Descrição de alguns Trabalhos da Literatura

Em vários países o conceito de deposição geológica está em estágio experimental e demonstrativo. As avaliações detalhadas de risco estão sendo realizadas e programas de pesquisa e desenvolvimento vêm progredindo rapidamente, aumentando o número de resultados e auxiliando na tomada de decisões. Um exemplo é o projeto intitulado DECOVALEX (acrônimo para *DEvelopment of COupled models and their VALidation against EXperiments*) que foi instituído em 1992, por autoridades reguladoras e organizações de gerenciamento de rejeito envolvidas na disposição do rejeito nuclear, para cooperarem no desenvolvimento e testes de modelos capazes de simular processos acoplados THM (termo-hidro-mecânico), BIRKHOLZER (2005).

Objetivos do projeto:

- Apoiar o desenvolvimento de simuladores computacionais para os processos THM em sistemas geológicos;
- Investigar e implantar algoritmos apropriados para a modelagem THM;
- Comparar os resultados dos modelos com os resultados de experimentos de campo e laboratório;
- Projetar novos experimentos para dar suporte aos códigos e no desenvolvimento de modelos;
- Estudar a aplicação da modelagem THM para avaliar o desempenho e a segurança de repositórios de rejeitos nucleares.

Como exemplo, para a região “*near-field*” o BMT1 (*Bench Mark Test nº1*) foi proposto para estimar como os processos THM podem influenciar os modelos de escoamento, assim como a integridade estrutural das barreiras geológicas e de engenharia de um típico repositório de rejeito nuclear de alta atividade. A definição foi baseada em um repositório hipotético de rejeito nuclear em rocha granítica com profundidade de 1.000 metros.

Na fase A do BMT1, os modelos THM (termo-hidro-mecânico) usados pelos grupos de pesquisa foram ajustados com medidas THM obtidas de experimentos com aquecedores *in situ*. Todos os modelos simularam razoavelmente os fenômenos físicos fundamentais, sendo a saída térmica a melhor simulada e a tensão de expansão da bentonita o parâmetro mais difícil de simular, CHIJIMATSU et alii (2005).

Na fase B, as equipes de pesquisa usaram os modelos THM nos cálculos para um repositório em rocha homogênea. A análise do processo THM totalmente acoplado apresentou falha localizada na rocha. Também ressalta características importantes na ressaturação do *buffer/backfill*, na evolução da permeabilidade da massa de rocha e no desenvolvimento da tensão de expansão no *buffer*. Os efeitos do acoplamento nas características acima parecem ser amplificados quando a permeabilidade da rocha é pequena. A temperatura é o único parâmetro de saída que não é influenciado significativamente pelo acoplamento, MILLARD et alii (2005).

Na fase C, RUTQVIST et alii (2005), as equipes de pesquisa desenvolveram cálculos para os casos onde uma e para várias fraturas discretas condutoras de água interceptam o repositório. Como na fase B, o campo de temperatura mostra aproximadamente nenhuma diferença entre os cálculos THM, TH, TM e é muito similar à fase B. As fraturas aceleram a ressaturação do *buffer/backfill* e evitam a dessaturação da rocha. A partir do ponto de vista mecânico, as fraturas constituem uma zona de fraqueza e resultam numa zona de dano mais extensa quando comparada com o cenário homogêneo. Cálculos TH ou THM produzem campos de pressão neutra ou poro-pressão similares. Com relação às tensões no *buffer*, as conclusões são similares para os cenários homogêneos, com efeito predominante da poro-pressão na tensão total quando comparadas com a tensão térmica.

Três fases do projeto DECOVALEX foram concluídas na última década, com destaque para os processos acoplados termo-hidro-mecânicos. Atualmente, uma quarta fase do projeto de três anos do DECOVALEX está em curso, denominada DECOVALEX-THMC. THMC significa processos térmicos, hidrológicos, mecânicos e químicos. O novo estágio do projeto visa expandir o alcance tradicional geomecânico das etapas do DECOVALEX anterior incorporando processos geoquímicos importantes para o desempenho do repositório, BIRKHOLZER (2005).

Na literatura podem-se encontrar trabalhos que transmitem uma visão geral sobre a migração de radionuclídeos, tanto nas características quanto na modelagem da migração. São exemplos os trabalhos de KRAUSKOPF (1988), WILLIAMS (1996), ANDERSSON et al. (1998) e MALEKIFARSANI e SKACHEK (2009).

KRAUSKOPF (1988) faz uma descrição das formas de rejeitos radioativos de alta atividade quanto à sua origem, realça a necessidade de sua disposição e comenta a sua quantidade gerada e composição. Descreve possíveis formas de disposição; critérios para os sítios de disposição; barreiras de engenharia e geológicas; rochas apropriadas para hospedar o repositório. Comenta a dificuldade da modelagem da liberação radioativa, mencionando possíveis modelos e cenários de liberação, e descreve os fenômenos relativos ao movimento dos radionuclídeos, como solubilidade, sorção, dispersão, difusão e diluição; e realça a importância dos análogos naturais para validar os modelos de transporte.

Das várias aproximações utilizadas para modelar o transporte de radionuclídeos, essencialmente há três procedimentos padrões discutidos em WILLIAMS (1996): Teoria Clássica da Convecção-Dispersão; Método de Dupla Porosidade e Geração por Monte Carlo de Fraturas Aleatórias e Trajetória do Sóluto.

Alguns conceitos gerais para a avaliação de desempenho na região *near field* são descritos em ANDERSSON et al. (1998). Nesse trabalho são apresentados alguns pontos de vista sobre como modelar o escoamento subterrâneo e a migração de radionuclídeo na rocha cristalina, e como essa afeta a liberação *near field*. Analisa alguns códigos *near field*, e.g., CALIBRE, TULLGARN, REPCOM, PAGODA; e alguns códigos *far field*, KBS-3, SKB-91, TVO-92, SITE-94. Examina que parâmetros *near field* afetam as liberações, fazendo uma análise de sensibilidade dos parâmetros.

Com relação às zonas da barreira geológica, MALEKIFARSANI e SKACHEK (2009) realizou uma modelagem *near-field* alimentando um modelo *far-field* de migração de radionuclídeos, para rejeito vitrificado e considerou que as cápsulas falhariam após 1000 anos. Desta forma, uma consideração subsequente realizada foi que a temperatura no repositório seria a mesma da rocha hospedeira, podendo, assim, utilizar parâmetros hidráulicos constantes na região *near-field*.

Códigos numéricos têm sido usados para simular o transporte de radionuclídeos em sistemas de rocha fraturada. A validação de tais códigos numéricos pode ser realizada pela comparação das simulações numéricas com as soluções analíticas. Como exemplo de modelos baseados em aproximações analíticas encontram-se na literatura NAIR e KRISHNAMOORTHY (1997), CHEN e LI (1997), PARK, HWANG e LEE (2001), SUN e BUSCHECK (2003) e AHN (2007).

Em NAIR e KRISHNAMOORTHY (1997) um modelo simples foi desenvolvido para estudar a migração. Os resultados indicaram a necessidade de refinamento no modelo e na base de dados para a análise de segurança durante o estágio de seleção do sítio. A matriz do repositório é modelada como um sistema cilíndrico contendo uma fratura circular no seu centro. A migração de radionuclídeos é descrita usando duas equações acopladas, uma para a fratura e outra para a matriz. Fez-se uma análise de sensibilidade de parâmetros hidrológicos. O modelo é simples e desempenha um análise de segurança rápida com exigências mínimas de recursos computacionais.

Uma solução analítica para o problema do transporte de radionuclídeos em um sistema de fraturas paralelas foi desenvolvida por CHEN e LI (1997). As fraturas em meios porosos reais podem ser distribuídas irregularmente. Por simplicidade, as fraturas são assumidas ser idênticas, planares, paralelas, e equidistantes. Fez-se uma análise de sensibilidade de alguns parâmetros importantes. Os resultados mostraram que a distância entre fraturas pode ter um efeito significativo na concentração. Se a velocidade da água subterrânea for mantida constante, uma distância menor entre fraturas conduzirá a uma distância maior da penetração ao longo das fraturas, por causa da capacidade limitada da matriz porosa para armazenar os radionuclídeos. Se for grande o bastante, a concentração em uma fratura será muito próxima àquela para um sistema de fratura única.

Resultados de estudos de campo indicam que uma parcela da rocha matriz circunvizinha está disponível para a difusão dos radionuclídeos. Desta forma, os modelos de difusão para uma matriz infinita enfatizam o retardo causado pela difusão na matriz. Para julgar se os modelos conceituais para a avaliação de desempenho são conservadoras ou não, uma nova modelagem matemática foi realizada por PARK, HWANG e LEE (2001). Os resultados indicaram que para valores pequenos da distância entre a interface da fratura e a zona impermeável, as concentrações normalizadas afastam-se daquelas sem a zona impermeável. Consequentemente, para uma avaliação conservadora de desempenho, este modelo desenvolvido estima melhor as concentrações em uma fratura. Entretanto, para valores grandes desse parâmetro, os dois casos são quase idênticos.

SUN e BUSCHECK (2003) apresentam soluções analíticas para o transporte reativo de cadeias de radionuclídeos de *N-membros*, através de fratura discreta em matriz porosa. Os processos considerados são convecção ao longo da fratura, difusão lateral na matriz, decaimento radioativo dos múltiplos radionuclídeos, e adsorção na fratura e na matriz (as reações são irreversíveis). As soluções são desenvolvidas para as condições de contorno de concentração constante e pulso.

AHN (2007) apresenta resultados de uma análise determinística para o impacto ambiental no repositório de *Yucca Mountain, Nevada*. Neste estudo, o impacto ambiental do repositório, no tempo t anos após a colocação dos pacotes de rejeito no repositório é definido como a soma da radiotoxicidade dos radionuclídeos transurânicos

e produtos de fissão, que foram liberados do repositório após a falha e dos que existem na região exterior ao repositório no tempo t .

Para exemplificar estudos numéricos para o transporte de radionuclídeos encontram-se na literatura: BUCKLEY e LOYALKA (1995), BAEK e PITT JR (1996), ODLING e RODEN (1997), YUDI e IMARDJOKO (2000), AMANO et alii (2003), WU, LIU e BODVARSSON (2004), FAIRHURST (2004), MIN et alii (2005),

BUCKLEY e LOYALKA (1995) fazem investigações numéricas do transporte de soluto em um meio fraturado, que consiste em uma fratura plana cercada por uma matriz rochosa. O transporte no líquido é descrito por equações da convecção-difusão, enquanto as interações no contorno na matriz rochosa foram modeladas por meio de isotermas. Técnica numérica utilizada: diferenças finitas com esquema NND (não oscilatório, sem parâmetros livres e dissipativo) no termo convectivo.

A presença de colóides pode aumentar o transporte dos radionuclídeos na água subterrânea reduzindo o efeito de retardo. Os colóides que existem na água subterrânea atuam como portadores, absorvendo os radionuclídeos em sua grande área superficial e movendo-os mais rápido do que a velocidade média da água. Em BAEK e PITT JR (1996) métodos numéricos foram aplicados para a predição do transporte de radionuclídeo facilitado por colóide através de rocha porosa fraturada saturada. Os resultados indicaram que o contaminante migra maiores distâncias na presença de colóides que em um ambiente sem colóide, e entre partículas coloidais com diâmetros menores. O coeficiente de distribuição de contaminante com os colóides móveis e imóveis e a concentração do colóide na água da fratura são os parâmetros mais significativos.

ODLING e RODEN (1997) descrevem os resultados de modelos numéricos de escoamento e do transporte de contaminante nas rochas permeáveis fraturadas, onde as fraturas são mais condutoras que a rocha matriz. O campo de escoamento 2D na fratura e na rocha matriz permeável é calculado usando diferenças finitas, e o transporte do contaminante é simulado usando a técnica da caminhada aleatória. Na rocha permeável, a orientação da fratura e a densidade podem ser tão influentes quanto a conectividade da fratura. Isto contrasta com o transporte do contaminante nas rochas impermeáveis, onde a conectividade é crucial. Fraturas desconectadas orientadas paralelamente ao gradiente

de pressão geram curvas de resposta complexas com muitos picos de concentração, enquanto que sistemas de fraturas conectadas produzem suaves curvas de resposta, os quais se assemelham àqueles esperados em meios porosos e permeáveis homogêneos não fraturados.

O clima tropical é o ambiente de estudo de YUDI e IMARDJOKO (2000) e a área do repositório se encontra abaixo do nível freático (zona saturada). Este trabalho discute as potenciais liberações de materiais radioativos no ambiente acessível. Utiliza o *Synroc-C* desenvolvido pela ANSTO *Australian Nuclear Science and Technology Organization*, (Synroc é a forma mais eficaz e duradoura de imobilização de resíduos de alta atividade. É uma cerâmica feita de diversos minerais que incorporam, juntamente em suas estruturas de cristal, quase todos os elementos presentes nos resíduos de alta atividade). O modelo computacional desenvolvido roda usando o código computacional RIP (*Repository Integration Program*) desenvolvido pela *Golder Associates*. Como resultado, encontrou-se uma liberação muito baixa no ambiente acessível.

No trabalho de AMANO et alii (2003) foi desenvolvido um código de predição da migração, MOGRA (*Migration Of Ground Additions*), para liberações subterrâneas tóxicas, que incluem materiais radioativos em um ambiente terrestre. Consiste de códigos computacionais que são aplicáveis à avaliação de vários sistemas alvo e adota um modelo dinâmico de compartimento, analisando numericamente as equações diferenciais que representam o fluxo dos materiais radioativos dentro e fora de cada elemento ambiental (rio, lago, campo, floresta, etc.) assim como transferências entre cada elemento em cada compartimento. Contém arquivos de dados e relações gráficas para facilitar o ajuste de condições da simulação e a exposição de resultados do cálculo.

WU, LIU e BODVARSSON (2004) apresentam um modelo conceitual de triplo contínuo (que consiste na matriz, pequenas fraturas, e grandes fraturas contínuas) para simular processos de escoamento e de transporte na rocha fraturada. Utiliza dados de campo coletados na zona insaturada de *Yucca Mountain*, que apresenta um grande número fraturas em escala reduzida. O efeito destas fraturas pequenas não havia sido considerado em modelagens anteriores. Um modelo novo de triplo contínuo foi desenvolvido para investigar o efeito destas pequenas fraturas. O modelo de pequenas fraturas considera que a interação dinâmica entre as pequenas fraturas e a matriz pode durar centenas a milhares de anos. Sob esta conceitualização, pequenas fraturas atuam

muito mais rápido em resposta às mudanças nas grandes fraturas que a matriz, desde que as fraturas pequenas tenham maior permeabilidade (ordens de magnitude) que a matriz.

O desafio da engenharia de rocha é como converter um projeto hipotético e dados subterrâneos em um projeto de engenharia prático e confiável. O principal elemento deste desafio em questão é o efeito escala. As propriedades mecânicas da rocha mudam dependendo da escala do projeto. Os efeitos de escala são de dois tipos: um relaciona o volume de rocha afetado pela estrutura de engenharia, e o outro relaciona a duração das cargas impostas sobre a estrutura. FAIRHURST (2004) apresenta as contribuições do Laboratório de Pesquisa de Subterrâneo (URL), Pinawa, Manitoba, Canadá. Apresenta a capacidade de modelar o processo de desintegração da rocha no tempo, pela introdução do conceito de tensão de corrosão no PFC (*particle flow code*), e pela confirmação experimental destes processos por observações micro sísmicas da evolução da liberação. E teve como resultado uma aproximação para o estudo do fator tempo em mecânica da rocha.

Os processos acoplados termo-hidro-mecânicos em um repositório hipotético de rejeito nuclear em rocha fraturada foram investigados numericamente, por uma aproximação de contínuo equivalente em uma escala *far field* por MIN et alii (2005). As principais medidas de desempenho foram: resposta mecânica e mudança da permeabilidade induzida pela carga térmica. Apresentam uma modelagem aproximada combinando o discreto e o contínuo. São introduzidos procedimentos para determinar as propriedades equivalentes mecânicas e hidráulicas da rocha fraturada e aplicam estas propriedades dependentes da tensão como dados de entrada para a análise em grande escala. As mudanças da permeabilidade induzidas por carga térmica indicam que diminuem por um fator de dois perto do repositório.

Dentro dos estudos probabilísticos utiliza-se muito um método conhecido como simulação de Monte Carlo, o qual pode exigir que o modelo seja executado milhares de vezes para se ter um alto grau de confiança nos resultados e para modelos complexos leva a um alto custo computacional. Segue alguns estudos probabilísticos que realizam simulação de Monte Carlo e fazem avaliação de desempenho e análise de incertezas, MORENO, GYLLING e NERETNIEKS (1997), SMIDTS (2001), ROBINSON, LI e

HO (2003), TSUJIMOTO e AHN (2006), MORENO, CRAWFORD e NERETNIEKS (2006), GIACOBBO e PATELLI (2006) e HELTON e SALLABERRY (2008).

MORENO, GYLLING e NERETNIEKS (1997) discutiram os mecanismos mais importantes que controlam a liberação e o transporte dos contaminantes em um repositório de rejeito nuclear ou produto químico. Primeiramente, os diferentes mecanismos de transporte em meio fraturado são revistos: sorção na superfície, difusão na matriz e dispersão. O transporte de soluto é calculado na fratura com abertura variável e em uma rede tridimensional de canais. O foco do trabalho é o escoamento e o transporte de soluto em meios fraturados, mas os resultados podem, em muitos casos, ser aplicados a meios porosos. A extensão a meios porosos é direta na maioria dos casos. Encontrou-se que o uso de um fator de retardo que relaciona os tempos de viagem dos solutos que interagem e não interagem é impróprio e pode ser um erro.

SMIDTS (2001) descreve o método adjunto de Monte Carlo e enfatiza duas aplicações onde este método pode ser efetivo: no cálculo simultâneo da concentração de várias espécies da cadeia de radionuclídeos e para estimar as concentrações locais. Enfatiza o problema da avaliação exata de concentrações locais ou de concentrações cumulativas sobre a interface geosfera-biosfera e da migração de espécies múltiplas em uma cadeia de radionuclídeos. Para estudar o impacto da heterogeneidade do fator de retardo no transporte é apresentada uma solução semianalítica aproximada para o transporte de radionuclídeo. Testes numéricos, incluindo a migração de cadeias de radionuclídeos sobre grandes distâncias são definidos e diversas comparações são feitas com soluções analíticas e semianalíticas para verificar o método de Monte Carlo em problemas de transporte em *1D* e *3D*.

ROBINSON, LI e HO (2003) descrevem o desenvolvimento e o uso de um modelo de partícula traçante para a simulação do transporte de radionuclídeo na zona insaturada de *Yucca Moutain*. O objetivo foi produzir um modelo computacional que pudesse ser acoplado ao modelo *3D* de escoamento local no sítio, de modo que os resultados pudessem ser incorporados diretamente nas análises da avaliação de desempenho total do sistema (TSPA). O modelo de transporte simula múltiplas espécies (tipicamente 20 ou mais) com complexas variações no tempo e espaço das liberações no repositório. A ascensão do nível freático, cenário de mudanças climáticas, e as cadeias de decaimento são características adicionais do modelo. Foi empregado um método de

partícula traçante baseado em células, que inclui uma formulação de dupla permeabilidade, com convecção, dispersão longitudinal, difusão na matriz, e transporte facilitado por colóide.

TSUJIMOTO e AHN (2006) realizam uma análise de incerteza no desempenho do repositório pelo código *VR*, o qual incorpora efeitos da interferência de múltiplas cápsulas de deposição em um repositório. O código *FFDF* determinou as funções de distribuição de probabilidade para as cápsulas de deposição conectadas aos conjuntos de fraturas na direção do escoamento. A incerteza associada com o pico da taxa de liberação de ^{237}Np no *far field* foi avaliada numericamente pela técnica de amostragem do *hipercubo latino*. (A técnica seleciona valores aleatoriamente de forma dependente. Tal técnica divide a distribuição em intervalos com probabilidades iguais de sorteio e seleciona um valor aleatório pertencente a cada um dos intervalos). Os efeitos da incerteza com o número total de cápsulas de deposição conectadas tornam-se menos importantes conforme o número aumenta, pois a concentração do radionuclídeo satura os compartimentos a jusante. A incerteza com o retardo da sorção e a solubilidade no *buffer* mostrou uma contribuição importante para a taxa de liberação do nuclídeo.

As taxas de escoamento e os sentidos do escoamento podem mudar no tempo por várias razões. Em rochas fraturadas o escoamento ocorre nos canais dentro das fraturas. Os solutos são carregados pelo fluxo convectivo. Os solutos podem migrar para dentro e para fora das águas estagnadas na rocha matriz. Espécies reativas podem sofrer sorção em superfícies da fratura e nas superfícies do micro poro da rocha matriz. MORENO, CRAWFORD e NERETNIEKS (2006) apresentam um método pelo qual as partículas do soluto podem ser seguidas na água do escoamento passando por mudanças na taxa de escoamento e direção numa complexa rede de canais, onde os solutos podem também interagir com a rocha por difusão na rocha matriz. A novidade deste trabalho é a manipulação da difusão na rocha matriz sob circunstâncias de escoamento variando no tempo onde os processos difusivos são estocásticos.

GIACOBBO e PATELLI (2006) utilizaram um modelo estocástico de transporte de contaminante baseado na teoria de *Kolmogorov-Dmitriev* de processos estocásticos de ramificação. O método de Monte Carlo foi adotado para simular o transporte do contaminante através do meio poroso sob condições de escoamento transiente insaturado e fenômeno de sorção não linear entre as fases sólida e líquida. A efetividade

desta representação é condicionada pela capacidade de estimar os valores das taxas de transição que governam o problema modelado. O modelo estocástico desenvolvido e o correspondente código de Monte Carlo foram verificados pela comparação com duas soluções numéricas das equações clássicas de convecção-dispersão, para o caso de transporte não-reativo sob escoamento transiente insaturado e para o caso do transporte reativo não linear governado pela *isoterma de Freundlich* sob escoamento estacionário saturado.

HELTON e SALLABERRY (2008) descrevem a estrutura conceitual dos cálculos para determinar a dose esperada no RMEI (*Reasonably Maximally Exposed Individual*). Uma breve discussão é dada sobre as representações da incerteza requeridas pelo EPA (*Environmental Protection Agency*) e pela NRC (*Nuclear Regulatory Commission*) e os conceitos básicos na representação da incerteza com probabilidade. Em seguida, por causa de sua importância na determinação da dose esperada no RMEI, as propriedades de processos de Poisson são dadas. São considerados: a determinação da dose esperada sem considerar a incerteza epistemológica, a determinação da dose esperada considerando a incerteza epistemológica e a determinação da dose média.

CAPÍTULO 3

3. METODOLOGIA

3.1 Descrição do Modelo Físico

Dando continuidade ao trabalho realizado no mestrado, SILVEIRA (2008), a formulação proposta neste estudo é similar ao modelo utilizado previamente dado em LI e CHIOU (1993) e TANG, FRIND e SUDICKY (1981), porém levando em conta a cadeia de decaimento radioativo. Para a descrição do modelo será considerado um sistema com uma fratura singular, fina, situada em um meio poroso saturado.

Uma fonte de contaminantes contendo radionuclídeos é liberada instantaneamente na origem da fratura no tempo $t=0$. Para permitir uma análise unidimensional do transporte dos radionuclídeos ao longo da fratura, acoplados com a difusão molecular dos radionuclídeos da fratura para a matriz porosa, faz-se várias considerações pertinentes à geometria e propriedades hidráulicas do sistema. As considerações realizadas para a geometria e propriedades hidráulicas do problema foram as seguintes:

1. O comprimento da fratura é muito maior que sua largura.
2. A água da fratura está bem misturada, de forma que a concentração é uniforme em qualquer plano perpendicular à direção do fluxo.
3. O transporte ao longo da fratura é muito mais rápido que o transporte nos poros da rocha matriz.
4. O transporte na rocha matriz porosa é controlado pela difusão molecular por causa da sua baixa condutividade hidráulica.
5. O fluxo de água na fratura é laminar.

Em vista das considerações 1 e 2, a transferência de massa ao longo da fratura pode ser descrita por coordenada retangular unidimensional. Em vista das considerações 3 e 4, o fluxo de massa nos poros da rocha pode ser tomado na direção perpendicular ao plano da fratura. A consideração 5 permite o uso da lei de Darcy, CHAMBRE et alii (1982). Baseado nessa lei, tem-se que o escoamento é descrito por uma velocidade linear média que transporta a substância dissolvida (contaminante) por convecção. Do ponto de vista geoquímico, o equilíbrio químico é assumido entre a água e o soluto.

O sistema físico foi idealizado como mostra a Figura 3.1.

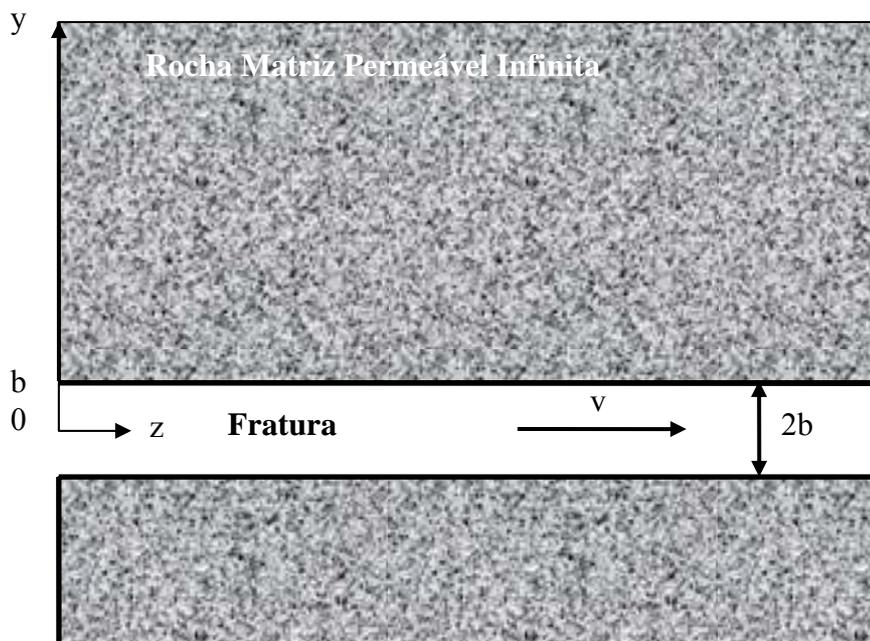


Fig. 3.1 - Geometria do modelo com uma fratura singular, plana e infinita

Considerou-se que a rocha contém uma fratura plana, com largura $2b$. A rocha matriz foi simplificada como sendo um ambiente poroso plenamente saturado, de porosidade θ . A velocidade da água foi assumida constante, especialmente uniforme dentro da fratura e zero dentro dos poros da rocha matriz. Os mecanismos de transporte na fratura e nos poros considerados no problema foram os seguintes:

1. transporte convectivo com velocidade constante ao longo da fratura;
2. dispersão hidrodinâmica longitudinal na fratura, na direção do eixo da fratura;
3. difusão molecular na rocha matriz;

4. adsorção sobre a superfície interna da fratura;
5. adsorção na rocha matriz; e
6. cadeia de decaimento radioativo.

A dispersão hidrodinâmica significa a disseminação das partículas, que é o resultado da dispersão mecânica e da difusão molecular. A dispersão mecânica é causada pela variação da velocidade, e a difusão molecular é causada pelo gradiente da concentração no espaço. No caso do fluxo uniforme e do meio isotrópico, o coeficiente de dispersão hidrodinâmico D_f pode ser expresso como:

$$D_f = a_L v + D^*, \quad (1)$$

onde:

a_L → dispersividade na direção do eixo da fratura (m);

v → velocidade da água na fratura (m/ano);

D^* → coeficiente de difusão molecular na água (m²/ano).

No interior da rocha matriz (poros), somente a difusão molecular foi considerada, por causa da baixa permeabilidade do meio. Igualmente, a difusão longitudinal nos poros da rocha matriz é tão pequena que se assumiu não contribuir para a migração do soluto no meio poroso. Visto que a fratura está inteiramente repleta de água, não é considerada a sorção na fratura, exceto na interface fratura com o meio poroso. Dentro da rocha matriz, de certo modo, forte sorção ocorre.

3.2 Equações Governantes

O transporte de cada membro da cadeia de decaimento pode ser descrito por duas equações acopladas unidimensionais com base nas considerações acima, uma para a fratura e outra para a matriz porosa.

O acoplamento aqui é fornecido pela continuidade da concentração ao longo da interface fratura-matriz porosa.

Como o objetivo é descrever o transporte da cadeia de decaimento, um segundo acoplamento faz-se necessário. Este relata o ganho de massa dos produtos filhos com a perda de massa de seus precursores por meio do processo de desintegração radioativa.

A distribuição da cadeia das espécies de solutos é descrita por dois sistemas de equações, um representando o transporte convectivo ao longo da fratura e o outro representando o transporte difusivo na matriz porosa.

Da teoria do balanço de massa e das considerações feitas para o problema, o sistema de equações que descreve o transporte dos radionuclídeos e da cadeia de radionuclídeos ao longo da fratura é dado por:

$$\begin{aligned} \frac{\partial C_{f,1}(z,t)}{\partial t} - \frac{D_{f,1}}{R_{f,1}} \frac{\partial^2 C_{f,1}(z,t)}{\partial z^2} + \frac{v}{R_{f,1}} \frac{\partial C_{f,1}(z,t)}{\partial z} + \lambda_1 C_{f,1}(z,t) + \frac{q_1(z,t)}{R_{f,1}b} = 0 \\ \vdots \\ \frac{\partial C_{f,k}(z,t)}{\partial t} - \frac{D_{f,k}}{R_{f,k}} \frac{\partial^2 C_{f,k}(z,t)}{\partial z^2} + \frac{v}{R_{f,k}} \frac{\partial C_{f,k}(z,t)}{\partial z} + \lambda_k C_{f,k}(z,t) + \\ - \frac{R_{f,k-1} \lambda_{k-1} C_{f,k-1}(z,t)}{R_{f,k}} + \frac{q_k(z,t)}{R_{f,k}b} = 0 \end{aligned} \quad (2)$$

para $z > 0, t > 0$;

onde:

$C_{f,k}(z,t)$ → concentração do radionuclídeo k na água da fratura (kg/m^3);

z → coordenada espacial ao longo da fratura (m);

t → tempo (ano);

$2b$ → diâmetro da fratura (m);

v → velocidade da água na fratura (m/ano);

$D_{f,k}$ → coeficiente de dispersão longitudinal do soluto k (m^2/ano).

O quarto termo do lado esquerdo da equação (1) representa a perda de massa do radionuclídeo k por decaimento, e o quinto termo na k -ésima equação (1) denota o ganho de massa do radionuclídeo k pela desintegração radioativa de seu precursor.

A constante de decaimento radioativa do nuclídeo k , λ_k (1/ano), é definida por:

$$\lambda_k = \frac{\ln 2}{t_{1/2}^k} \quad (3)$$

onde $t_{1/2}^k$ é a meia vida do radionuclídeo k (ano).

O coeficiente de retardo $R_{f,k}$ (adimensional) representa o efeito da adsorção do soluto k na face da rocha porosa. É considerado ser governada por uma isoterma de absorção linear, CHEN e LI (1997), que é definida como:

$$R_{f,k} = 1 + \frac{K_{f,k}}{b} \quad (4)$$

onde:

$K_{f,k}$ → coeficiente de distribuição superficial de soluto k por unidade de área da interface da fratura sobre a unidade de volume (m).

O transporte difusivo da cadeia de radionuclídeos na matriz porosa é governado pelo seguinte sistema de equações de difusão acopladas:

$$\begin{aligned} \frac{\partial C_{p,1}(z,y,t)}{\partial t} - \frac{D_{p,1}}{R_{p,1}} \frac{\partial^2 C_{p,1}(z,y,t)}{\partial y^2} + \lambda_1 C_{p,1}(z,y,t) &= 0 \\ &\vdots \\ \frac{\partial C_{p,k}(z,y,t)}{\partial t} - \frac{D_{p,k}}{R_{p,k}} \frac{\partial^2 C_{p,k}(z,y,t)}{\partial y^2} + \lambda_k C_{p,k}(z,y,t) - \frac{R_{p,k-1} \lambda_{k-1} C_{p,k-1}(z,y,t)}{R_{p,k}} &= 0 \end{aligned} \quad (5)$$

para $|y| \geq b$, $z > 0$, $t > 0$;

onde:

$C_{p,k}(z, y, t)$ → concentração do radionuclídeo k na matriz porosa (kg/m^3);

y → coordenada espacial perpendicular ao eixo da fratura (m).

O coeficiente de retardo na matriz $R_{p,k}$ (adimensional) representa a perda por adsorção do soluto com a matriz porosa, CHEN e LI (1997), e é definida por:

$$R_{p,k} = 1 + \frac{\rho_p K_{p,k}}{\theta} \quad (6)$$

onde:

ρ_p → densidade volumétrica da rocha matriz porosa, (kg/m^3);

θ → porosidade da rocha (adimensional);

$K_{p,k}$ → coeficiente de distribuição na rocha matriz, (m^3/kg).

O coeficiente de difusão molecular efetivo no poro $D_{p,k}$ (m^2/ano) tem valor menor que o da solução livre de soluto, D_*^k , por causa da tortuosidade do caminho de difusão. Para um meio isotrópico, pode ser representado por:

$$D_{p,k} = \tau D_*^k \quad (7)$$

onde τ é a tortuosidade da rocha matriz.

O termo de perda $q_k(z, t)$ no sistema de equações na fratura (2) é igual ao fluxo difusivo através da interface fratura-matriz ($\text{kg}/\text{m}^2\text{ano}$) do nuclídeo k . É expressa na forma da primeira lei de Fick:

$$q_k(z, t) = -\theta D_{p,k} \left. \frac{\partial C_{p,k}}{\partial y} \right|_{y=b} \quad (8)$$

para $z > 0$, $t > 0$.

A Eq. (8) fornece o acoplamento entre as equações (2) e a do poro.

A porosidade θ é incluída na Eq. (8) para justificar a porção da rocha matriz que está disponível para a difusão devido à presença da fase sólida.

As condições iniciais para as equações (2) e (5), são:

$$C_{f,k}(z,0) = 0 \quad \text{para } z > 0;$$

e

$$C_{p,k}(z,y,0) = 0 \quad \text{para } |y| \geq b, z > 0.$$

As condições de contorno na fratura são dadas por:

$$C_{f,k}(z,t) = C_0^k \quad \text{para } z = 0, t > 0; \quad (9)$$

e

$$C_{f,k}(\infty,t) = 0 \quad \text{para } t > 0;$$

onde C_0^k na Eq. (9) é a concentração do k -ésimo radionuclídeo que é depositado instantaneamente na origem da coordenada da fratura (kg/m^3).

As condições de contorno na rocha matriz são:

$$C_{p,k}(z,b,t) = C_{f,k}(z,t) \quad \text{para } z > 0, t > 0; \quad (10)$$

e

$$C_{p,k}(z,\infty,t) = 0 \quad \text{para } z > 0, t > 0.$$

A Eq. (10), que especifica a concentração na interface fratura-poro, expressa o acoplamento entre a concentração na fratura e a concentração na matriz porosa.

O fluxo de massa é definido como:

$$J_k(z,t) = vC_{f,k}(z,t) - D_{f,k} \frac{\partial C_{f,k}}{\partial z} \quad z \geq 0 \quad \text{para } t > 0 \quad (11)$$

3.3 Método Numérico

As equações governantes apresentadas na seção anterior foram aproximadas por diferenças finitas. Os métodos de diferenças finitas consistem em substituir as derivadas parciais presentes na equação diferencial por aproximações por diferenças finitas. O resultado final desse processo é uma equação algébrica, denominada equação de diferenças finitas (EDF) que tem em sua composição as expressões em estudo em função dos pontos da malha, FORTUNA (2000). A EDF é escrita para cada ponto da região discretizada em que se deseja calcular a solução do problema. Resolvendo-se a EDF, encontra-se a solução aproximada do problema. Esta solução não é exata, devido a erros:

- inerentes ao processo de discretização.
- de arredondamento nos cálculos feitos no computador.
- na aproximação numérica das condições auxiliares.

Todavia, quando a malha é refinada, a solução da equação diferencial parcial por diferenças finitas, se aproxima da solução analítica do problema, embora um grande número de pontos possa acarretar um elevado custo computacional.

Para as equações (2) e (5) as derivadas espaciais de segunda ordem, termo difusivo, foram discretizadas por diferenças centradas e nas derivadas temporais utilizou-se o método *theta* para apresentar os métodos de Euler Explícito e Implícito e Crank-Nickolson, FORTUNA (2000). Ademais, o termo convectivo presente na Eq. (2) foi discretizado por diferenças atrasadas, centradas e progressivas. Com estas considerações, a Eq. (2) pode ser reescrita como:

$$\begin{aligned}
\frac{C_{f,k,i}^{n+1} - C_{f,k,i}^n}{\Delta t} = & (1 - \Theta) \left[\frac{D_{f,k}}{R_{f,k}} \left(\frac{C_{f,k,i-1}^n - 2C_{f,k,i}^n + C_{f,k,i+1}^n}{\Delta z^2} \right) - \frac{v}{R_{f,k}} \left(\frac{C_{f,k,i+r}^n - C_{f,k,i-s}^n}{(r+s)\Delta z} \right) + \right. \\
& \left. - \lambda_k C_{f,k,i}^n + \frac{R_{f,k-1} \lambda_{k-1} C_{f,k-1,i}^n}{R_{f,k}} - \frac{1}{R_{f,k} b} q_{k,i}^n \right] + \\
& + \Theta \left[\frac{D_{f,k}}{R_{f,k}} \left(\frac{C_{f,k,i-1}^{n+1} - 2C_{f,k,i}^{n+1} + C_{f,k,i+1}^{n+1}}{\Delta z^2} \right) - \frac{v}{R_{f,k}} \left(\frac{C_{f,k,i+r}^{n+1} - C_{f,k,i-s}^{n+1}}{(r+s)\Delta z} \right) - \lambda_k C_{f,k,i}^{n+1} + \right. \\
& \left. + \frac{R_{f,k-1} \lambda_{k-1} C_{f,k-1,i}^{n+1}}{R_{f,k}} - \frac{1}{R_{f,k} b} q_{k,i}^{n+1} \right] \quad (6)
\end{aligned}$$

onde $r = s = 1$ indica diferenças centradas no termo convectivo, $r = 0$ e $s = 1$ diferenças atrasadas (*upwind*) e $r = 1$ e $s = 0$ corresponde a diferenças progressivas e, a aproximação foi realizada:

$$q_{k,i}^{n+1} \approx q_{k,i}^n = \frac{-\theta D_{p,k}}{\Delta y} (C_{p,k,i,2}^n - C_{f,k,i}^n)$$

Para a difusão na rocha matriz, a Eq. (5) é reescrita por diferenças finitas como:

$$\begin{aligned}
\frac{C_{p,k,i,j}^{n+1} - C_{p,k,i,j}^n}{\Delta t} = & (1 - \Theta) \left[\frac{D_{p,k}}{R_{p,k}} \left(\frac{C_{p,k,i,j-1}^n - 2C_{p,k,i,j}^n + C_{p,k,i,j+1}^n}{\Delta y^2} - \lambda_k C_{p,k,i,j}^n + \frac{R_{p,k-1} \lambda_{k-1} C_{p,k-1,i,j}^n}{R_{p,k}} \right) + \right. \\
& \left. + \Theta \left[\frac{D_{p,k}}{R_{p,k}} \left(\frac{C_{p,k,i,j-1}^{n+1} - 2C_{p,k,i,j}^{n+1} + C_{p,k,i,j+1}^{n+1}}{\Delta y^2} - \lambda_k C_{p,k,i,j}^{n+1} + \frac{R_{p,k-1} \lambda_{k-1} C_{p,k-1,i,j}^{n+1}}{R_{p,k}} \right) \right] \right] \quad (7)
\end{aligned}$$

E para o fluxo:

$$J_{k,i}^n(z, t) = v C_{f,k,i}^n - D_{f,k} \frac{C_{f,k,i+1}^n - C_{f,k,i}^n}{\Delta z}$$

Nas equações discretizadas o índice k representa as espécies de radionuclídeos da cadeia de decaimento, os subscritos i e j denotam os nodos espaciais nas direções z e y , respectivamente e o índice n denota a discretização temporal.

O parâmetro Θ nas equações (6) e (7) é uma constante real que varia entre 0 e 1, ANDERSON e TANNEHILL (1984). Para $\Theta = 0$ e $\Theta = 1$, os métodos Euler Explícito e Implícito são obtidos. Para $\Theta = 1/2$, o método semi-implícito de Crank-Nicolson é obtido.

CAPÍTULO 4

4. RESULTADOS

4.1 Resolução das Equações

As equações resultantes do processo de discretização descritos na seção anterior:

$$\frac{C_{f,k,i}^{n+1} - C_{f,k,i}^n}{\Delta t} = (1 - \Theta) \left[\frac{D_{f,k}}{R_{f,k}} \left(\frac{C_{f,k,i-1}^n - 2C_{f,k,i}^n + C_{f,k,i+1}^n}{\Delta z^2} \right) - \frac{v}{R_{f,k}} \left(\frac{C_{f,k,i+r}^n - C_{f,k,i-s}^n}{(r+s)\Delta z} \right) + \right. \\ \left. - \lambda_k C_{f,k,i}^n + \frac{R_{f,k-1} \lambda_{k-1} C_{f,k-1,i}^n}{R_{f,k}} - \frac{1}{R_{f,k} b} q_{k,i}^n \right] + \\ + \Theta \left[\frac{D_{f,k}}{R_{f,k}} \left(\frac{C_{f,k,i-1}^{n+1} - 2C_{f,k,i}^{n+1} + C_{f,k,i+1}^{n+1}}{\Delta z^2} \right) - \frac{v}{R_{f,k}} \left(\frac{C_{f,k,i+r}^{n+1} - C_{f,k,i-s}^{n+1}}{(r+s)\Delta z} \right) - \lambda_k C_{f,k,i}^{n+1} + \right. \\ \left. + \frac{R_{f,k-1} \lambda_{k-1} C_{f,k-1,i}^{n+1}}{R_{f,k}} - \frac{1}{R_{f,k} b} q_{k,i}^{n+1} \right]$$

e fazendo a aproximação:

$$q_{k,i}^{n+1} \approx q_{k,i}^n,$$

as equações podem ser organizadas, obtendo para a fratura:

$$aC_{f,k,i-1}^{n+1} + bC_{f,k,i}^{n+1} + cC_{f,k,i+1}^{n+1} = dC_{f,k,i-1}^n + eC_{f,k,i}^n + fC_{f,k,i+1}^n + gq_{k,i}^n + hC_{f,k-1,i}^n + iC_{f,k-1,i}^{n+1}$$

onde os coeficientes são assim definidos:

$$a = -\Theta \left(\frac{D_{f,k} \Delta t}{R_{f,k} \Delta z^2} + \frac{v \Delta t}{R_{f,k} \Delta z} \left(\frac{s}{r+s} \right) \right);$$

$$b = 1 - \Theta \left(-2 \frac{D_{f,k} \Delta t}{R_{f,k} \Delta z^2} - \frac{v \Delta t}{R_{f,k} \Delta z} \left(\frac{r-s}{r+s} \right) - \lambda_k \Delta t \right);$$

$$c = -\Theta \left(\frac{D_{f,k} \Delta t}{R_{f,k} \Delta z^2} - \frac{v \Delta t}{R_{f,k} \Delta z} \left(\frac{r}{r+s} \right) \right);$$

$$d = (1 - \Theta) \left(\frac{D_{f,k} \Delta t}{R_{f,k} \Delta z^2} + \frac{v \Delta t}{R_{f,k} \Delta z} \left(\frac{s}{r+s} \right) \right);$$

$$e = 1 + (1 - \Theta) \left(-2 \frac{D_{f,k} \Delta t}{R_{f,k} \Delta z^2} + \frac{v \Delta t}{R_{f,k} \Delta z} \left(\frac{r-s}{r+s} \right) - \lambda_k \Delta t \right);$$

$$f = (1 - \Theta) \left(\frac{D_{f,k} \Delta t}{R_{f,k} \Delta z^2} - \frac{v \Delta t}{R_{f,k} \Delta z} \left(\frac{r}{r+s} \right) \right);$$

$$g = -\frac{\Delta t}{R_{f,k} b};$$

$$h = (1 - \Theta) \left(\frac{R_{f,k-1} \lambda_{k-1}}{R_{f,k}} \right);$$

$$i = \Theta \left(\frac{R_{f,k-1} \lambda_{k-1}}{R_{f,k}} \right).$$

Para $i=1,2,\dots,I$, pode-se escrever para a fratura o sistema linear na forma matricial:

$$\begin{bmatrix} b & c & 0 & \dots & \dots & \dots & 0 \\ a & b & c & & & & \vdots \\ 0 & a & b & c & & & \vdots \\ \vdots & & \ddots & \ddots & \ddots & & \vdots \\ \vdots & & & \ddots & \ddots & \ddots & 0 \\ \vdots & & & & a & b & c \\ 0 & \dots & \dots & \dots & 0 & a & b \end{bmatrix} \begin{bmatrix} C_{f,k,1}^{n+1} \\ C_{f,k,2}^{n+1} \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ C_{f,k,I-1}^{n+1} \\ C_{f,k,I}^{n+1} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} e & f & 0 & \dots & \dots & \dots & 0 \\ d & e & f & & & & \vdots \\ 0 & d & e & f & & & \vdots \\ \vdots & & \ddots & \ddots & \ddots & & \vdots \\ \vdots & & & \ddots & \ddots & \ddots & 0 \\ \vdots & & & & d & e & f \\ 0 & \dots & \dots & \dots & 0 & d & e \end{bmatrix} \begin{bmatrix} C_{f,k,1}^n \\ C_{f,k,2}^n \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ C_{f,k,I-1}^n \\ C_{f,k,I}^n \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} q_{k,1}^n \\ q_{k,2}^n \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ q_{k,I-1}^n \\ q_{k,I}^n \end{bmatrix} + h \begin{bmatrix} C_{f,k-1,1}^n \\ C_{f,k-1,2}^n \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ C_{f,k-1,I-1}^n \\ C_{f,k-1,I}^n \end{bmatrix} + i \begin{bmatrix} C_{f,k-1,1}^{n+1} \\ C_{f,k-1,2}^{n+1} \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ C_{f,k-1,I-1}^{n+1} \\ C_{f,k-1,I}^{n+1} \end{bmatrix}$$

Já para a equação na matriz porosa tem-se:

$$\frac{C_{p,k,i,j}^{n+1} - C_{p,k,i,j}^n}{\Delta t} = (1 - \Theta) \left[\frac{D_{p,k}}{R_{p,k}} \left(\frac{C_{p,k,i,j-1}^n - 2C_{p,k,i,j}^n + C_{p,k,i,j+1}^n}{\Delta y^2} - \lambda_k C_{p,k,i,j}^n + \frac{R_{p,k-1} \lambda_{k-1} C_{p,k-1,i,j}^n}{R_{p,k}} \right) \right] + \Theta \left[\frac{D_{p,k}}{R_{p,k}} \left(\frac{C_{p,k,i,j-1}^{n+1} - 2C_{p,k,i,j}^{n+1} + C_{p,k,i,j+1}^{n+1}}{\Delta y^2} - \lambda_k C_{p,k,i,j}^{n+1} + \frac{R_{p,k-1} \lambda_{k-1} C_{p,k-1,i,j}^{n+1}}{R_{p,k}} \right) \right]$$

organizando os termos, obtém-se:

$$jC_{p,k,i,j-1}^{n+1} + kC_{p,k,i,j}^{n+1} + lC_{p,k,i,j+1}^{n+1} = mC_{p,k,i,j-1}^n + nC_{p,k,i,j}^n + oC_{p,k,i,j+1}^n + pC_{p,k-1,i,j}^n + qC_{p,k-1,i,j}^{n+1}$$

sendo seus coeficientes:

$$j = -\Theta \frac{D_{p,k} \Delta t}{R_{p,k} \Delta y^2};$$

$$k = 1 - \Theta \left(-2 \frac{D_{p,k} \Delta t}{R_{p,k} \Delta y^2} - \lambda_k \Delta t \right);$$

$$l = -\Theta \frac{D_{p,k} \Delta t}{R_{p,k} \Delta y^2};$$

$$m = (1 - \Theta) \frac{D_{p,k} \Delta t}{R_{p,k} \Delta y^2};$$

$$n = 1 + (1 - \Theta) \left(-2 \frac{D_{p,k} \Delta t}{R_{p,k} \Delta y^2} - \lambda_k \Delta t \right);$$

$$o = (1 - \Theta) \frac{D_{p,k} \Delta t}{R_{p,k} \Delta y^2};$$

$$p = (1 - \Theta) \left(\frac{R_{p,k-1} \lambda_{k-1}}{R_{p,k}} \right);$$

$$q = \Theta \left(\frac{R_{p,k-1} \lambda_{k-1}}{R_{p,k}} \right).$$

Para $j = 1, 2, \dots, J$, escreve-se o sistema linear na forma matricial para a matriz porosa:

$$\begin{bmatrix} k & l & 0 & \dots & \dots & \dots & 0 \\ h & k & l & & & & \vdots \\ 0 & h & k & l & & & \vdots \\ \vdots & & \ddots & \ddots & \ddots & & \vdots \\ \vdots & & & \ddots & \ddots & \ddots & 0 \\ \vdots & & & & h & k & l \\ 0 & \dots & \dots & \dots & 0 & h & k \end{bmatrix} \begin{bmatrix} C_{p,k,i,1}^{n+1} \\ C_{p,k,i,2}^{n+1} \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ C_{p,k,i,J-1}^{n+1} \\ C_{p,k,i,J}^{n+1} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} n & o & 0 & \dots & \dots & \dots & 0 \\ m & n & o & & & & \vdots \\ 0 & m & n & o & & & \vdots \\ \vdots & & \ddots & \ddots & \ddots & & \vdots \\ \vdots & & & \ddots & \ddots & \ddots & 0 \\ \vdots & & & & m & n & o \\ 0 & \dots & \dots & \dots & 0 & m & n \end{bmatrix} \begin{bmatrix} C_{p,k,i,1}^n \\ C_{p,k,i,2}^n \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ C_{p,k,i,J-1}^n \\ C_{p,k,i,J}^n \end{bmatrix} + p \begin{bmatrix} C_{p,k-1,i,1}^n \\ C_{p,k-1,i,2}^n \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ C_{p,k-1,i,J-1}^n \\ C_{p,k-1,i,J}^n \end{bmatrix} + q \begin{bmatrix} C_{p,k-1,i,1}^{n+1} \\ C_{p,k-1,i,2}^{n+1} \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ C_{p,k-1,i,J-1}^{n+1} \\ C_{p,k-1,i,J}^{n+1} \end{bmatrix}$$

Os sistemas de equações lineares para a fratura e matriz porosa são resolvidos diretamente em cada passo Δt no tempo, sendo:

- $\Theta = 0$, tem-se o método de Euler Explícito que fornece um conjunto independente de equações que podem ser facilmente calculadas;
- $\Theta = 1$ e $\Theta = 1/2$ têm-se, respectivamente, os métodos de Euler Implícito e de Crank-Nicolson, que dão origem a sistemas tridiagonais que, na sua solução utilizou-se o algoritmo de Thomas - decomposição LU e substituição progressiva e regressiva, PRESS et alii (1992).

4.2 Verificação do Método Numérico Empregado com uma Solução Analítica

Para a verificação da modelagem numérica da cadeia de decaimento proposta por diferenças finitas foi implantado um código em Fortran 90 e, para comparação utilizou-se a solução analítica apresentada em BAUER et alii. (2001) implantada em Matlab. Neste trabalho foi desenvolvida uma solução no domínio de Laplace usando uma fórmula recursiva para os distintos fatores de retardo dos elementos da cadeia, sendo que esta fórmula recursiva pode ser usada para construir soluções de transporte de multiespécies.

A Tabela 4.1 apresenta os parâmetros utilizados nas simulações numérica e analítica, e a Tabela 4.2 as malhas utilizadas na simulação numérica em todos os métodos.

Tabela 4.1 - Parâmetros físicos utilizados na simulação, (BAUER et alii, 2001)

Elemento	λ_k 1/dia	R -	C_o mM	t dia	V m/dia	D_f m ² /dia
c_1	7.10^{-4}	5,3	100			
c_2	5.10^{-4}	1,9	0	3000	1	10
c_3	$4,5.10^{-4}$	1,2	0			

Tabela 4.2 - Malhas utilizadas nos gráficos comparativos

Malhas espacial e temporal usadas em todas discretizações		
Δz	(<i>m</i>)	0,15
Δt	(<i>dia</i>)	1

Com todas as discretizações obteve-se bons resultados. A Figura 4.1 ilustra o método numérico que melhor representou o modelo em questão, dentro do conjunto de dados utilizados, que foi o de Euler Implícito com discretização progressiva no termo convectivo, porém esta discretização tem condições de estabilidade que devem ser respeitadas, SILVEIRA (2008).

Na Figura 4.1 tem-se a distribuição das concentrações resultantes para três membros hipotéticos de uma cadeia de decaimento. Pode-se notar o aumento sucessivo na concentração dos membros c_2 e c_3 da cadeia, chegando a um máximo e depois sua diminuição e a diminuição de c_1 .

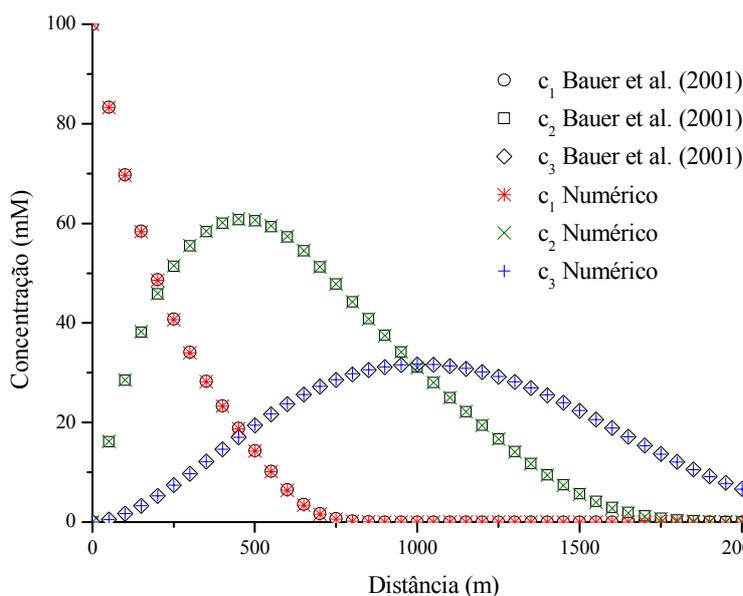


Figura 4.1 - Perfis das concentrações c_1 , c_2 e c_3

A Tabela 4.3 mostra o desvio percentual entre a solução analítica e a numérica. Nesta tabela fixou-se c_1 , em aproximadamente (100; 50; 10; 1; 0,01; 0,001) mM, encontrando, assim, a distância e as concentrações dos demais membros da cadeia.

Tabela 4.3 - Desvio percentual entre a solução analítica e a numérica proposta

Distância (m)	c_1 (mM)	Desvio (%)	c_2 (mM)	Desvio (%)	c_3 (mM)	Desvio (%)
0	<u>100</u> <u>100</u>	-	-	-	-	-
193,5	<u>50.003</u> <u>49.994</u>	0,0182	<u>44.824</u> <u>44.835</u>	0,0239	<u>4.9467</u> <u>4.9454</u>	0,0263
553,5	<u>9.9594</u> <u>9.9395</u>	0,2003	<u>59.242</u> <u>59.241</u>	0,0022	<u>21.787</u> <u>21.788</u>	0,0059
730,5	<u>1.0090</u> <u>1.0096</u>	0,0614	<u>49.184</u> <u>49.176</u>	0,0157	<u>28.059</u> <u>28.060</u>	0,0011
910,5	<u>0.01002</u> <u>0.01036</u>	3,3932	<u>36.805</u> <u>36.798</u>	0,0182	<u>31.2476</u> <u>31.2470</u>	0,0006
975	<u>0.00102</u> <u>0.00108</u>	5,8823	<u>32.652</u> <u>32.646</u>	0,0187	<u>31.627</u> <u>31.626</u>	0,0035
<u>Matlab</u>	<u>Fortran</u>					

Pode-se notar que o desvio percentual aumenta com a diminuição da concentração de c_1 , chegando a 6%, aproximadamente, a 975m do início da fratura e com uma concentração da ordem de 10^{-3} , desvio esse normal devido ao valor da concentração mediante os erros de arredondamento computacional.

4.3 Cenário de Liberação para a Avaliação de Desempenho

Neste modelo, foi considerada uma única fratura simples, representativa, a partir de uma cavidade de deposição do repositório. A fratura encontra uma região de lineamento com fluxo ascendente a 50m de distância, como mostra a Figura 4.2. A análise na geosfera foi realizada para um modelo de dupla porosidade (tanto para a fratura como para as microfaturas no lineamento) para o escoamento e transporte dos radionuclídeos, assim estimou-se a capacidade de retenção na região *far field* (bentonita e meio geológico).

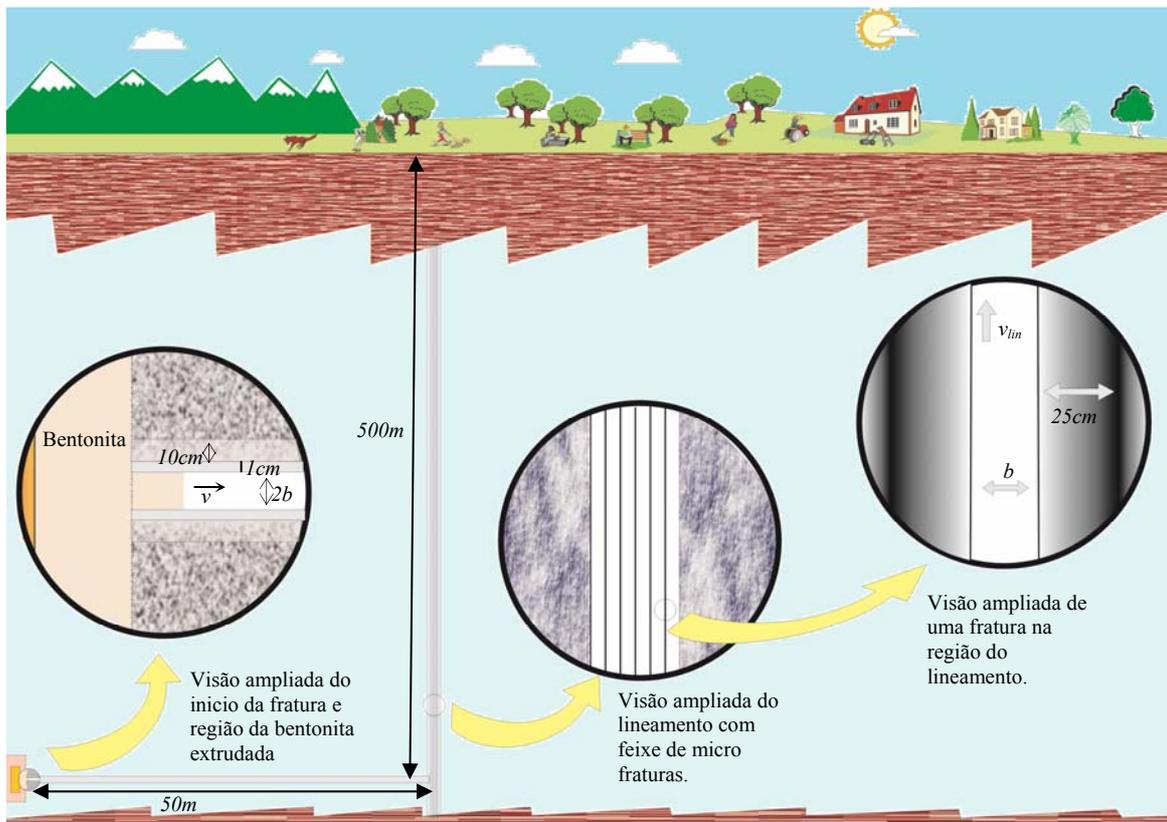


Figura 4.2 - Geometria modificada do modelo proposto

Para dar embasamento a estas considerações, MARTINS (2004) apresentou uma metodologia para a seleção de locais para construção de repositório para rejeito de alta atividade. O estado do Rio de Janeiro foi escolhido no estudo por abrigar os dois reatores em operação no Brasil e, com relação à litologia e à hidrogeologia, constatou-se que o estado é constituído predominantemente (cerca de 80%) por rochas cristalinas, nortendo assim a escolha do meio geológico para o nosso estudo para repositório.

E em NYKYRI et alii (2008) é descrito que para o meio granítico, a frequência das fraturas subterrâneas condutoras de água à profundidade de 500m é de aproximadamente 0,06 fraturas/m. A frequência de fraturas uniformes ao longo de uma linha vertical obedece a uma distribuição de Poisson para um número de fraturas e um intervalo fixo de comprimento. A cavidade de deposição tem aproximadamente 8m de comprimento, isto é, o número esperado de fraturas na cavidade de deposição é $8m \cdot 0,06 \text{ frat/m} = 0,48 \text{ fraturas}$. E, de acordo com a distribuição de Poisson, a probabilidade de não se ter fratura na cavidade de deposição é $\exp(-0,48) = 62\%$. Assim, ao considerar apenas uma fratura não estamos subestimando o meio geológico em análise.

O inventário de radionuclídeos presente no combustível irradiado varia de acordo com o tipo de combustível, a taxa de queima, tempo de resfriamento, etc. Neste estudo será considerado o inventário dos radionuclídeos relevantes: ^{14}C , ^{36}Cl , ^{135}Cs , ^{137}Cs , ^{129}I , ^{93}Mo , ^{94}Nb , ^{59}Ni , ^{63}Ni , ^{107}Pd , ^{151}Sm , ^{79}Se , ^{126}Sn , ^{90}Sr , ^{99}Tc e ^{93}Zr e das seguintes cadeias de decaimento: $4n(^{240}\text{Pu} \rightarrow ^{236}\text{U})$, $4n+1(^{245}\text{Cm} \rightarrow ^{241}\text{Am} \rightarrow ^{237}\text{Np} \rightarrow ^{233}\text{U} \rightarrow ^{229}\text{Th})$, $4n+2(^{246}\text{Cm} \rightarrow ^{242}\text{Pu} \rightarrow ^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{U} \rightarrow ^{230}\text{Th} \rightarrow ^{226}\text{Ra})$ e $4n+3 (^{243}\text{Am} \rightarrow ^{239}\text{Pu} \rightarrow ^{235}\text{U} \rightarrow ^{231}\text{Pa})$, em uma cápsula de deposição com combustível irradiado do tipo *TVEL-VVER-440 (PWR)* com 1,44tU enriquecido a 4,0wt% e taxa de queima de 40MWd/kgU. Foi considerado que o combustível irradiado permaneceu em piscina por 30 anos. Estes dados são de ANTTILA (2005) onde a composição e características radioativas para o combustível irradiado foram estimadas pelo código computacional ORIGEN-S do programa SCALE-5, com os dados para as cadeias na Tabela 4.4 e nuclídeos relevantes na Tabela 4.5.

O transporte difusivo da cadeia de radionuclídeos na região da bentonita extrudada é governado pelo seguinte sistema de equações de difusão acopladas:

$$\frac{\partial C_{b,1}(z,t)}{\partial t} - \frac{D_{b,1}}{R_{b,1}} \frac{\partial^2 C_{b,1}(z,t)}{\partial z^2} + \lambda_1 C_{b,1}(z,t) = 0 \quad (12)$$

$$\frac{\partial C_{b,k}(z,t)}{\partial t} - \frac{D_{b,k}}{R_{b,k}} \frac{\partial^2 C_{b,k}(z,t)}{\partial z^2} + \lambda_k C_{b,k}(z,t) - \frac{R_{b,k-1} \lambda_{k-1} C_{b,k-1}(z,t)}{R_{b,k}} = 0$$

para $z > 0, t > 0$

onde $C_{b,k}(z,t)$ é a concentração do radionuclídeo k na bentonita (kg/m^3), e z é a coordenada espacial na fratura (m). O coeficiente de retardo na bentonita $R_{b,k}$ (adimensional) representa a perda por adsorção do soluto com a bentonita, (NYKYRI et alii, 2008), e é definida por:

$$R_{b,k} = 1 + \frac{1-\theta}{\theta} \rho K_{b,k} \quad (13)$$

onde ρ é a densidade volumétrica, (kg/m^3), θ é a porosidade da bentonita (adimensional) e, $K_{b,k}$ é o coeficiente de sorção na bentonita, (m^3/kg).

NERETNIEKS (1980) demonstrou que a difusão na matriz é um importante mecanismo que irá retardar o transporte de radionuclídeos no meio geológico. Porém, considerá-la infinita poderá estar superestimando sua capacidade de retenção. Assim, um pressuposto conservativo utilizado no cálculo foi considerar uma zona alterada de 1cm de espessura margeando a fratura e uma fronteira não-permeável a uma distância de 10cm. A Tabela 4.7 dá os valores de porosidade e coeficiente de difusão no poro, θ e Dp , extraídos de NYKYRI et alii (2008), para as duas camadas de rocha utilizadas, sendo uma primeira camada (1cm de espessura) que representa a rocha próxima à superfície da fratura (subscritos 1) e a segunda (9cm de espessura) que representa rocha mais longe da superfície (subscrito 2). A espessura da rocha matriz disponível para sorção será, portanto, de 10cm. Os parâmetros físicos para cada nuclídeo na bentonita e matriz rochosa são também dados na Tabela 4.7.

Na simulação utilizou-se o método de Euler Implícito com discretização progressiva no termo convectivo baseado na verificação contra a solução analítica. A escolha da malha discretizada para a fratura foi baseada em condições de estabilidade do modelo dado em SILVEIRA (2008). Para todo nuclídeo, a malha espacial $\Delta z = 0,5 \text{ m}$ e $\Delta y = 0,001 \text{ m}$ foi adotada, onde o comprimento máximo utilizado na simulação foi 50m na direção z e 0,1m na direção y . O passo temporal utilizado foi $\Delta t = 1 \text{ ano}$. Para a região da bentonita, o comprimento de extrusão usado foi de 1cm. Nesta região, ocorre somente difusão e a malha espacial utilizada foi de $\Delta z_{bent} = 0,001 \text{ m}$.

Para a análise da migração vertical, no lineamento foi considerado uma região com 7 fraturas, uma a cada 50cm de distância com diâmetro igual à metade da fratura horizontal. A velocidade no lineamento é uma função da profundidade, que pelas considerações feitas para o problema, e.g., fluxo permanente (carga hidráulica constante e conseqüentemente vazão constante), fez-se uso do valor médio desta função na resolução do problema. E foram utilizados nesta rocha porosa os parâmetros dados para a matriz mais próxima da fratura horizontal, no caso os dados de subscrito 1 na Tabela 4.7. Nesta região o comprimento máximo utilizado na simulação foi de 25cm para difusão e 475m para o sistema de fraturas.

Como a velocidade no lineamento é maior que a velocidade na fratura horizontal (Tabela 4.6), optamos pela discretização atrasada no termo convectivo (incondicionalmente estável), SILVEIRA (2008), para manter a malha utilizada na fratura. Para todo nuclídeo, a malha espacial $\Delta y = 0,5 \text{ m}$ e $\Delta z = 0,01 \text{ m}$ foi adotada, onde o comprimento máximo utilizado na simulação foi 475m na direção y e 0,25m na direção z .

Para concentração no início deste conjunto de fraturas foi considerada a concentração de saída da fratura horizontal, porém, analisando a vazão de saída desta fratura para a vazão que entra no lineamento havia um desbalanço que foi compensado pela diluição, uma vez que o sistema se encontra em um meio saturado. Neste caso, trata-se de mistura contínua e para o cálculo da concentração final, o volume deve ser substituído pela vazão. Assim, tem-se:

$$C_{lin,k}(500,t) = \frac{C_{f,k}(50,t)Q_f}{Q_{lin}} \quad (14)$$

pois o cálculo de uma mistura é um balanço pontual de massa. O produto entre vazão e concentração representa este fluxo de massa por unidade de tempo.

Tabela 4.4 – Dados para radionuclídeos relevantes das cadeias de decaimento

Cadeia e Nuclídeo	Meia-vida (anos)	Inventário de Atividade (GBq/tU)*	Limite de Solubilidade (kg/m ³)**	Fator de Conversão de Dose (Sv/Bq)**	
4n	²⁴⁰ Pu	6,5·10 ³	2,131·10 ⁴	2,640·10 ⁻⁴	1,50·10 ⁻¹²
	²³⁶ U	2,3·10 ⁷	1,214·10 ¹	2,242·10 ⁻⁷	2,82·10 ⁻¹³
4n+1	²⁴⁵ Cm	8,5·10 ³	1,321·10 ¹	9,800·10 ⁻⁵	1,26·10 ⁻¹²
	²⁴¹ Am	4,3·10 ²	1,576·10 ⁵	9,640·10 ⁻⁵	1,20·10 ⁻¹²
	²³⁷ Np	2,1·10 ⁶	1,595·10 ¹	2,607·10 ⁻⁷	6,65·10 ⁻¹³
	²³³ U	1,6·10 ⁵	2,877·10 ⁻³	2,214·10 ⁻⁷	3,06·10 ⁻¹³
	²²⁹ Th	7,3·10 ³	-	1,443·10 ⁻⁶	3,68·10 ⁻¹²
4n+2	²⁴⁶ Cm	4,7·10 ³	2,036·10 ⁰	9,840·10 ⁻⁵	1,26·10 ⁻¹²
	²⁴² Pu	3,8·10 ⁵	8,710·10 ¹	2,662·10 ⁻⁴	1,44·10 ⁻¹²
	²³⁸ U	4,5·10 ⁹	1,158·10 ¹	2,261·10 ⁻⁷	2,90·10 ⁻¹³
	²³⁴ U	2,4·10 ⁵	5,324·10 ¹	2,223·10 ⁻⁷	2,94·10 ⁻¹³
	²³⁰ Th	7,7·10 ⁴	1,438·10 ⁻²	1,449·10 ⁻⁶	1,26·10 ⁻¹²
	²²⁶ Ra	1,6·10 ³	-	4,972·10 ⁻⁶	1,30·10 ⁻¹¹
4n+3	²⁴³ Am	4,7·10 ³	1,034·10 ³	9,720·10 ⁻⁵	1,20·10 ⁻¹²
	²³⁹ Pu	2,4·10 ⁴	1,515·10 ⁴	2,629·10 ⁻⁴	1,50·10 ⁻¹²
	²³⁵ U	7,4·10 ⁵	8,358·10 ⁻¹	2,233·10 ⁻⁷	2,84·10 ⁻¹³
	²³¹ Pa	3,2·10 ⁴	-	6,930·10 ⁻⁵	1,15·10 ⁻¹¹

(*ANTTILA 2005); (**NYKYRI et alii, 2008)

Tabela 4.5 - Dados para radionuclídeos relevantes

Nuclídeo	Meia-vida (anos)	Inventário de Atividade (GBq/tU)*	Limite de Solubilidade (kg/m ³)**	Fator de Conversão de Dose (Sv/Bq)**
¹⁴ C	5,7·10 ³	3,835·10 ¹	1	3,48·10 ⁻¹⁵
³⁶ Cl	3,0·10 ⁵	3,88·10 ⁻¹	1	5,58·10 ⁻¹⁵
¹³⁵ Cs	2,3·10 ⁶	2,058·10 ¹	1	1,20·10 ⁻¹⁴
¹³⁷ Cs	3,0·10 ¹	2,369·10 ⁶	1	7,80·10 ⁻¹⁴
¹²⁹ I	1,6·10 ⁷	1,195·10 ⁰	1	6,60·10 ⁻¹³
⁹³ Mo	4,0·10 ³	1,802·10 ⁰	2,418·10 ⁻⁶	1,86·10 ⁻¹⁴
⁹⁴ Nb	2,0·10 ⁴	5,033·10 ²	3,572·10 ⁻³	1,02·10 ⁻¹⁴
⁵⁹ Ni	8,0·10 ⁴	3,28·10 ²	2,537·10 ⁻¹	3,78·10 ⁻¹⁶
⁶³ Ni	9,6·10 ¹	3,483·10 ⁴	2,709·10 ⁻¹	9,00·10 ⁻¹⁶
¹⁰⁷ Pd	6,5·10 ⁶	4,920·10 ⁰	2,675·10 ⁻⁴	2,22·10 ⁻¹⁶
⁷⁹ Se	2,95·10 ⁵	3,241·10 ⁰	2,449·10 ⁻⁸	1,74·10 ⁻¹⁴
¹⁵¹ Sm	9,0·10 ¹	1,536·10 ⁴	1,133·10 ⁻⁵	5,88·10 ⁻¹⁶
¹²⁶ Sn	1,0·10 ⁵	2,318·10 ¹	1,512·10 ⁻⁵	4,26·10 ⁻¹⁴
⁹⁰ Sr	2,9·10 ¹	1,623·10 ⁶	8,190·10 ⁻³	1,68·10 ⁻¹³
⁹⁹ Tc	2,1·10 ⁵	5,962·10 ²	4,158·10 ⁻⁷	3,84·10 ⁻¹⁵
⁹³ Zr	1,5·10 ⁶	8,8086·10 ¹	1,581·10 ⁻⁶	1,56·10 ⁻¹⁴

(*ANTTILA 2005); (**NYKYRI et alii, 2008)

Tabela 4.6 – Parâmetros constantes para todos os nuclídeos considerados no modelo

D_f (m ² /ano)**	R_f - **	ρ (kg/m ³)***	v (m/ano)**	v_{lin}^* (m/s)****	b (m)**
1,0	1,0	2700	1,0	0,1·y ⁻³	0,0005

* sendo y – profundidade variando de 500 a 25 metros

(**LI e CHIOU, 1993); (**NYKYRI et alii, 2008); (***NERETNIEKS e RASMULSON, 1983)

Tabela 4.7 – Dados para os elementos considerados no estudo: coef. de distribuição na bentonita - $K_{f,k}$, coef. de distribuição na rocha matriz - $K_{p,k}$, coef. de difusão na matriz porosa - D_{p1} , coef. de difusão na bentonita - D_b , (NYKYRI et alii, 2008)

Elemento	K_b (m^3/kg)	D_b (m^2/s)	θ_b	K_p (m^3/kg)	0 – 1 cm		1 – 10 cm	
					D_p (m^2/s)	θ_1	D_p (m^2/s)	θ_2
C	0	$1,2 \cdot 10^{-10}$	0,43	0	10^{-13}	0,005	10^{-14}	0,001
Cl	0	$1 \cdot 10^{-11}$	0,17	0	10^{-14}	0,001	10^{-15}	0,0002
Cs	0,018	$3 \cdot 10^{-10}$	0,43	0,05	10^{-13}	0,005	10^{-14}	0,001
I	0	$1 \cdot 10^{-11}$	0,17	0	10^{-14}	0,001	10^{-15}	0,0002
Mo	0	$1 \cdot 10^{-11}$	0,17	0,0005	10^{-14}	0,001	10^{-15}	0,0002
Nb	0,2	$1,2 \cdot 10^{-10}$	0,43	0,02	10^{-13}	0,005	10^{-14}	0,001
Ni	0,03	$1,2 \cdot 10^{-10}$	0,43	0,1	10^{-13}	0,005	10^{-14}	0,001
Pd	0,3	$1,2 \cdot 10^{-10}$	0,43	0,001	10^{-13}	0,005	10^{-14}	0,001
Se	0	$1 \cdot 10^{-11}$	0,17	0,0005	10^{-14}	0,001	10^{-15}	0,0002
Sm	0,8	$1,2 \cdot 10^{-10}$	0,43	0,02	10^{-13}	0,005	10^{-14}	0,001
Sn	2,3	$1,2 \cdot 10^{-10}$	0,43	0,001	10^{-13}	0,005	10^{-14}	0,001
Sr	0,0009	$1,2 \cdot 10^{-10}$	0,43	0,005	10^{-13}	0,005	10^{-14}	0,001
Tc	2,3	$1,2 \cdot 10^{-10}$	0,43	0,05	10^{-13}	0,005	10^{-14}	0,001
Zr	0,1	$1,2 \cdot 10^{-10}$	0,43	0,2	10^{-13}	0,005	10^{-14}	0,001
Am	10	$1,2 \cdot 10^{-10}$	0,43	0,4	10^{-13}	0,005	10^{-14}	0,001
Cm	10	$1,2 \cdot 10^{-10}$	0,43	0,4	10^{-13}	0,005	10^{-14}	0,001
Np	4	$1,2 \cdot 10^{-10}$	0,43	0,2	10^{-13}	0,005	10^{-14}	0,001
Pa	0,2	$1,2 \cdot 10^{-10}$	0,43	0,05	10^{-13}	0,005	10^{-14}	0,001
Pu	4	$1,2 \cdot 10^{-10}$	0,43	0,5	10^{-13}	0,005	10^{-14}	0,001
Ra	0,001	$1,2 \cdot 10^{-10}$	0,43	0,2	10^{-13}	0,005	10^{-14}	0,001
Th	6	$1,2 \cdot 10^{-10}$	0,43	0,2	10^{-13}	0,005	10^{-14}	0,001
U	0,5	$1,2 \cdot 10^{-10}$	0,43	0,1	10^{-13}	0,005	10^{-14}	0,001

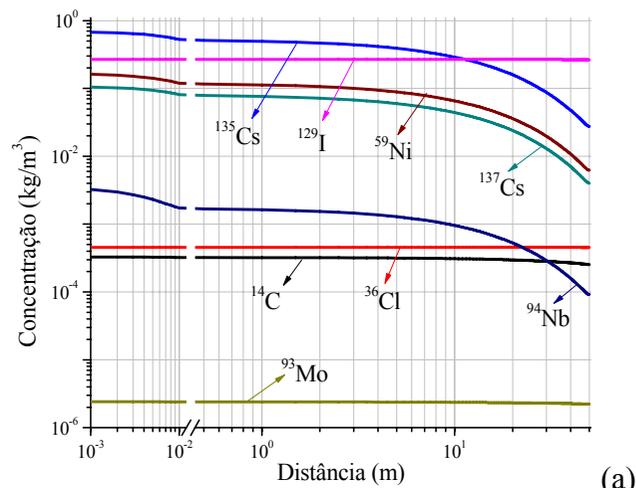
4.4 Ilustração Numérica da Avaliação de Desempenho

Para ilustrar a avaliação de desempenho da região *far field*, os nuclídeos produtos de fissão/ativação foram divididos em dois grupos para melhor visualização, sendo denominados assim: grupo 1 (^{14}C , ^{36}Cl , ^{135}Cs , ^{137}Cs , ^{129}I , ^{93}Mo , ^{94}Nb e ^{59}Ni) e grupo 2 (^{63}Ni , ^{107}Pd , ^{151}Sm , ^{79}Se , ^{126}Sn , ^{90}Sr , ^{99}Tc e ^{93}Zr). Para a visualização da concentração em função do espaço foram construídos dois gráficos, uma para a região da fratura e outro para o lineamento. O gráfico da fratura horizontal apresenta uma descontinuidade de forma a mostrar a concentração na região da bentonita extrudada.

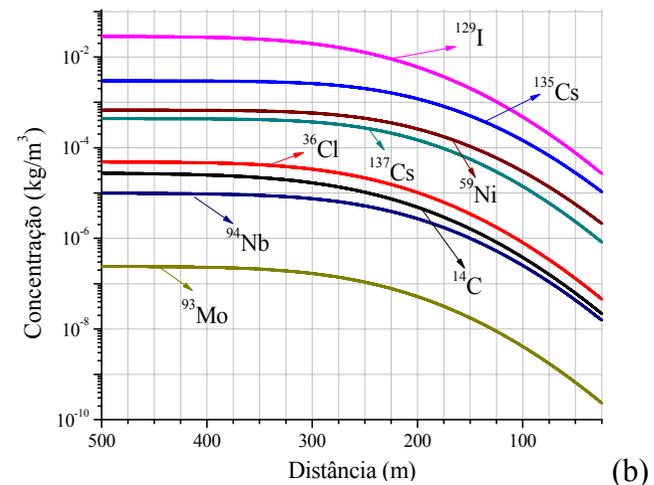
As Figuras 4.3 e 4.4 mostram os perfis das concentrações na região da bentonita extrudada, fratura e lineamento, para o grupo 1 de nuclídeos relevantes no rejeito radioativo de alta atividade: ^{14}C , ^{36}Cl , ^{135}Cs , ^{137}Cs , ^{129}I , ^{93}Mo , ^{94}Nb e ^{59}Ni . Como se pode observar, estes nuclídeos são pouco afetados pela sorção na bentonita, porém, nota-se claramente a queda da concentração dos nuclídeos de menor meia-vida, como o ^{14}C (com meia-vida igual a $5,7 \cdot 10^3$ anos), ^{93}Mo (com meia-vida igual a $4,0 \cdot 10^3$ anos) e ^{137}Cs (com meia-vida igual a 30 anos). Sendo que este último teve sua concentração exaurida no tempo de 10^5 anos, (como se pode constatar na Tabela 4.9).

Na região da fratura podemos observar que os nuclídeos de menor coeficiente de difusão na matriz porosa tendem a se difundir mais na fratura, apresentando um equilíbrio na concentração nos tempos simulados (^{14}C , ^{36}Cl , ^{129}I e ^{93}Mo). Já os de maior (^{135}Cs , ^{137}Cs , ^{94}Nb e ^{59}Ni) apresentam uma queda significativa da concentração na fratura, mostrando a importância da matriz porosa na retenção destes nuclídeos.

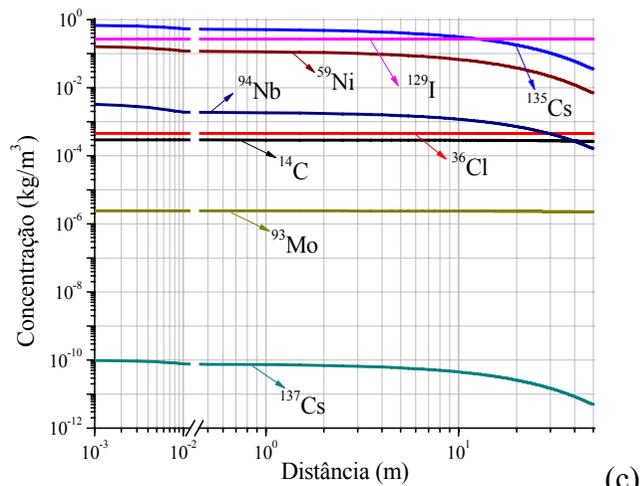
Na região do lineamento, no tempo 10^2 anos o perfil não se encontra totalmente desenvolvido, ao contrário dos outros tempos simulados. Nesta região foi considerada uma velocidade de ascendência da água subterrânea tal que os efeitos convectivos sobrepujam os difusivos. Nota-se a queda da concentração na interface fratura/lineamento devido à diluição. Já a queda ao longo do lineamento é imperceptível nesta escala considerada.



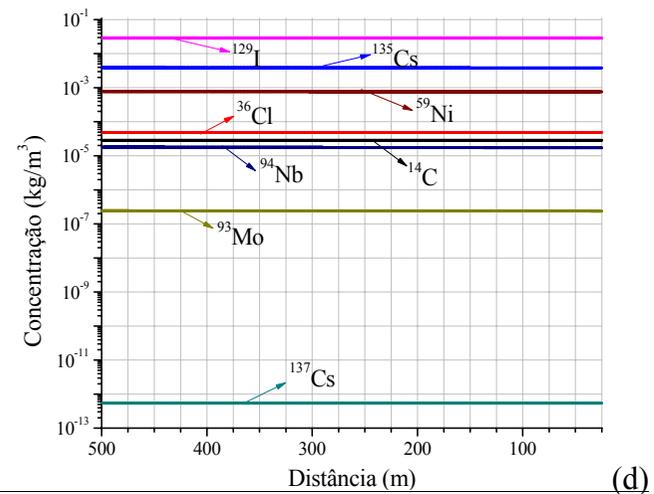
(a)



(b)



(c)



(d)

Figura 4.3 – Perfis das concentrações na bentonita/fratura (a,c), e lineamento (b,d), para o grupo 1 de nuclídeos relevantes no combustível irradiado, em 10^2 (a,b) e 10^3 anos (c,d)

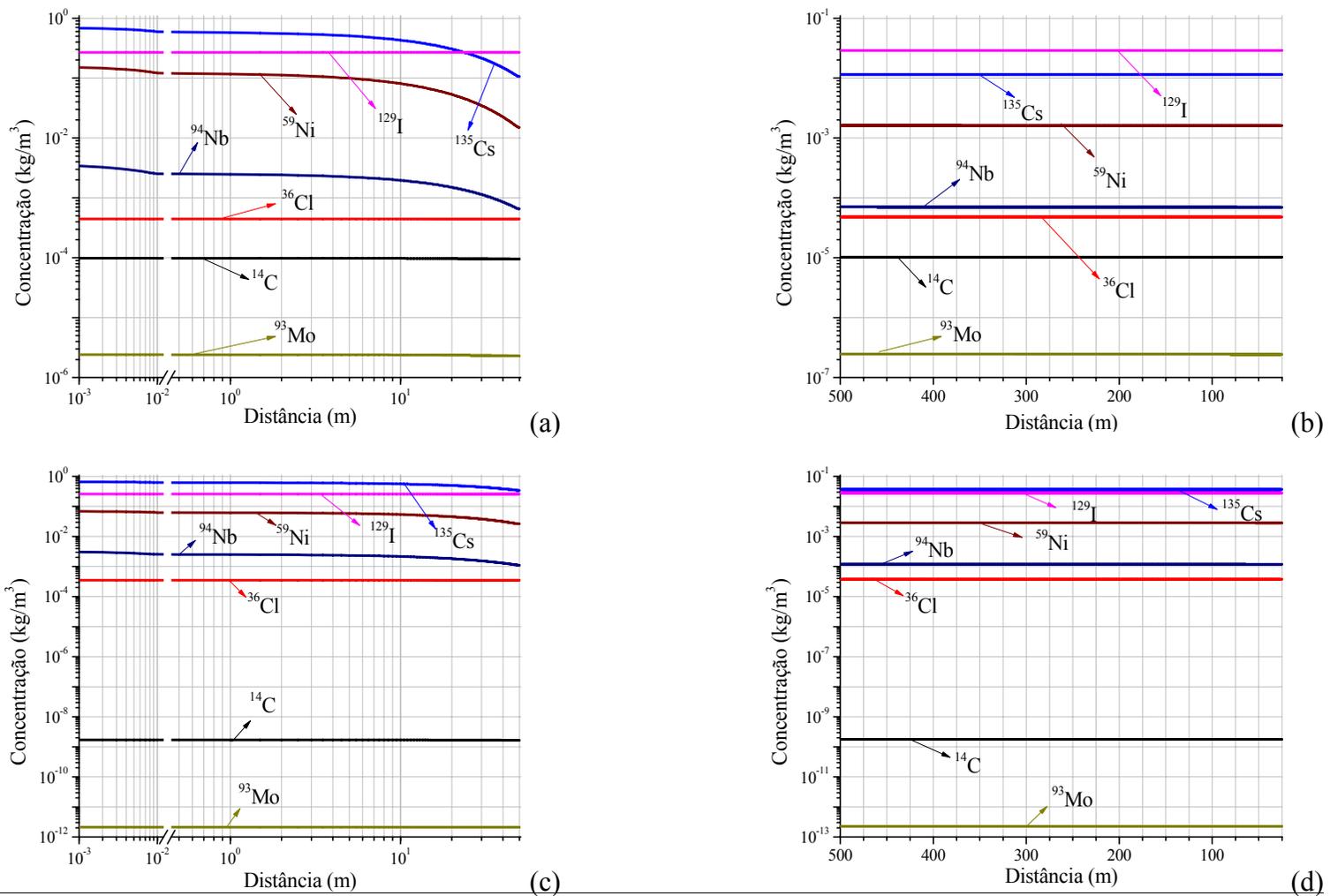


Figura 4.4 – Perfis das concentrações na bentonita/fratura (a,c), e lineamento (b,d), para o grupo 1 de núclídeos relevantes no combustível irradiado, em 10^4 (a,b) e 10^5 anos (c,d)

As Figuras 4.5 e 4.6 mostram os perfis das concentrações na fratura, incluindo a região da bentonita extrudada e lineamento para o grupo 2 dos nuclídeos produtos de fissão/ativação relevantes no rejeito radioativo de alta atividade: ^{63}Ni , ^{107}Pd , ^{151}Sm , ^{79}Se , ^{126}Sn , ^{90}Sr , ^{99}Tc e ^{93}Zr .

Na região da bentonita, nota-se que o ^{126}Sn e o ^{99}Tc são os nuclídeos mais afetados pela sorção, sendo seus atrasos na migração observados em todos os tempos de simulação. Os nuclídeos de meia-vida longa, que são pouco afetados pela bentonita foram ^{107}Pd , ^{93}Zr e ^{79}Se . E nota-se claramente a queda da concentração dos nuclídeos de meia-vida curta, como o ^{63}Ni (com meia-vida igual a 96 anos), ^{151}Sm (com meia-vida igual a 90 anos) e ^{90}Sr (com meia-vida igual a 29 anos), tendo a quantidade destes nuclídeos totalmente exaurida no tempo de 10^5 anos, (apresentada na Tabela 4.9).

Na região da fratura pode-se observar que o nuclídeo de menor coeficiente de difusão na matriz porosa - ^{79}Se - difunde-se pela fratura apresentando um equilíbrio na concentração nos tempos simulados. Já os de maior coeficiente de difusão na matriz porosa - ^{63}Ni , ^{107}Pd , ^{151}Sm , ^{126}Sn , ^{90}Sr , ^{99}Tc e ^{93}Zr - apresentam uma queda significativa na concentração, sendo que para os tempos maiores de simulação, explicitamente em 10^5 anos, os nuclídeos de menor fator de retardo na matriz porosa - ^{107}Pd e ^{126}Sn - apresentam uma queda menor na concentração ao final da fratura. Mesmo assim, os resultados mostram a importância da matriz porosa na retenção destes nuclídeos no meio geológico.

Para a região do lineamento, aqui também os perfis em 10^2 anos não se encontram totalmente desenvolvidos e, nos demais, sim. Também se observa a queda da concentração de saída da fratura e início do lineamento devido à diluição nesta região. A queda na concentração dos nuclídeos ao longo do lineamento é imperceptível na escala considerada.

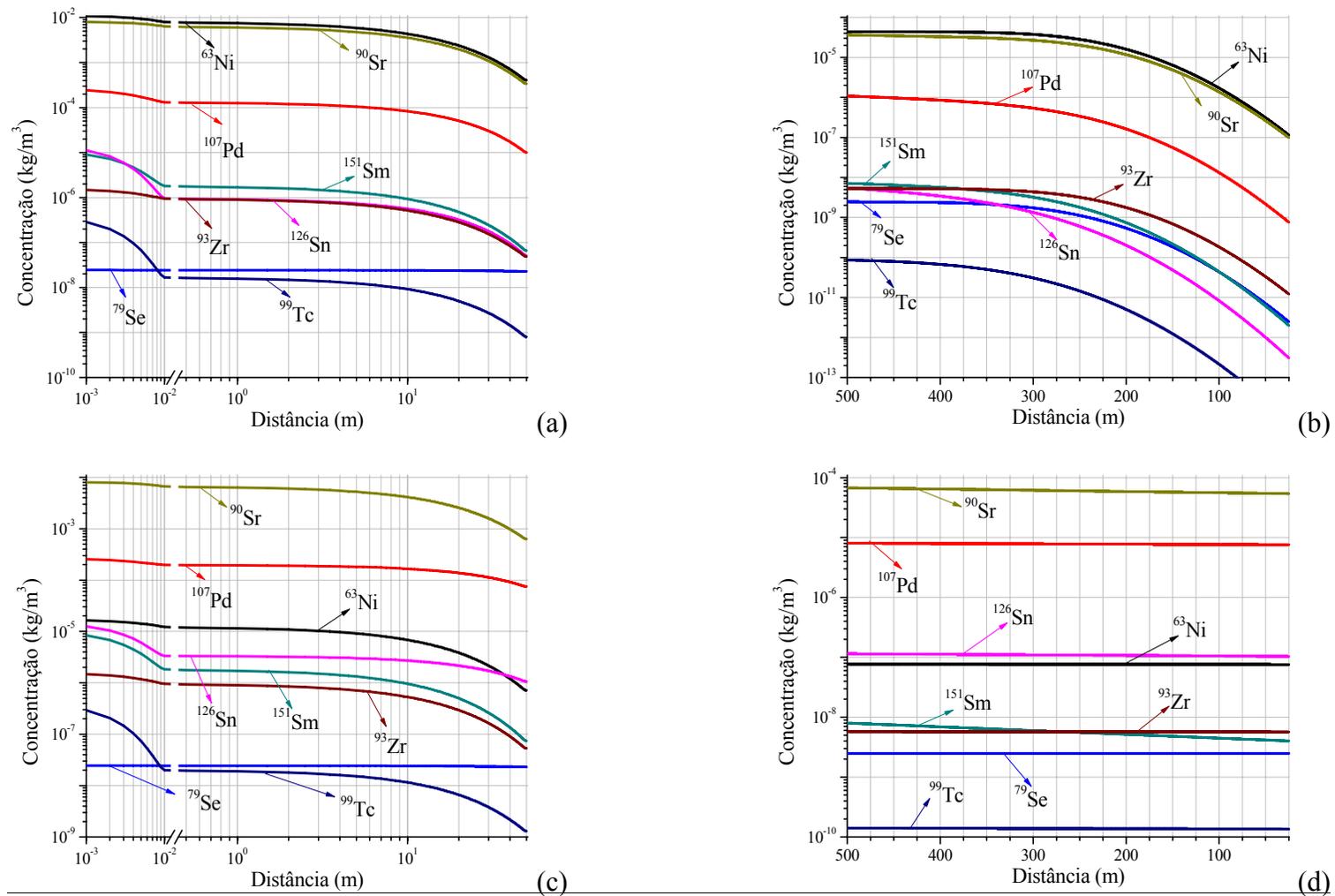
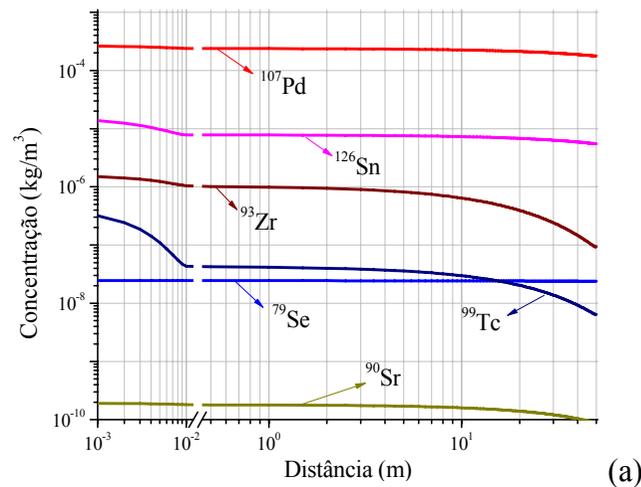
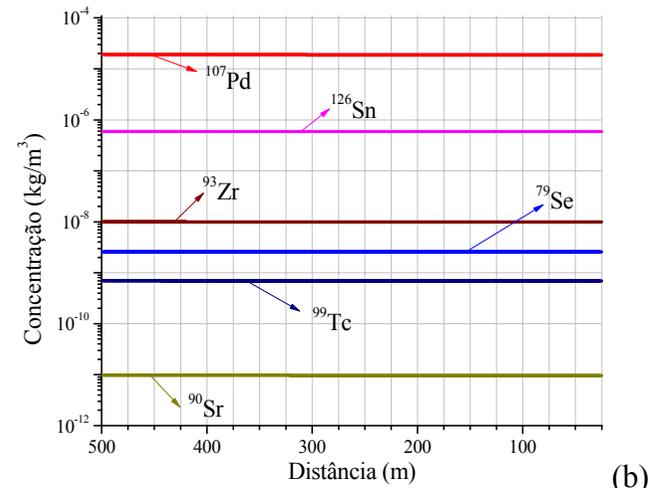


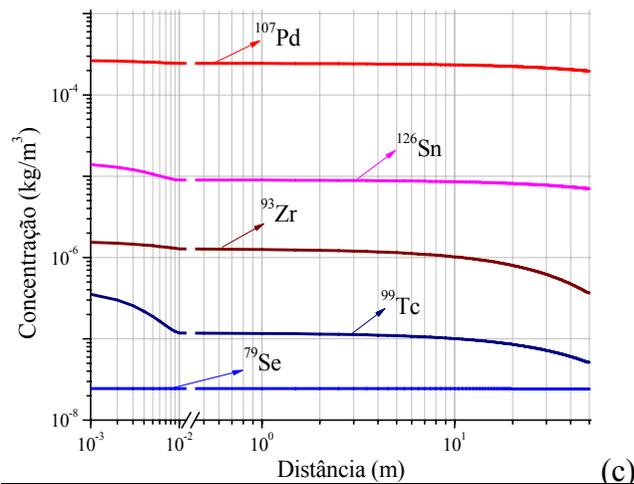
Figura 4.5 – Perfis das concentrações na bentonita, fratura (a, c), e lineamento (b, d), para o grupo 2 de nuclídeos relevantes no combustível irradiado, em 10² (a, b) e 10³ anos (c, d)



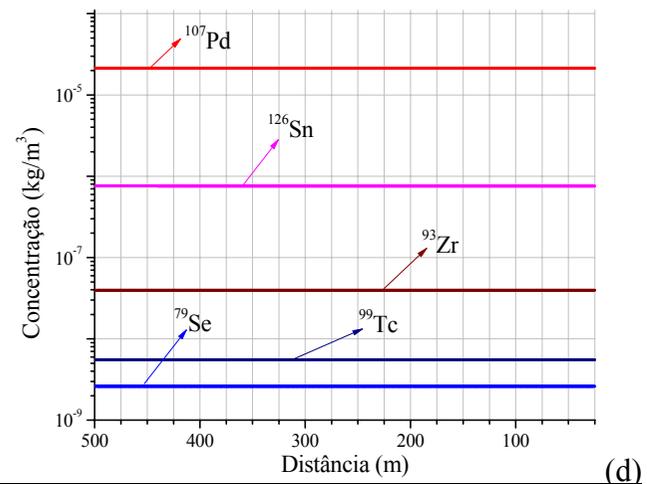
(a)



(b)



(c)



(d)

Figura 4.6 – Perfil das concentrações na bentonita/fratura (a,c) e lineamento (b,d) para o grupo 2 de nuclídeos relevantes no combustível irradiado, em 10^4 (a,b) e 10^5 anos (c,d)

As figuras seguintes apresentam os gráficos para os nuclídeos das cadeias de actínídeos importantes no combustível irradiado.

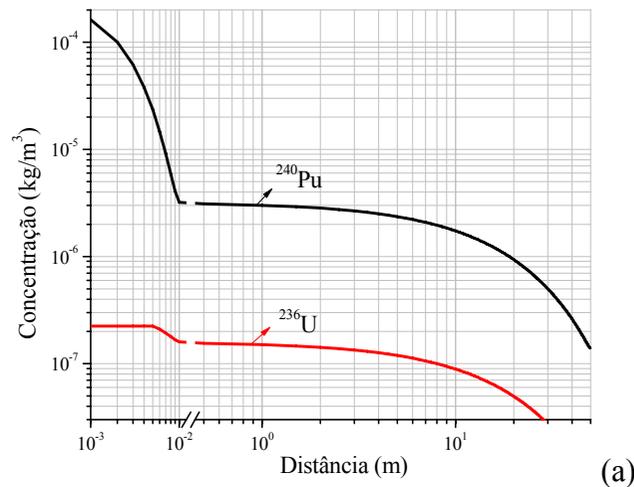
As Figuras 4.7 e 4.8 mostram os perfis das concentrações na região da bentonita extrudada, fratura e lineamento para os nuclídeos relevantes no rejeito radioativo de alta atividade da cadeia $4n$: $^{240}\text{Pu} \rightarrow ^{236}\text{U}$. A Figura 4.7 apresenta os perfis das concentrações em 10^2 e 10^3 anos e a Figura 4.8 apresenta os perfis das concentrações em 10^4 e 10^5 anos.

Na região da bentonita nota-se uma leve retenção para o ^{236}U nos dois primeiros tempos simulados - 10^2 e 10^3 anos, após este tempo, nas simulações 10^4 e 10^5 anos, a bentonita apresenta-se saturada deste nuclídeo.

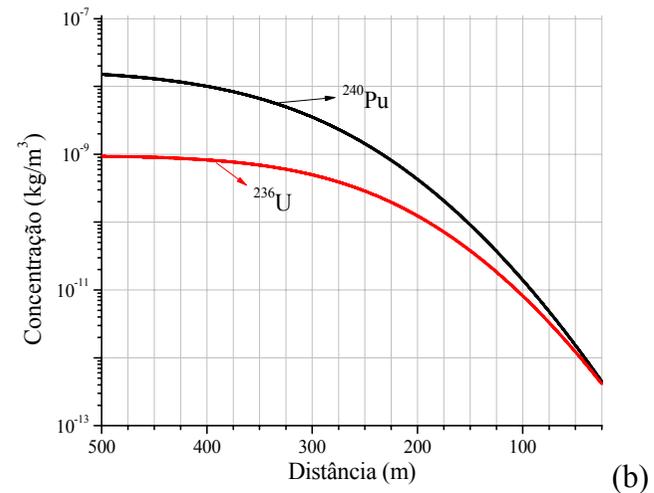
Contudo, o ^{240}Pu na região da bentonita extrudada apresenta um atraso significativo na migração em todos os tempos simulados, mostrando assim a importância desta argila para a retenção deste nuclídeo, lembrando que este elemento é um dos que têm maior impacto radiológico.

Para a região da fratura pode-se observar a contribuição que a matriz porosa tem sobre estes nuclídeos, pois ambos demonstram a queda na concentração nos tempos 10^3 , 10^4 e 10^5 anos. No tempo 10^5 anos o decaimento do ^{240}Pu mostra-se evidente, com diminuição da concentração por toda a fratura, e o ganho de massa e meia-vida longa do ^{236}U faz com sua concentração alcance um patamar ao longo da fratura.

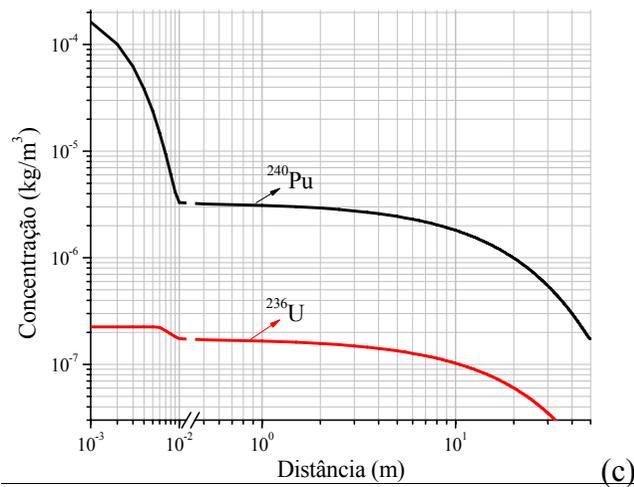
Para a região do lineamento, aqui também os perfis em 10^2 anos não se encontram totalmente desenvolvidos e, nos demais, sim. Também se observa a queda da concentração de saída da fratura devido à diluição nesta região. A queda da concentração do ^{240}Pu e o aumento da concentração do ^{236}U são imperceptíveis nesta escala.



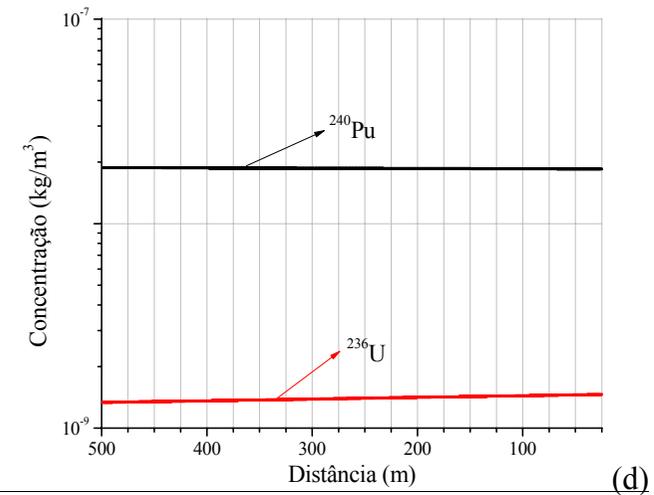
(a)



(b)

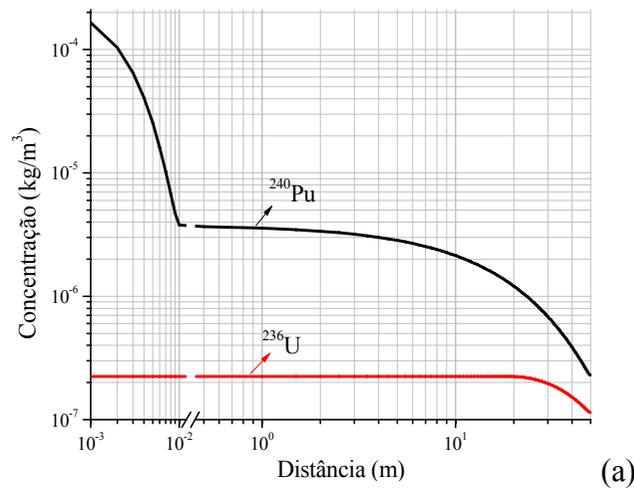


(c)

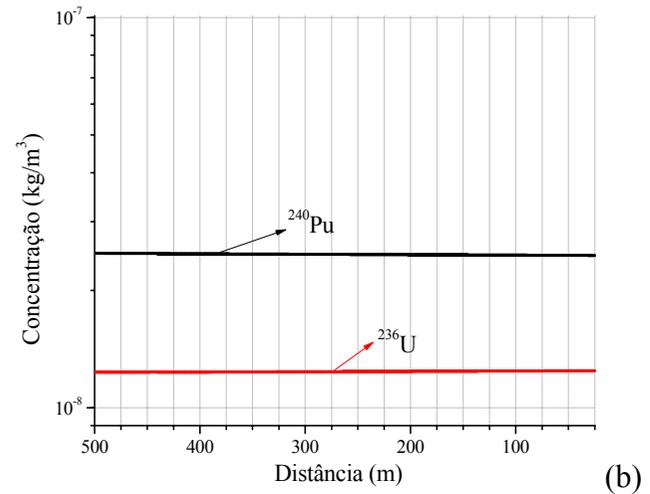


(d)

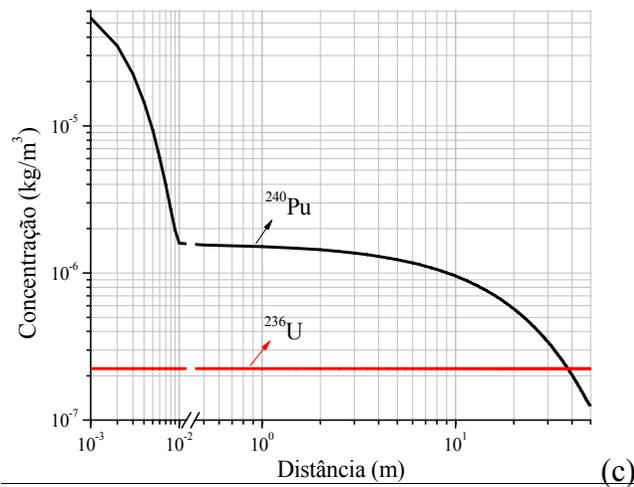
Figura 4.7 – Perfis das concentrações na bentonita/fratura (a,c) e lineamento (b,d), para os nuclídeos relevantes na cadeia $4n$ ($^{240}\text{Pu} \rightarrow ^{236}\text{U}$), em 10^2 (a,b) e 10^3 anos (c,d)



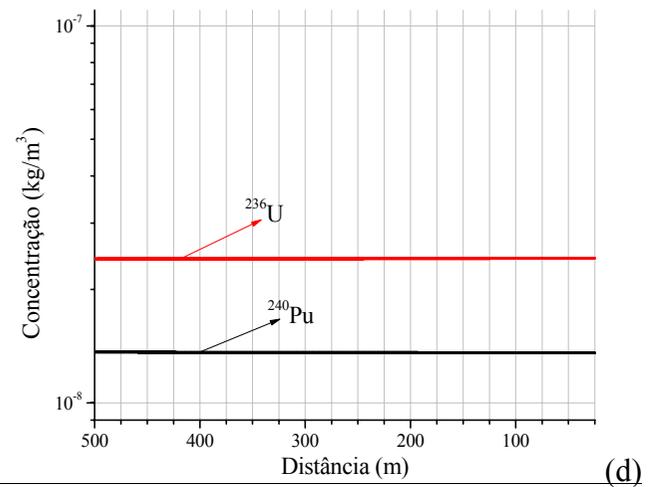
(a)



(b)



(c)



(d)

Fig. 4.8 – Perfis das concentrações na bentonita/fratura (a,c) e lineamento (b,d) para os nuclídeos relevantes na cadeia $4n$ ($^{240}\text{Pu} \rightarrow ^{236}\text{U}$), em 10^4 (a,b) e 10^5 anos (c,d)

As Figuras 4.9 e 4.10 mostram os perfis das concentrações para os nuclídeos relevantes no rejeito radioativo de alta atividade da cadeia $4n+1$: $^{245}\text{Cm} \rightarrow ^{241}\text{Am} \rightarrow ^{237}\text{Np} \rightarrow ^{233}\text{U} \rightarrow ^{229}\text{Th}$, na região da bentonita extrudada, fratura, e lineamento. Esta série apresenta a família radioativa de maior impacto radiológico ($^{245}\text{Cm} \rightarrow ^{241}\text{Am} \rightarrow ^{237}\text{Np}$).

Nota-se o surgimento e crescimento na quantidade do ^{229}Th , nuclídeo que não havia no rejeito quando disposto na cavidade de deposição, mas que foi gerado por decaimento do ^{233}U .

Este nuclídeo, ^{229}Th , apresenta significativa retenção na bentonita assim como para o ^{241}Am e ^{245}Cm , sendo que estes dois últimos apresentam parâmetros similares, diferindo apenas no tempo de meia-vida, (^{245}Cm com meia-vida igual a $8,5 \cdot 10^3$ anos e o ^{241}Am com meia-vida de $4,3 \cdot 10^2$ anos), proporcionando assim o afastamento dos perfis ao longo do tempo, mas alcançando um equilíbrio ao final de 10^5 anos. Para o nuclídeo ^{233}U sua retenção é pouco notada, assim como para o nuclídeo ^{237}Np que, nos tempos finais da simulação, apresenta saturação na região da bentonita.

Na região da fratura observa-se a contribuição que a matriz porosa tem sobre estes nuclídeos, excetuando o ^{237}Np (nuclídeo de maior meia-vida nesta cadeia) que, em 10^5 anos, apresenta uma concentração equilibrada ao longo da fratura devido ao ganho de massa pelo decaimento de seu precursor de menor meia-vida ^{241}Am (meia-vida do ^{241}Am é igual a $4,3 \cdot 10^2$ anos e do ^{237}Np é igual a $2,1 \cdot 10^6$ anos).

Na região do lineamento os perfis das concentrações também estão completamente desenvolvidos, excetuando em 10^2 anos. As concentrações na interface fratura/lineamento apresentam a queda devido à diluição no meio e, também as variações na concentração são pequenas, imperceptíveis na escala considerada.

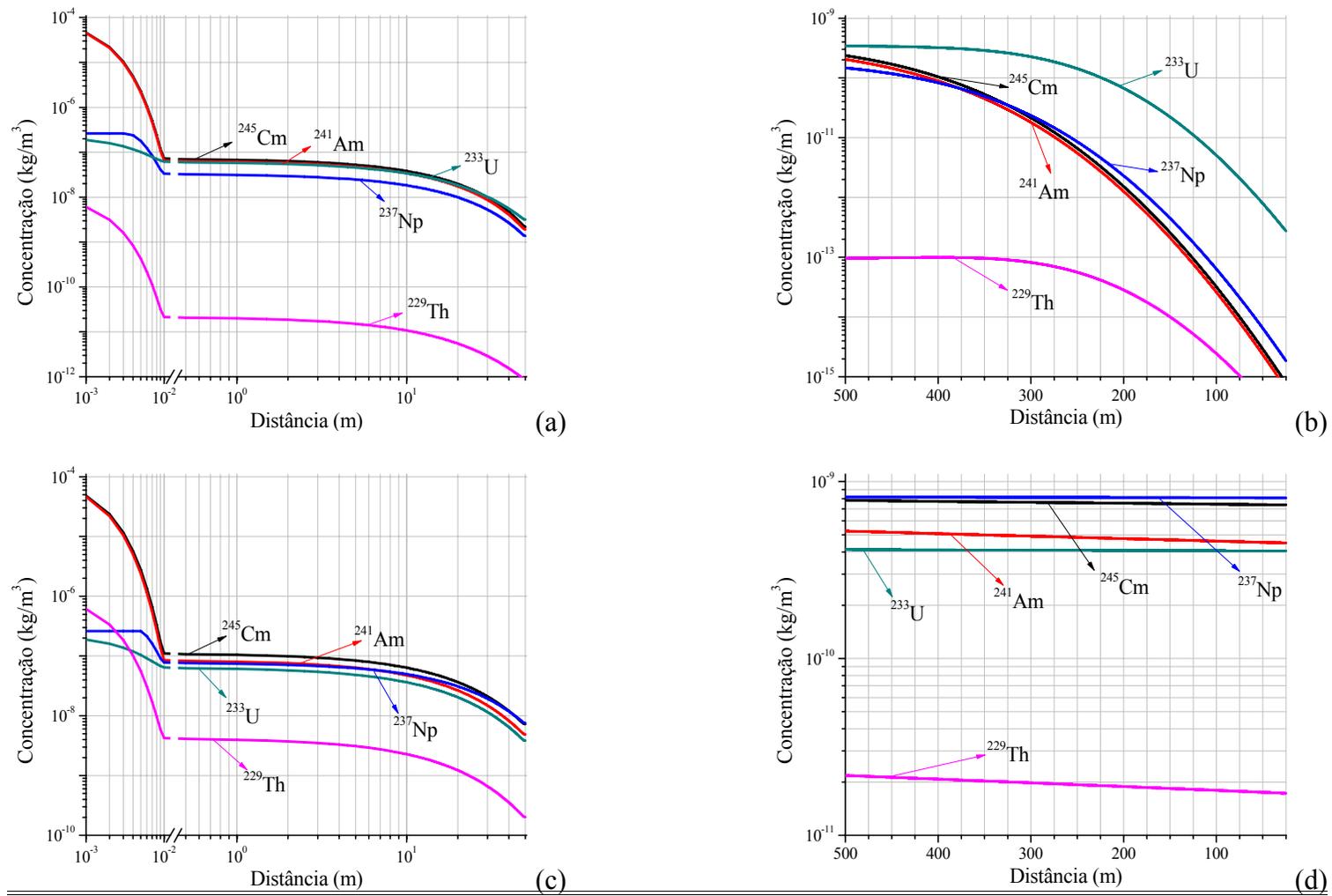
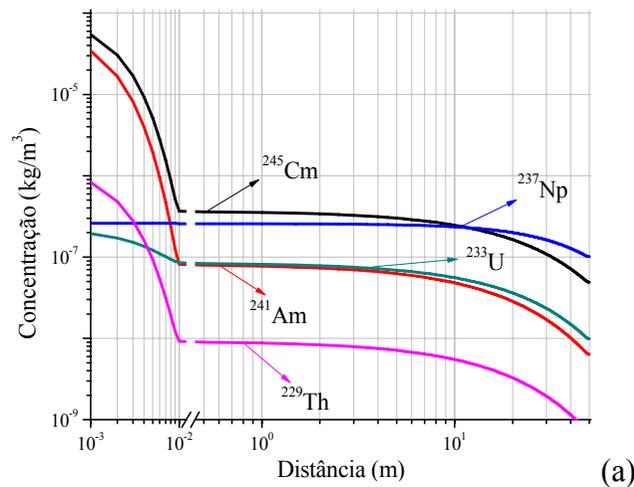
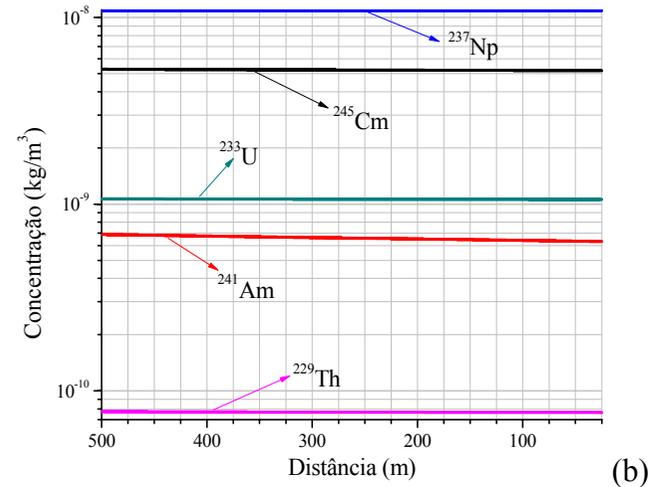


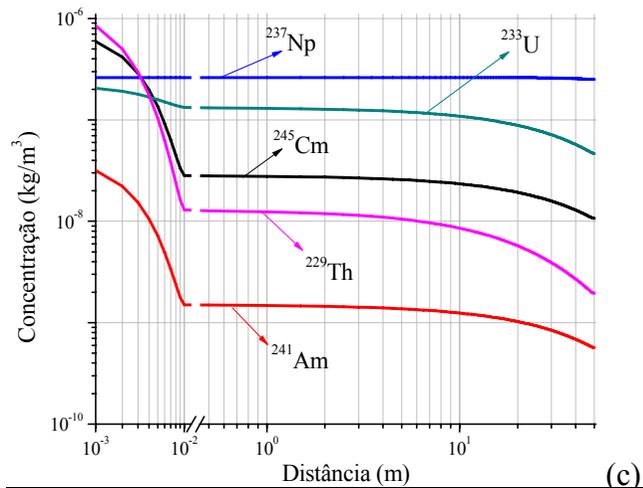
Fig. 4.9 - Perfis das concentrações na bentonita/fratura (a,c) e lineamento (b,d) para os nuclídeos relevantes na cadeia $4n+1$ ($^{245}\text{Cm} \rightarrow ^{241}\text{Am} \rightarrow ^{237}\text{Np} \rightarrow ^{233}\text{U} \rightarrow ^{229}\text{Th}$), em 10² (a,b) e 10³ anos (c,d)



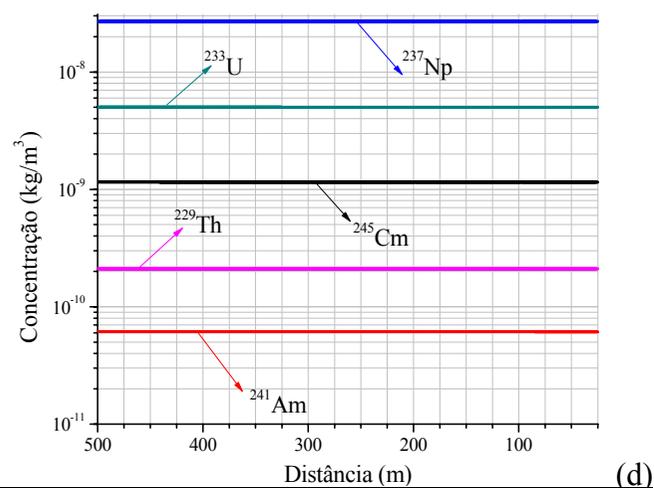
(a)



(b)



(c)



(d)

Fig. 4.10 - Perfis das concentrações na bentonita/fratura (a,c) e lineamento (b,d) para os nuclídeos relevantes na cadeia $4n+1$ ($^{245}\text{Cm} \rightarrow ^{241}\text{Am} \rightarrow ^{237}\text{Np} \rightarrow ^{233}\text{U} \rightarrow ^{229}\text{Th}$), em 10^4 (a,b) e 10^5 anos (c,d)

As Figuras 4.11 e 4.12 mostram os perfis das concentrações para os nuclídeos relevantes no rejeito radioativo de alta atividade da cadeia $4n+2$: $^{246}\text{Cm} \rightarrow ^{242}\text{Pu} \rightarrow ^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{U} \rightarrow ^{230}\text{Th} \rightarrow ^{226}\text{Ra}$, na região da bentonita extrudada, fratura e lineamento.

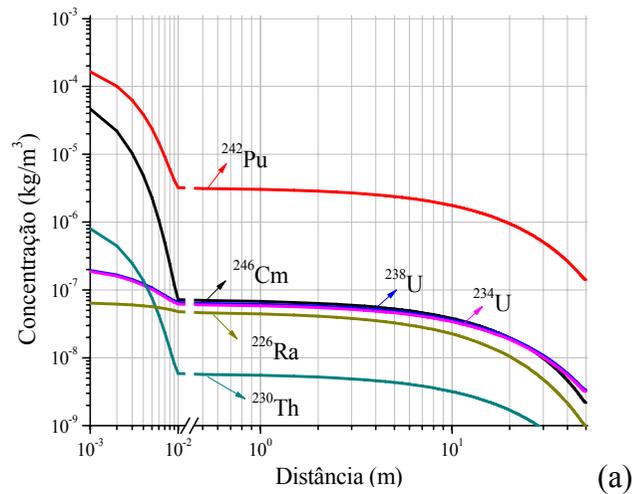
Nesta cadeia se também nota o surgimento do ^{226}Ra , radioisótopo que não havia no rejeito quando disposto na cavidade de disposição, mas que foi gerado por decaimento do ^{230}Th .

Nota-se o crescimento do ^{226}Ra , que embora seja o nuclídeo de menor meia-vida nesta cadeia, 1.600 anos, vê-se que ele não tem um decréscimo significativo no tempo, devido à geração por decaimento e por apresentar um pequeno retardo na região da bentonita extrudada. Já para o ^{246}Cm , de meia-vida igual a 4.700 anos, por ser o primeiro elemento da cadeia, observa-se o decréscimo da sua concentração no tempo.

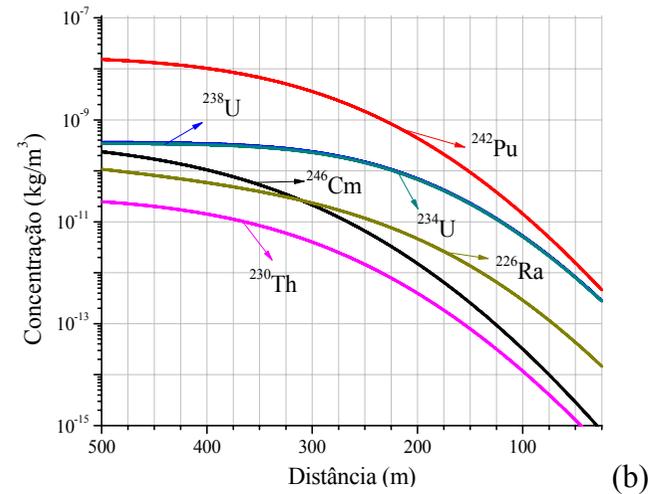
Os nuclídeos ^{246}Cm , ^{242}Pu e ^{230}Th são bastante afetados pela bentonita, mostrando significativa importância da bentonita na retenção destes radionuclídeos.

Nota-se a retenção acometida a estes nuclídeos no meio poroso, sendo que para o tempo 10^5 anos o ^{238}U apresenta saturação na fratura, ocasionada pelo grande inventário e pelo ganho de massa proporcionada pelo decaimento de seu precursor de menor meia-vida, ^{242}Pu . Para os outros nuclídeos desta cadeia é considerável a retenção no meio geológico em todos os tempos analisados.

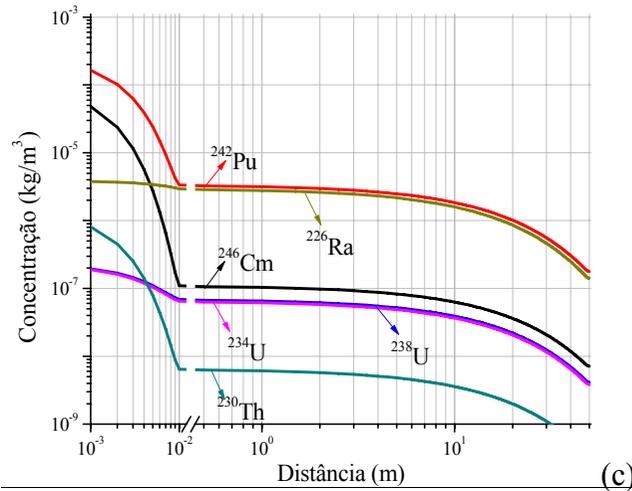
Para esta cadeia na região do lineamento os perfis também estão completamente desenvolvidos, excetuando em 10^2 anos. As concentrações apresentam queda devido à diluição no meio e, também as variações na concentração são pequenas, imperceptíveis nesta escala.



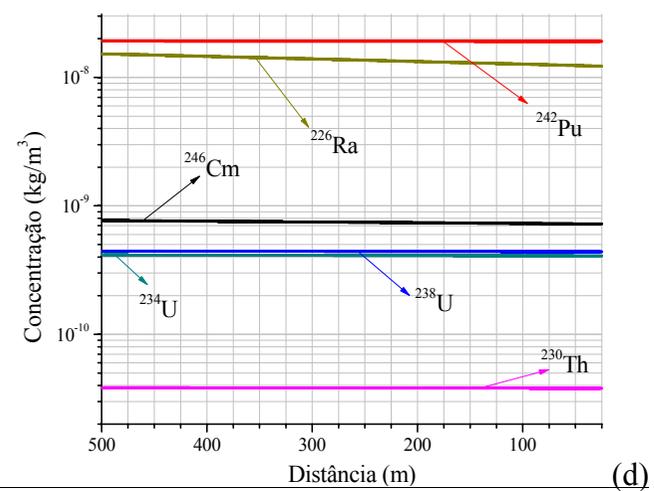
(a)



(b)

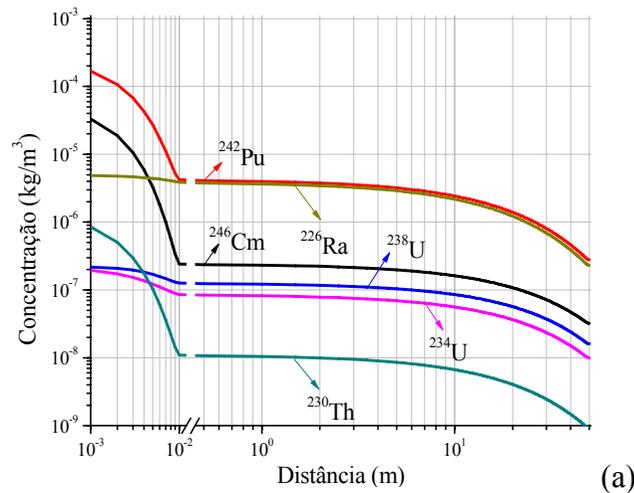


(c)

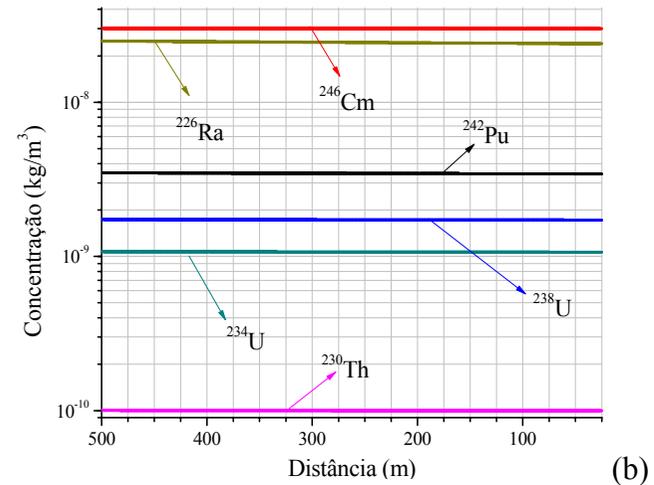


(d)

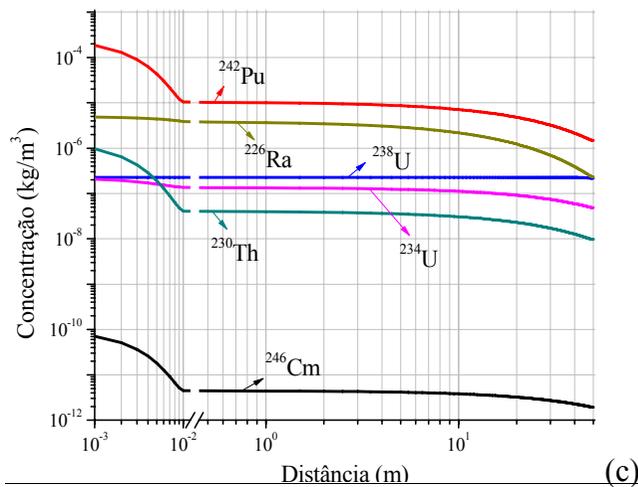
Fig. 4.11 - Perfis das concentrações na bentonita/fratura (a,c) e lineamento (b,d), para os núclídeos relevantes na cadeia $4n+2$ ($^{246}\text{Cm} \rightarrow ^{242}\text{Pu} \rightarrow ^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{U} \rightarrow ^{230}\text{Th} \rightarrow ^{226}\text{Ra}$), em 10^2 (a,b) e 10^3 anos (c,d)



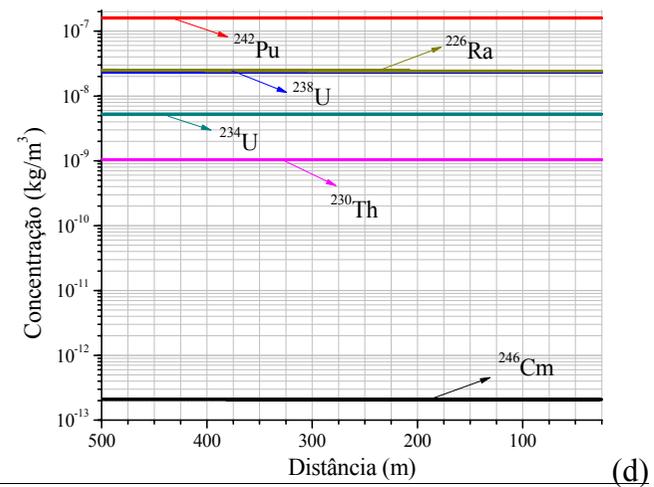
(a)



(b)



(c)



(d)

Fig. 4.12 - Perfis das concentrações na bentonita/fratura (a,c) e lineamento (b,d), para os núclídeos relevantes na cadeia $4n+2$ ($^{246}\text{Cm} \rightarrow ^{242}\text{Pu} \rightarrow ^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{U} \rightarrow ^{230}\text{Th} \rightarrow ^{226}\text{Ra}$), em 10^4 (a,b) e 10^5 anos (c,d)

As Figuras 4.13 e 4.14 mostram os perfis das concentrações na região da bentonita extrudada, fratura e lineamento para os nuclídeos relevantes no rejeito radioativo de alta atividade da cadeia $4n+3$: $^{243}\text{Am} \rightarrow ^{239}\text{Pu} \rightarrow ^{235}\text{U} \rightarrow ^{231}\text{Pa}$. A Figura 4.13 apresenta os perfis das concentrações em 10^2 e 10^3 anos e a Figura 4.14 apresenta os perfis das concentrações em 10^4 e 10^5 anos.

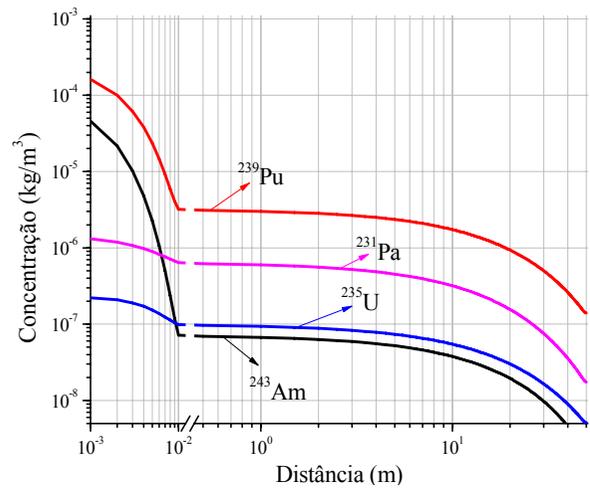
Nesta cadeia o ^{243}Am aparece como o radionuclídeo de maior importância, não somente por causa de sua meia-vida, mas também por ser precursor do ^{239}Pu , elemento de grande impacto radiológico.

Na região da bentonita extrudada observa-se um atraso significativo nos nuclídeos ^{243}Am e ^{239}Pu em todos os tempos de simulação. Pode-se notar o ganho em massa do nuclídeo ^{231}Pa por decaimento do seu precursor ^{235}U , e o leve atraso do nuclídeo ^{235}U e sua saturação na região da bentonita extrudada nos tempos finais de simulação.

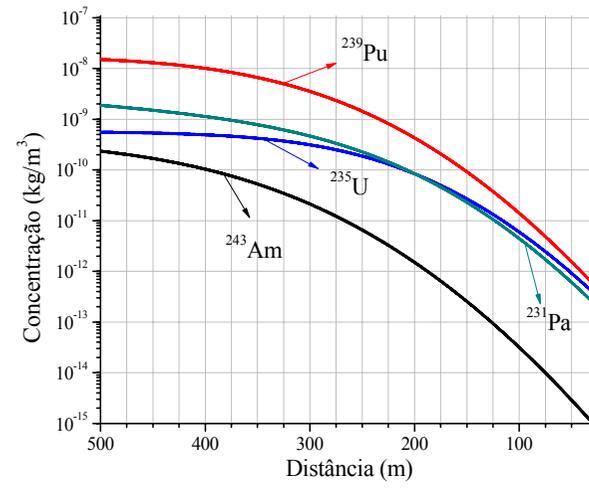
Visualiza-se nos gráficos o surgimento do ^{231}Pa , nuclídeo que não havia no rejeito quando disposto na cavidade de deposição, mas que foi gerado pelo decaimento de seu precursor ^{235}U . E que sua concentração excede a do seu precursor por possuir um limite de solubilidade maior.

Na região da fratura estes nuclídeos têm uma considerável retenção no meio geológico, sendo que em 10^5 anos o ^{235}U se encontra em equilíbrio próximo ao limite de solubilidade.

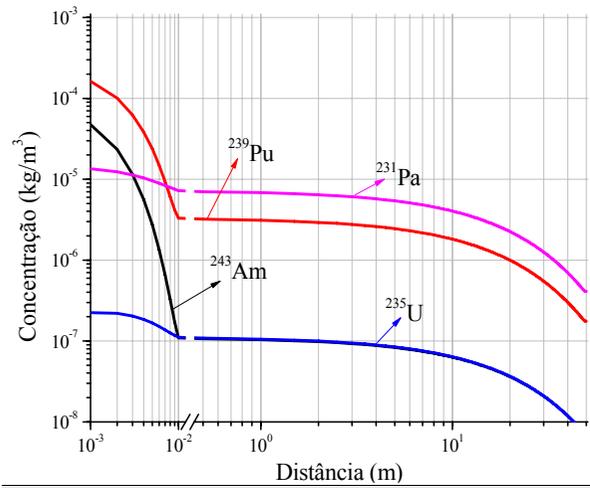
Na região do lineamento para esta cadeia os perfis também estão completamente desenvolvidos excetuando em 10^2 anos. As concentrações apresentam queda devido à diluição no meio e, também as variações na concentração são pequenas, imperceptíveis nesta escala.



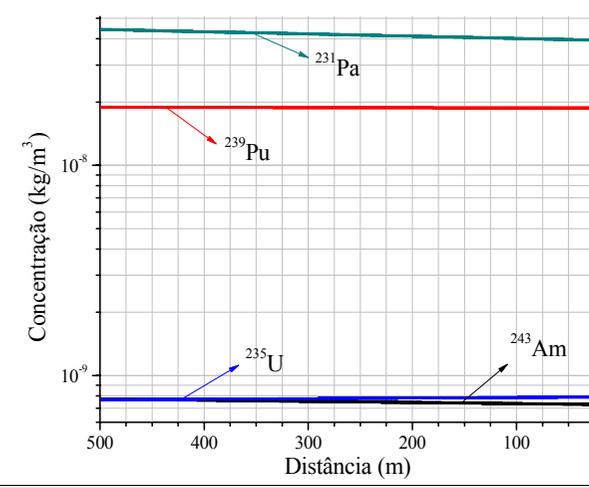
(a)



(b)

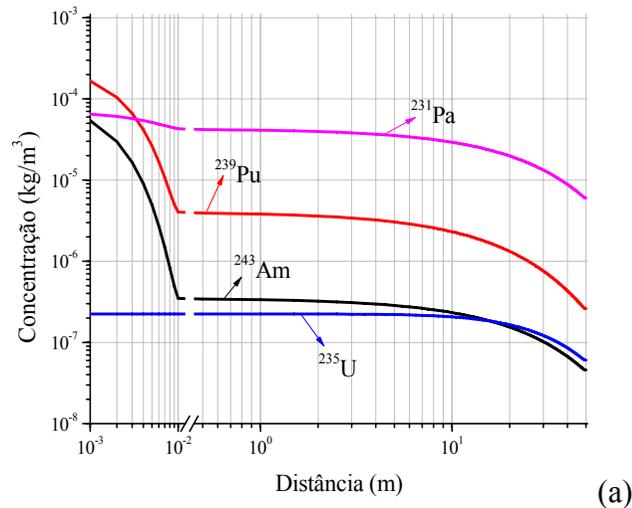


(c)

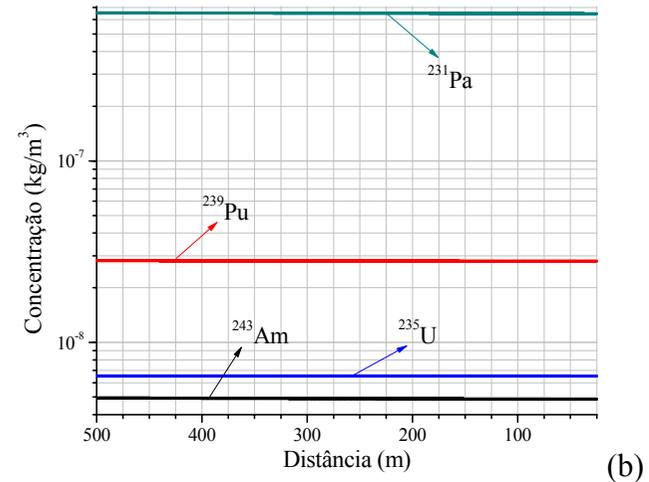


(d)

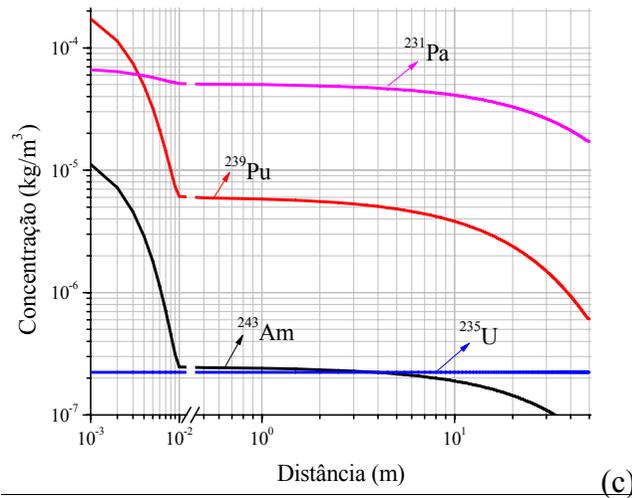
Fig. 4.13 - Perfis das concentrações na bentonita/fratura (a,c) e lineamento (b,d), para os nuclídeos relevantes na cadeia $4n+3$ ($^{243}\text{Am} \rightarrow ^{239}\text{Pu} \rightarrow ^{235}\text{U} \rightarrow ^{231}\text{Pa}$), em 10^2 (a,b) e 10^3 anos (c,d)



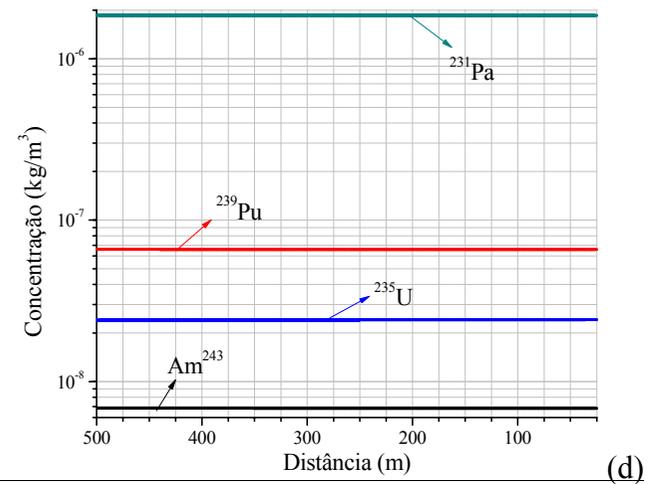
(a)



(b)



(c)



(d)

Fig. 4.14 - Perfis das concentrações na bentonita/fratura (a,c) e lineamento (b,d), para os nuclídeos relevantes na cadeia $4n+3$ ($^{243}\text{Am} \rightarrow ^{239}\text{Pu} \rightarrow ^{235}\text{U} \rightarrow ^{231}\text{Pa}$), em 10^4 (a,b) e 10^5 anos (c,d)

4.5 Variação da Massa de Radioisótopos na Cápsula de Deposição

No cenário de liberação considerado, a geometria da área de descarga das fraturas (fratura horizontal e feixe de microfraturas verticais no lineamento) é expressa por uma região circular. Para a determinação da massa na cápsula de deposição utilizou-se a seguinte equação:

$$Massa(k) = \frac{t_{1/2}(k) \cdot A(k) \cdot Z(k)}{\log 2 \cdot 6,022141 \cdot 10^{23}} \quad (15)$$

onde:

$t_{1/2}(k)$ é a meia vida do radionuclídeo k ;

$A(k)$ é a atividade do radionuclídeo k ;

$Z(k)$ é a massa atômica do radionuclídeo k ; e

$6,022141 \cdot 10^{23}$ é o Número de Avogadro.

Para a determinação da massa que é transportada através de um determinado ponto, calculou-se o fluxo neste ponto e o multiplicou pela área de descarga e pelo tempo considerado.

Nesta análise, a simulação gerou dados para a quantificação da massa de radionuclídeos que estava na cápsula de deposição e quantificou o acumulado que foi liberado para a geosfera e a quantidade que foi transportada para o meio ambiente nos tempos 10^2 , 10^3 , 10^4 e 10^5 anos. Os dados gerados têm por objetivo mostrar uma característica intrínseca dos rejeitos radioativos, que por decaimento têm suas quantidades diminuindo ou aumentando no tempo, direcionando as estratégias de gestão desses rejeitos, denotando a importância de um ou de outro radionuclídeo devido a esta característica.

Para demonstrar a variação de massa destes nuclídeos importantes do rejeito radioativo de alta atividade no combustível irradiado foi utilizado o gráfico de colunas, mostrando as variações da massa nos tempos: 10^2 anos, 10^3 anos, 10^4 anos e 10^5 anos. Dentro de cada escala de tempo observa-se a massa contida na cápsula de deposição

(cor verde), o acumulado da massa que foi liberado para a fratura (cor rosa) e o acumulado que foi transportado para o meio ambiente (cor vermelha).

A Figura 4.15 apresenta a variação da massa no tempo para o grupo 1 de nuclídeos relevantes do combustível irradiado: ^{14}C , ^{36}Cl , ^{135}Cs , ^{137}Cs , ^{129}I , ^{93}Mo , ^{94}Nb e ^{59}Ni . Neste grupo pode-se observar que os nuclídeos ^{14}C , ^{36}Cl , ^{129}I e ^{93}Mo que não apresentam retardo na bentonita tendem a migrar quase a totalidade do que foi liberado na fratura para o meio ambiente, revelando assim um valor aproximado entre o acumulado da massa liberada para a fratura e meio ambiente após 10^3 anos. Observa-se também o decaimento do nuclídeo de menor meia-vida, ^{137}Cs (com meia-vida igual a 30 anos) sendo totalmente exaurido no tempo final de simulação (Tabela 4.9).

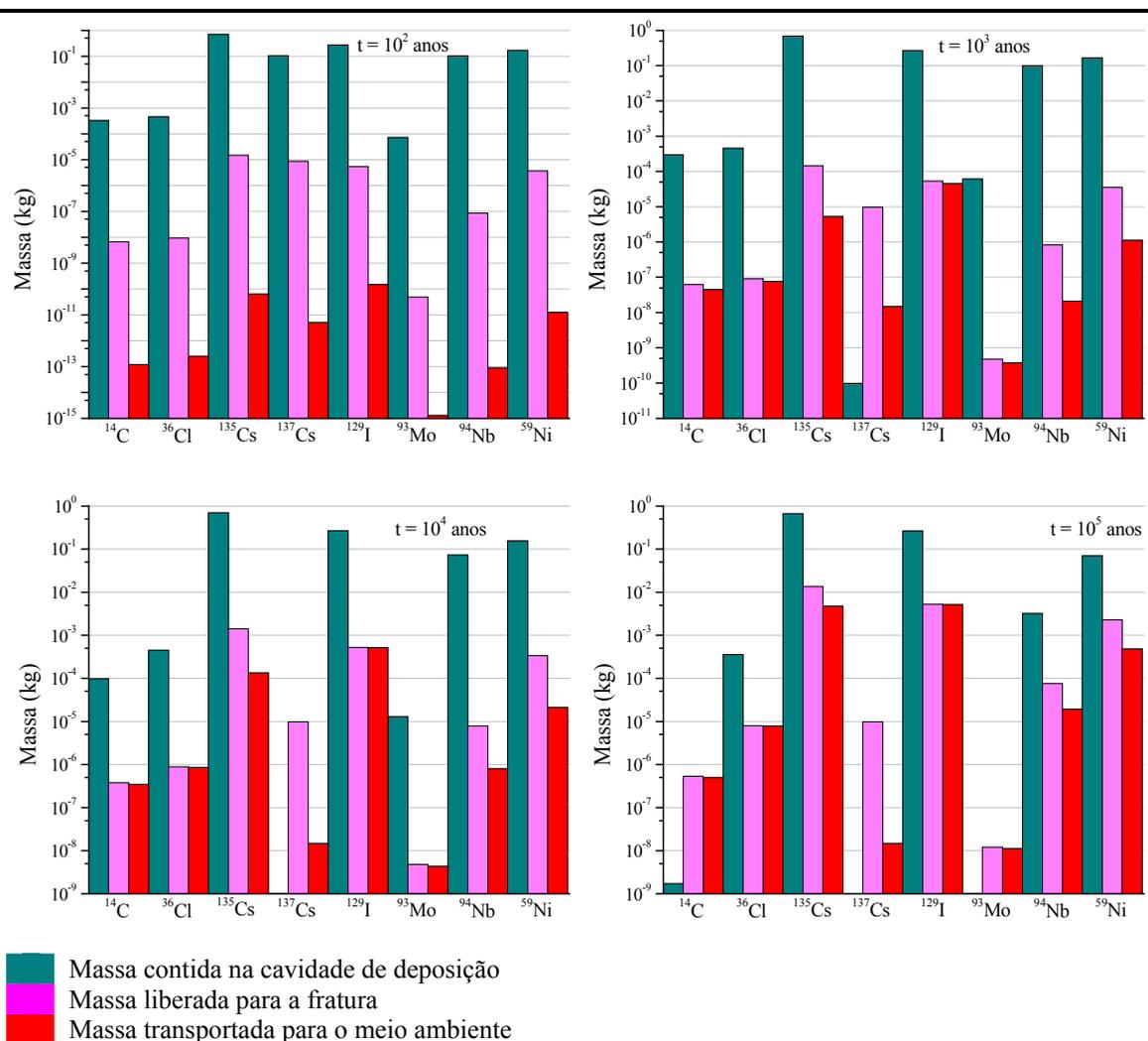


Figura 4.15 – Variação da massa no tempo para os nuclídeos do grupo 1, na cavidade de deposição e o acumulado liberado para a fratura e transportado para o meio ambiente

A Figura 4.16 mostra a variação da massa no tempo para o grupo 2 de radionuclídeos importantes no combustível irradiado: ^{63}Ni , ^{107}Pd , ^{151}Sm , ^{79}Se , ^{126}Sn , ^{90}Sr , ^{99}Tc e ^{93}Zr .

Neste grupo o ^{79}Se apresenta uma alta taxa de transferência da massa liberada na fratura para o meio ambiente, decorrente da falta de retardo na bentonita e pouca sorção na matriz porosa.

Observa-se claramente o decaimento dos nuclídeos de menores meias-vidas, ^{63}Ni (com meia-vida igual a 96 anos), ^{151}Sm (com meia-vida igual a 90 anos) e ^{90}Sr (com meia-vida igual a 29 anos), apresentando quantidades irrisórias ao final da simulação sendo mais bem observado na Tabela 4.9.

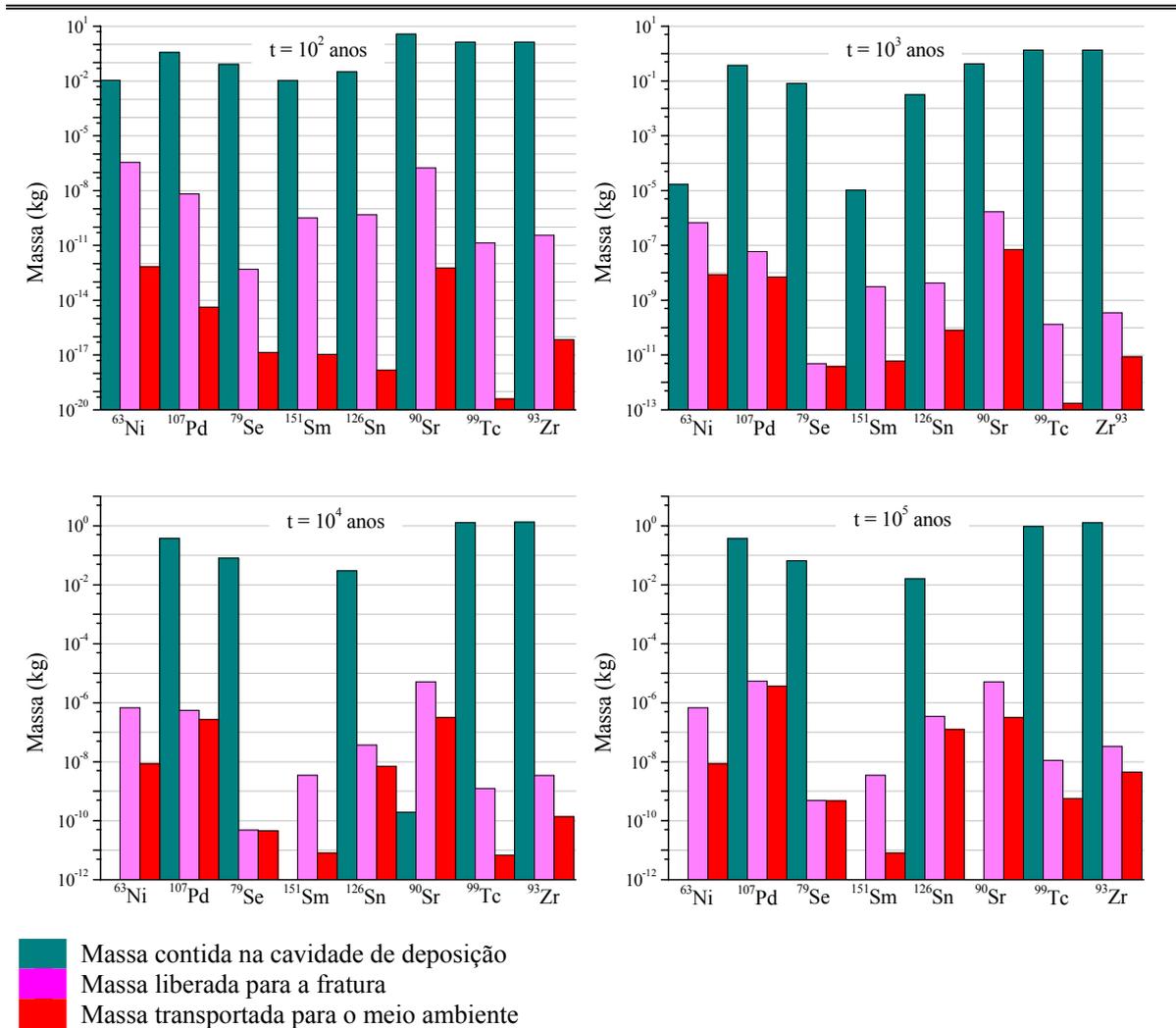


Figura 4.16 – Variação da massa no tempo para os nuclídeos do grupo 2, na cavidade de deposição e o acumulado liberado para a fratura e transportado para o meio ambiente

A Figura 4.17 apresenta a variação da massa no tempo para os radionuclídeos importantes no combustível irradiado da cadeia 4n: $^{240}\text{Pu} \rightarrow ^{236}\text{U}$.

Por causa da retenção na bentonita e difusão para o meio poroso, observa-se uma considerável diferença nos valores acumulados de massa liberados para a fratura e para o meio ambiente do ^{240}Pu pela análise do degrau apresentado no gráfico.

Já para o ^{236}U , cuja retenção na bentonita extrudada é pequena, apresentando saturação nesta região no tempo 10^5 anos, observa-se que os acumulados de massa liberada apresentam a mesma ordem de grandeza. Devido à escala, o ganho de massa do ^{236}U é mais bem visualizado na Tabela 4.8.

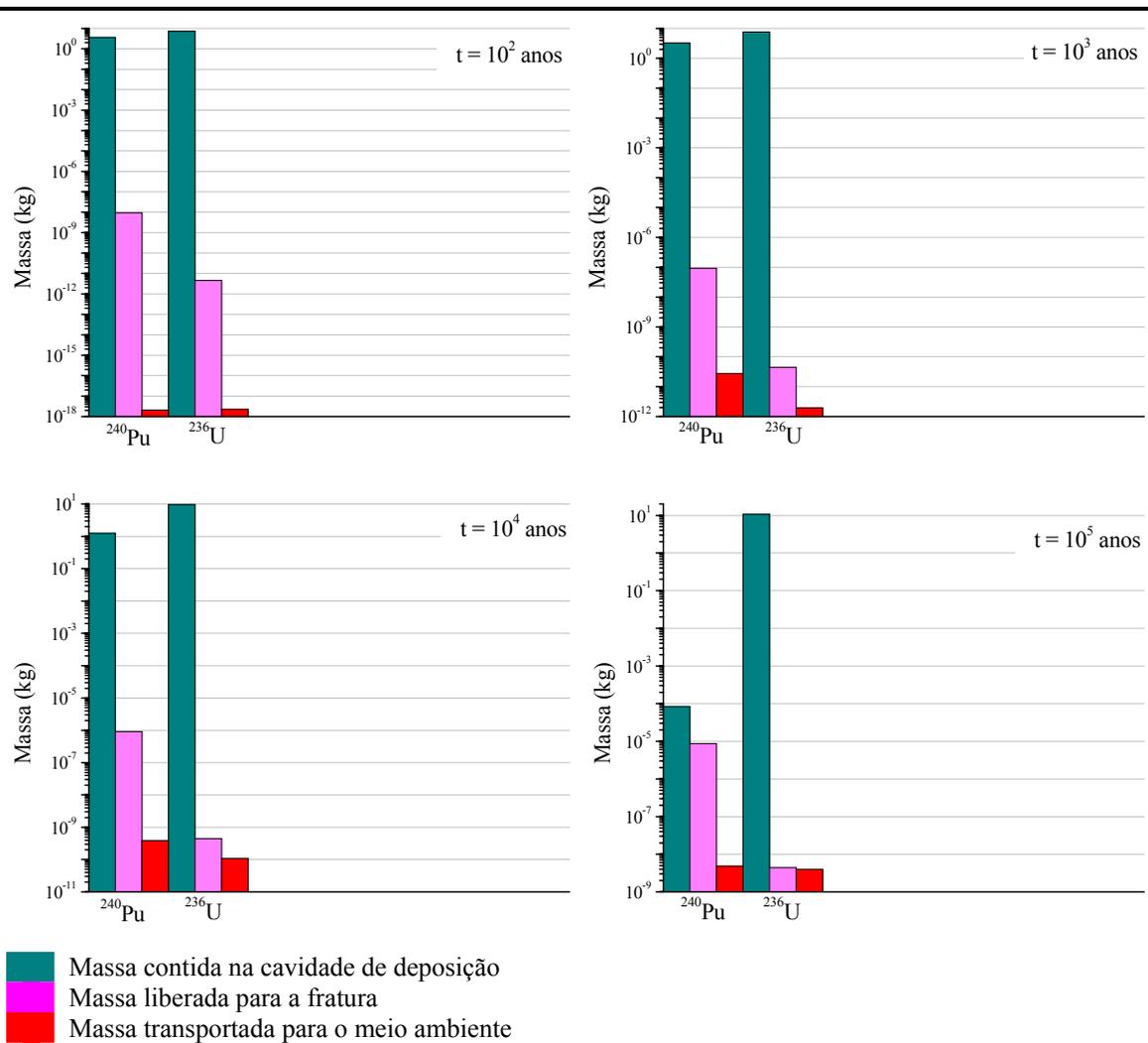


Figura 4.17 – Variação da massa no tempo para os núclídeos da cadeia 4n, na cavidade de deposição e o acumulado liberado para a fratura e transportado para o meio ambiente

A Figura 4.18 apresenta a variação da massa na cápsula de deposição no tempo para os radionuclídeos importantes no combustível irradiado da cadeia 4n+1: $^{245}\text{Cm} \rightarrow ^{241}\text{Am} \rightarrow ^{237}\text{Np} \rightarrow ^{233}\text{U} \rightarrow ^{229}\text{Th}$.

Devido à escala, o ganho de massa na cápsula de deposição do ^{237}Np , nuclídeo de maior meia-vida nesta cadeia (com meia-vida igual a $2,1 \cdot 10^6$ anos), é mais bem visualizado na Tabela 4.8. Visualiza-se o decréscimo na massa na cápsula de deposição dos nuclídeos ^{245}Cm (com meia-vida igual a $8,5 \cdot 10^3$ anos) e ^{241}Am (com meia-vida igual a $4,3 \cdot 10^2$ anos). Em contrapartida, visualiza-se o crescimento do ^{229}Th (com meia-vida igual a $7,3 \cdot 10^3$ anos), um nuclídeo que não havia na cápsula de deposição, mas que é gerado pelo decaimento do ^{233}U .

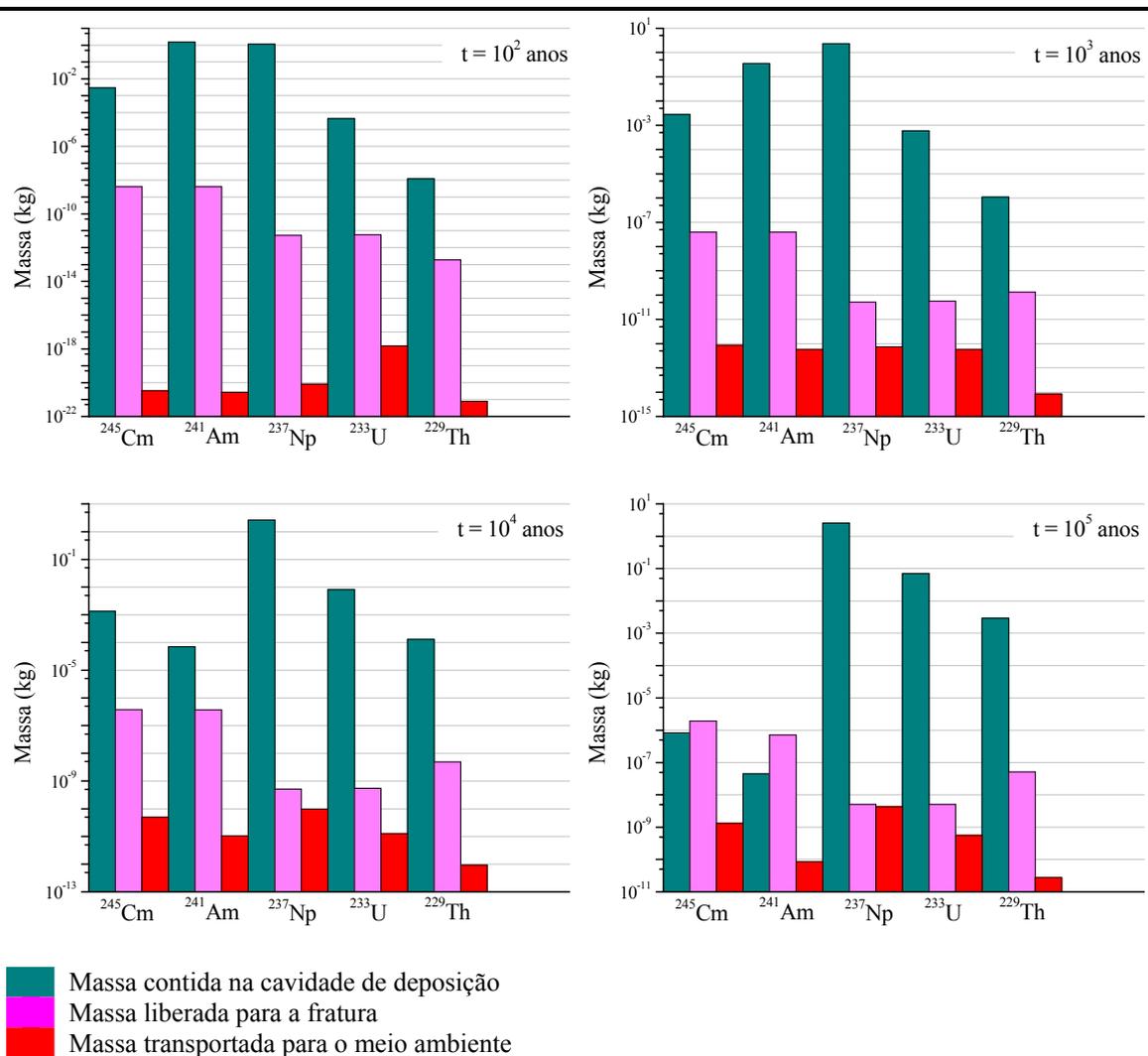


Figura 4.18 – Variação da massa no tempo para os nuclídeos da cadeia 4n+1, na cavidade de deposição e o acumulado liberado para a fratura e transportado para o meio ambiente

A Figura 4.19 apresenta a variação da massa na cápsula de deposição no tempo para os radionuclídeos importantes no combustível irradiado da cadeia $4n+2$: $^{246}\text{Cm} \rightarrow ^{242}\text{Pu} \rightarrow ^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{U} \rightarrow ^{230}\text{Th} \rightarrow ^{226}\text{Ra}$. Nesta cadeia o nuclídeo de maior meia-vida, ^{238}U (com meia-vida igual a $4,5 \cdot 10^9$ anos), não apresenta ganho de massa visível devido a sua grande quantidade no rejeito em comparação com o seu precursor ^{242}Pu .

Visualiza-se o decréscimo do ^{246}Cm (com meia-vida igual a $4,7 \cdot 10^3$ anos) e o crescimento e manutenção da quantidade de ^{226}Ra (com meia-vida igual a $1,6 \cdot 10^3$ anos), nuclídeo que não havia no rejeito e é repostado por decaimento do precursor ^{230}Th (com meia-vida igual a $7,7 \cdot 10^4$ anos).

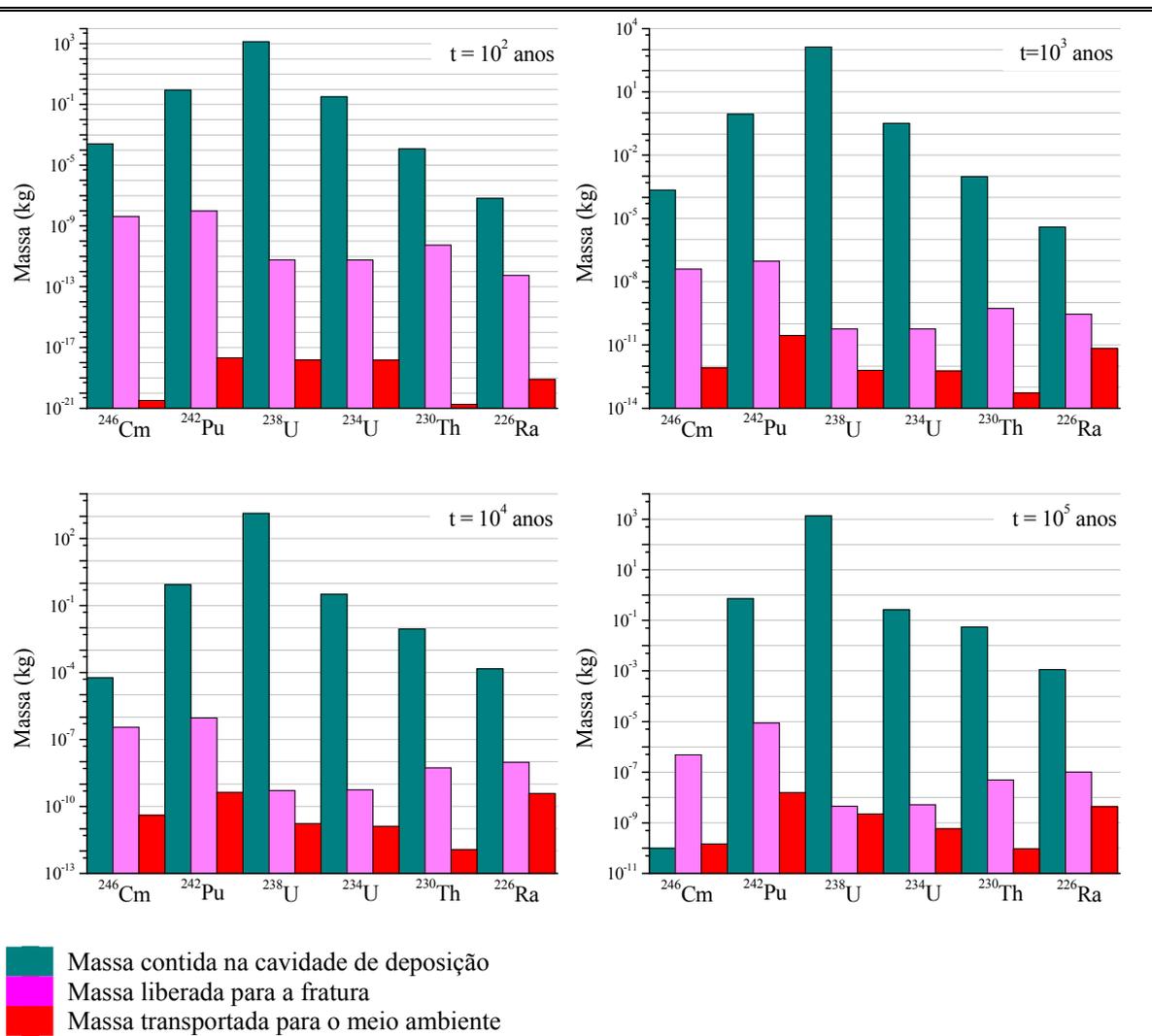


Figura 4.19 – Variação da massa no tempo para os nuclídeos da cadeia $4n+2$, na cavidade de deposição e o acumulado liberado para a fratura e transportado para o meio ambiente

A Figura 4.20 apresenta a variação da massa na cápsula de deposição no tempo para os radionuclídeos importantes no combustível irradiado da cadeia 4n+3: $^{243}\text{Am} \rightarrow ^{239}\text{Pu} \rightarrow ^{235}\text{U} \rightarrow ^{231}\text{Pa}$. Devido à escala, neste gráfico não se visualiza bem o crescimento do ^{235}U pelo decaimento do precursor Pu^{239} , ficando mais evidente na análise da Tabela 4.8.

Visualiza-se o aparecimento e manutenção do ^{231}Pa , nuclídeo que não havia no rejeito no início da simulação. Nas cadeias pode-se observar que o elemento de maior meia-vida apresenta um valor similar de acumulado da massa liberado para a fratura e transportado para o meio ambiente (mesma ordem de grandeza) no tempo 10^5 anos.

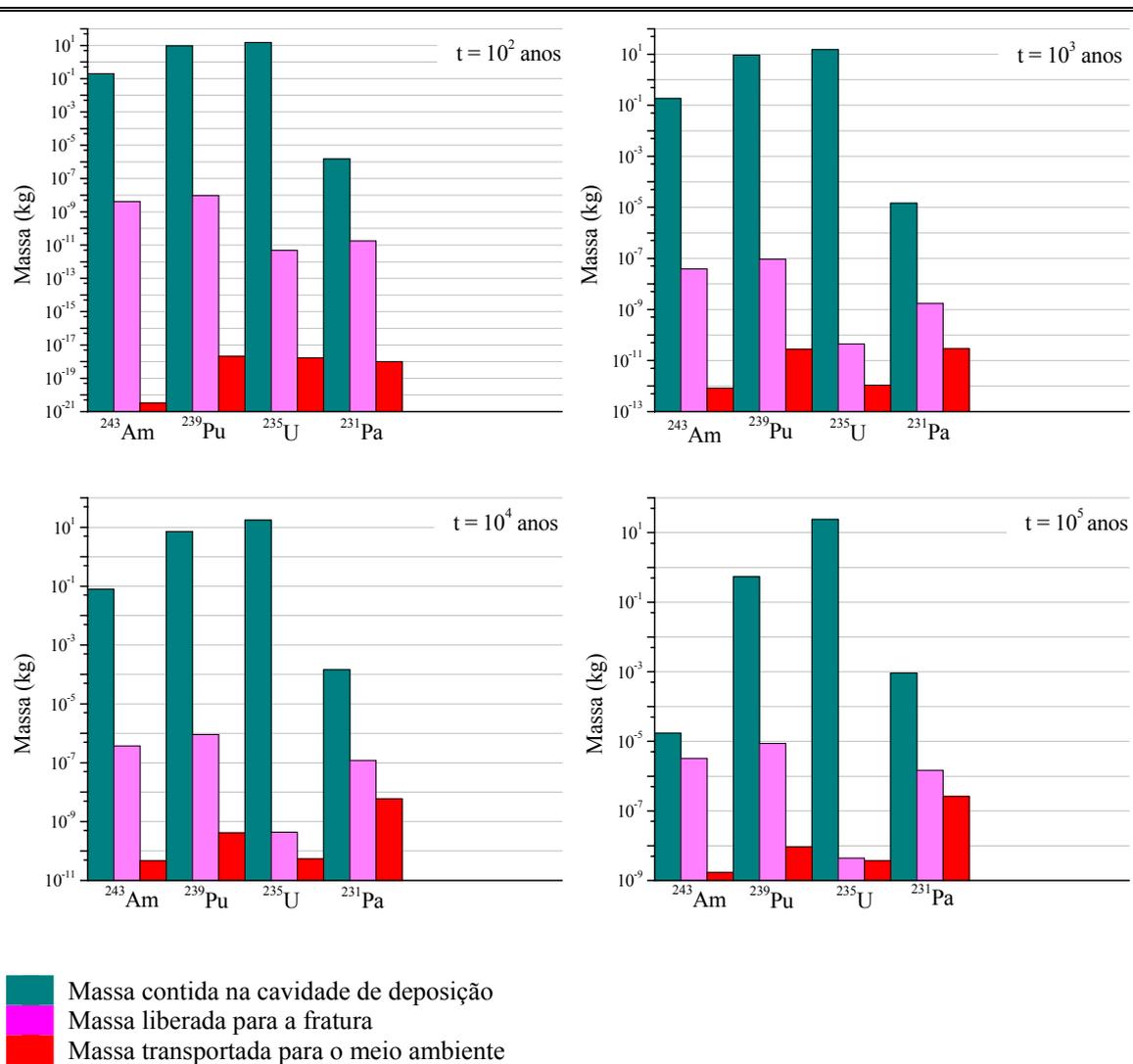


Figura 4.20 – Variação da massa no tempo para os nuclídeos da cadeia 4n+3, na cavidade de deposição e o acumulado liberado para a fratura e transportado para o meio ambiente

A Tabela 4.8 mostra a quantidade em kg dos actinídeos relevantes nas cadeias 4n, 4n+1, 4n+2 e 4n+3 na cápsula de deposição, no instante inicial da simulação, o acumulado da quantidade que foi liberada através do início da fratura nos tempos 10^2 , 10^3 , 10^4 e 10^5 anos. Apresenta o acumulado da quantidade que foi transportada para o meio ambiente através do lineamento e a quantidade presente na cápsula de deposição ao final da simulação.

Tabela 4.8 - Análise da liberação de radionuclídeos no tempo para o início da fratura e meio ambiente

Cadeia e Nuclídeo	Massa inicial	Liberado no tempo em kg				Liberado pelo lineamento	Massa final	
		10^2	10^3	10^4	10^5			
4n	^{240}Pu	3,2	$9,45 \cdot 10^{-9}$	$9,18 \cdot 10^{-8}$	$9,10 \cdot 10^{-7}$	$8,64 \cdot 10^{-6}$	$4,87 \cdot 10^{-9}$	$8,40 \cdot 10^{-5}$
	^{236}U	7,17	$4,56 \cdot 10^{-12}$	$4,41 \cdot 10^{-11}$	$4,40 \cdot 10^{-10}$	$4,40 \cdot 10^{-9}$	$3,96 \cdot 10^{-9}$	10,76
4n+1	^{245}Cm	$2,99 \cdot 10^{-3}$	$4,07 \cdot 10^{-9}$	$3,93 \cdot 10^{-8}$	$3,73 \cdot 10^{-7}$	$1,92 \cdot 10^{-6}$	$1,33 \cdot 10^{-9}$	$8,41 \cdot 10^{-7}$
	^{241}Am	1,78	$4,02 \cdot 10^{-9}$	$3,90 \cdot 10^{-8}$	$3,70 \cdot 10^{-7}$	$7,06 \cdot 10^{-7}$	$8,51 \cdot 10^{-11}$	$4,48 \cdot 10^{-8}$
	^{237}Np	0,86	$5,38 \cdot 10^{-12}$	$5,15 \cdot 10^{-11}$	$5,13 \cdot 10^{-10}$	$5,12 \cdot 10^{-9}$	$4,29 \cdot 10^{-9}$	2,56
	^{233}U	$1,17 \cdot 10^{-5}$	$5,84 \cdot 10^{-12}$	$5,66 \cdot 10^{-11}$	$5,50 \cdot 10^{-10}$	$5,13 \cdot 10^{-9}$	$5,66 \cdot 10^{-10}$	$6,94 \cdot 10^{-2}$
	^{229}Th	0	$1,87 \cdot 10^{-13}$	$1,31 \cdot 10^{-10}$	$4,86 \cdot 10^{-9}$	$5,13 \cdot 10^{-8}$	$2,77 \cdot 10^{-11}$	$2,89 \cdot 10^{-3}$
4n+2	^{246}Cm	$2,56 \cdot 10^{-4}$	$4,09 \cdot 10^{-9}$	$3,95 \cdot 10^{-8}$	$3,48 \cdot 10^{-7}$	$4,87 \cdot 10^{-7}$	$1,46 \cdot 10^{-10}$	$9,77 \cdot 10^{-11}$
	^{242}Pu	0,87	$9,52 \cdot 10^{-9}$	$9,25 \cdot 10^{-8}$	$9,15 \cdot 10^{-7}$	$8,69 \cdot 10^{-6}$	$1,56 \cdot 10^{-8}$	0,73
	^{238}U	1350,17	$5,90 \cdot 10^{-12}$	$5,70 \cdot 10^{-11}$	$5,20 \cdot 10^{-10}$	$4,53 \cdot 10^{-9}$	$2,24 \cdot 10^{-9}$	1350,29
	^{234}U	0,32	$5,87 \cdot 10^{-12}$	$5,69 \cdot 10^{-11}$	$5,54 \cdot 10^{-10}$	$5,15 \cdot 10^{-9}$	$5,81 \cdot 10^{-10}$	0,26
	^{230}Th	$2,77 \cdot 10^{-5}$	$5,54 \cdot 10^{-11}$	$5,38 \cdot 10^{-10}$	$5,27 \cdot 10^{-9}$	$4,91 \cdot 10^{-8}$	$9,27 \cdot 10^{-11}$	$5,48 \cdot 10^{-2}$
	^{226}Ra	0	$5,65 \cdot 10^{-13}$	$2,84 \cdot 10^{-10}$	$9,45 \cdot 10^{-9}$	$1,01 \cdot 10^{-7}$	$4,33 \cdot 10^{-9}$	$1,12 \cdot 10^{-3}$
4n+3	^{243}Am	0,20	$4,04 \cdot 10^{-9}$	$3,90 \cdot 10^{-8}$	$3,71 \cdot 10^{-7}$	$3,21 \cdot 10^{-6}$	$1,68 \cdot 10^{-9}$	$1,71 \cdot 10^{-5}$
	^{239}Pu	9,46	$9,41 \cdot 10^{-9}$	$9,14 \cdot 10^{-8}$	$9,04 \cdot 10^{-7}$	$8,79 \cdot 10^{-6}$	$9,16 \cdot 10^{-9}$	0,54
	^{235}U	14,97	$4,79 \cdot 10^{-12}$	$4,44 \cdot 10^{-11}$	$4,39 \cdot 10^{-10}$	$4,38 \cdot 10^{-9}$	$3,65 \cdot 10^{-9}$	24,08
	^{231}Pa	0	$1,80 \cdot 10^{-11}$	$1,72 \cdot 10^{-9}$	$1,20 \cdot 10^{-7}$	$1,46 \cdot 10^{-6}$	$2,57 \cdot 10^{-7}$	$9,17 \cdot 10^{-4}$

A Tabela 4.9 mostra a quantidade em kg dos produtos de fissão/ativação relevantes na cápsula de deposição, no instante inicial da simulação, o acumulado da quantidade que foi liberada através do início da fratura nos tempos 10^2 , 10^3 , 10^4 e 10^5 anos. Apresenta o acumulado da quantidade que foi transportada para o meio ambiente através do lineamento e a quantidade presente na cápsula de deposição ao final da simulação, em 10^5 anos.

Tabela 4.9 - Análise da liberação de radionuclídeos no tempo para o início da fratura e meio ambiente

Nuclídeo	Massa inicial	Liberado no tempo em kg				Liberado pelo lineamento	Massa final
		10^2	10^3	10^4	10^5		
^{14}C	$3,33 \cdot 10^{-4}$	$6,73 \cdot 10^{-9}$	$6,19 \cdot 10^{-8}$	$3,79 \cdot 10^{-7}$	$5,38 \cdot 10^{-7}$	$4,96 \cdot 10^{-7}$	$1,71 \cdot 10^{-9}$
^{36}Cl	$4,56 \cdot 10^{-4}$	$9,23 \cdot 10^{-9}$	$8,97 \cdot 10^{-8}$	$8,85 \cdot 10^{-7}$	$7,92 \cdot 10^{-6}$	$7,88 \cdot 10^{-6}$	$3,55 \cdot 10^{-4}$
^{135}Cs	0,70	$1,47 \cdot 10^{-5}$	$1,44 \cdot 10^{-4}$	$1,42 \cdot 10^{-3}$	$1,36 \cdot 10^{-2}$	$4,69 \cdot 10^{-3}$	0,66
^{137}Cs	1,06	$8,77 \cdot 10^{-6}$	$9,68 \cdot 10^{-6}$	$9,68 \cdot 10^{-6}$	$9,68 \cdot 10^{-6}$	$1,48 \cdot 10^{-8}$	-
^{129}I	0,27	$5,43 \cdot 10^{-6}$	$5,29 \cdot 10^{-5}$	$5,27 \cdot 10^{-4}$	$5,21 \cdot 10^{-3}$	$5,17 \cdot 10^{-3}$	0,26
^{93}Mo	$7,30 \cdot 10^{-5}$	$4,90 \cdot 10^{-11}$	$4,77 \cdot 10^{-10}$	$4,75 \cdot 10^{-9}$	$1,21 \cdot 10^{-8}$	$1,13 \cdot 10^{-8}$	$2,14 \cdot 10^{-12}$
^{94}Nb	0,10	$8,54 \cdot 10^{-8}$	$8,22 \cdot 10^{-7}$	$7,85 \cdot 10^{-6}$	$7,56 \cdot 10^{-5}$	$1,93 \cdot 10^{-5}$	$3,20 \cdot 10^{-3}$
^{59}Ni	0,17	$3,64 \cdot 10^{-6}$	$3,54 \cdot 10^{-5}$	$3,36 \cdot 10^{-4}$	$2,27 \cdot 10^{-3}$	$4,81 \cdot 10^{-4}$	$6,94 \cdot 10^{-2}$
^{63}Ni	$2,29 \cdot 10^{-2}$	$3,53 \cdot 10^{-7}$	$6,74 \cdot 10^{-7}$	$6,74 \cdot 10^{-7}$	$6,74 \cdot 10^{-7}$	$8,58 \cdot 10^{-9}$	-
^{107}Pd	0,37	$6,54 \cdot 10^{-9}$	$5,93 \cdot 10^{-8}$	$5,54 \cdot 10^{-7}$	$5,42 \cdot 10^{-6}$	$3,64 \cdot 10^{-6}$	0,37
^{79}Se	$8,22 \cdot 10^{-2}$	$4,96 \cdot 10^{-13}$	$4,83 \cdot 10^{-12}$	$4,81 \cdot 10^{-11}$	$4,81 \cdot 10^{-10}$	$4,72 \cdot 10^{-10}$	$6,50 \cdot 10^{-2}$
^{151}Sm	$2,27 \cdot 10^{-2}$	$3,22 \cdot 10^{-10}$	$3,12 \cdot 10^{-9}$	$3,48 \cdot 10^{-9}$	$3,48 \cdot 10^{-9}$	$8,17 \cdot 10^{-12}$	-
^{126}Sn	$3,18 \cdot 10^{-2}$	$4,82 \cdot 10^{-10}$	$4,22 \cdot 10^{-9}$	$3,70 \cdot 10^{-8}$	$3,48 \cdot 10^{-7}$	$1,25 \cdot 10^{-7}$	$1,59 \cdot 10^{-2}$
^{90}Sr	4,61	$1,72 \cdot 10^{-7}$	$1,68 \cdot 10^{-6}$	$5,12 \cdot 10^{-6}$	$5,12 \cdot 10^{-6}$	$3,18 \cdot 10^{-7}$	-
^{99}Tc	1,35	$1,36 \cdot 10^{-11}$	$1,31 \cdot 10^{-10}$	$1,24 \cdot 10^{-9}$	$1,12 \cdot 10^{-8}$	$5,59 \cdot 10^{-10}$	0,97
^{93}Zr	1,34	$3,59 \cdot 10^{-11}$	$3,50 \cdot 10^{-10}$	$3,46 \cdot 10^{-9}$	$3,34 \cdot 10^{-8}$	$4,47 \cdot 10^{-9}$	1,28

4.6 Avaliação da Taxa de Liberação

Para analisar a taxa de liberação, foram feitos gráficos da taxa de liberação em Bq/ano dos radionuclídeos relevantes no combustível irradiado. Nestas figuras têm-se a taxa de liberação na fratura a 1m da fonte - subíndice (a); taxa de liberação ao final da fratura (50m da fonte) – subíndice (b) e; taxa de liberação no final do lineamento – taxa de liberação para o meio ambiente – subíndice (c).

A Figura 4.21 apresenta o grupo 1 de nuclídeos produtos de fissão/ativação relevantes: ^{14}C , ^{36}Cl , ^{135}Cs , ^{137}Cs , ^{129}I , ^{93}Mo , ^{94}Nb e ^{59}Ni . Nesta figura observa-se que o maior pico de liberação advém do ^{137}Cs , nuclídeo que apresenta um considerável inventário de atividade e meia-vida curta. Dentro do tempo de simulação é possível observar a ascensão e queda na taxa de liberação dos nuclídeos com meia-vida de até 2 casas decimais menores que o tempo final de simulação utilizado. Neste grupo observamos o decréscimo do ^{137}Cs (meia-vida igual a 30 anos), ^{14}C (meia-vida igual a $5,7 \cdot 10^3$ anos) e ^{93}Mo (meia-vida igual a $4,0 \cdot 10^3$ anos). O perfil do ^{137}Cs apresenta pico característico de nuclídeo de grande mobilidade e solubilidade, limitado pela sua meia-vida. O ^{93}Mo apresenta perfil com um patamar na taxa de liberação indicando sua saturação. Os perfis do ^{59}Ni e do ^{36}Cl apresentam declínio ao final da simulação. O ^{135}Cs , ^{129}I e ^{94}Nb não apresentam declínio, demonstrando que atenção deve ser dada a estes nuclídeos de meia-vida longa e, por isso, persistentes no rejeito.

A Figura 4.22 apresenta o grupo 2 de nuclídeos relevantes: ^{63}Ni , ^{107}Pd , ^{79}Se , ^{151}Sm , ^{126}Sn , ^{90}Sr , ^{99}Tc e ^{93}Zr . Neste grupo os nuclídeos de menor meia-vida, ^{63}Ni (meia-vida igual a 96 anos), ^{90}Sr (meia-vida igual a 29 anos) e ^{151}Sm (90 meia-vida igual a anos) respectivamente, são os que apresentam as maiores taxa de liberação. O ^{90}Sr , de menor meia-vida, apresenta um declínio posterior aos outros dois de maior meia-vida devido à quantidade deste nuclídeo presente na cápsula de deposição. O perfil do ^{99}Tc , ao longo do tempo de simulação se apresenta em desenvolvimento, e em ascensão ao final da simulação devido a sua retenção e meia-vida longa.

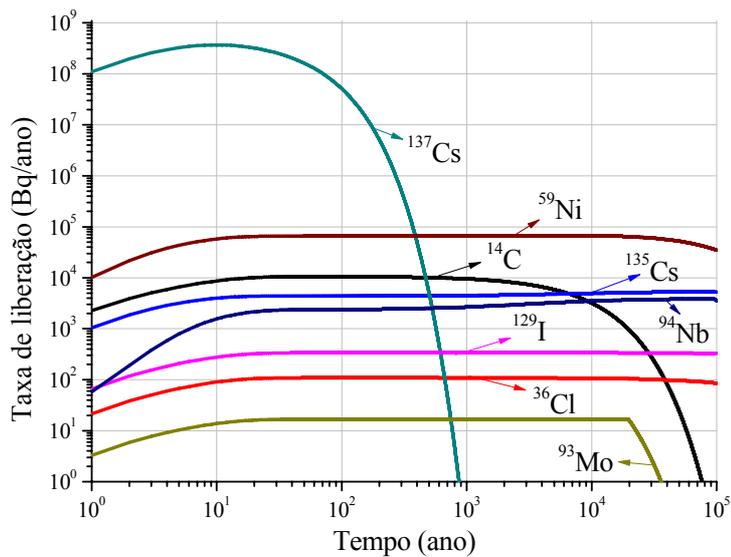
Para os actínídeos relevantes presentes nas cadeias de decaimento, além do comportamento ao longo do tempo de cada radionuclídeo, é importante ressaltar as inter-relações entre os elementos. A Figura 4.23 apresenta a cadeia 4n: $^{240}\text{Pu} \rightarrow ^{236}\text{U}$.

Aqui, o nuclídeo de menor meia-vida ^{240}Pu , porém com grande quantidade no rejeito, apresenta perfil em declínio só ao final da simulação.

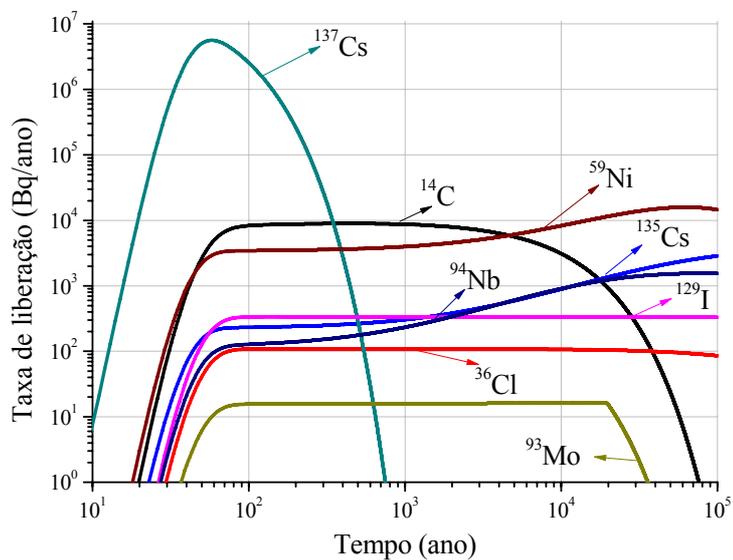
A Figura 4.24 apresenta os elementos relevantes da cadeia $4n+1$: $^{245}\text{Cm} \rightarrow ^{241}\text{Am} \rightarrow ^{237}\text{Np} \rightarrow ^{233}\text{U} \rightarrow ^{229}\text{Th}$. Nesta cadeia, o elemento ^{229}Th que não apresentava quantidade significativa no rejeito, apresenta uma alta taxa de crescimento devido ao decaimento do precursor ^{233}U e, por possuir maior solubilidade, adquire uma taxa de liberação maior que a do ^{233}U . O nuclídeo ^{241}Am , elemento de menor meia-vida nesta cadeia ($4,3 \cdot 10^2$ anos), apresenta na fase de diminuição da taxa de liberação uma alimentação pelo decaimento de seu precursor ^{245}Cm , entrando em equilíbrio com o mesmo, ao final da simulação, em declínio. O ^{237}Np apresenta patamar na taxa de liberação ao final da simulação.

A cadeia $4n+2$: $^{246}\text{Cm} \rightarrow ^{242}\text{Pu} \rightarrow ^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{U} \rightarrow ^{230}\text{Th} \rightarrow ^{226}\text{Ra}$ é apresentada na Figura 4.25. Nesta cadeia o elemento de menor meia-vida e, portanto, maior taxa de liberação é o ^{226}Ra , nuclídeo que não havia no rejeito e que foi gerado por decaimento do ^{230}Th , e que é mais móvel no meio geológico que seus predecessores. O ^{226}Ra atinge seu ápice mantendo um patamar na taxa de liberação indicando saturação no meio. O ^{246}Cm , primeiro elemento desta cadeia de meia-vida igual a $4,7 \cdot 10^3$ anos, apresenta o ápice e em declínio nos tempos finais de simulação. O ^{238}U apresenta o patamar de saturação no gráfico a 1m do início da fratura e em ascensão devido ao atraso na migração a 50m do início da fratura e para o meio ambiente. Os nuclídeos de meias-vidas longas, ^{242}Pu , ^{230}Th e ^{234}U , apresentam o perfil em ascensão devido à retenção bentonita/meio geológico.

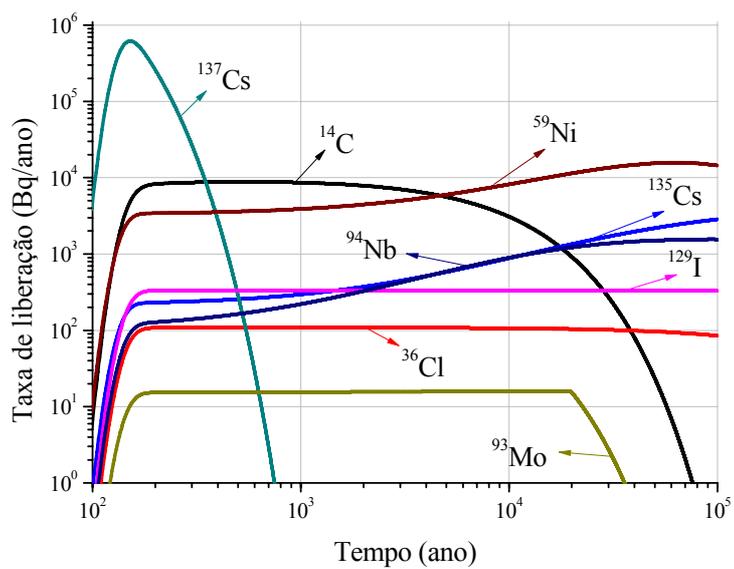
A Figura 4.26 apresenta a cadeia $4n+3$: $^{243}\text{Am} \rightarrow ^{239}\text{Pu} \rightarrow ^{235}\text{U} \rightarrow ^{231}\text{Pa}$. O primeiro elemento desta cadeia, ^{243}Am , nuclídeo de menor meia-vida, apresenta ascensão ao longo do tempo, atingindo seu ápice e indicando seu declínio ao final da simulação. O ^{235}U , elemento de maior meia-vida nesta cadeia, apresenta um patamar na taxa de liberação indicando saturação no meio. O ^{239}Pu , importante nuclídeo devido a sua radiotoxicidade, apresenta crescimento na taxa de liberação ao longo do tempo. E, por fim, o ^{231}Pa , elemento que não havia no rejeito, sendo gerado por seu precursor ^{235}U , apresenta perfil em ascensão ao longo do tempo, atingindo a saturação ao final da simulação no gráfico a 1m do início da fratura. Sua taxa de liberação é maior que o do ^{243}Am devido à considerável retenção deste na região da bentonita extrudada.



(a)

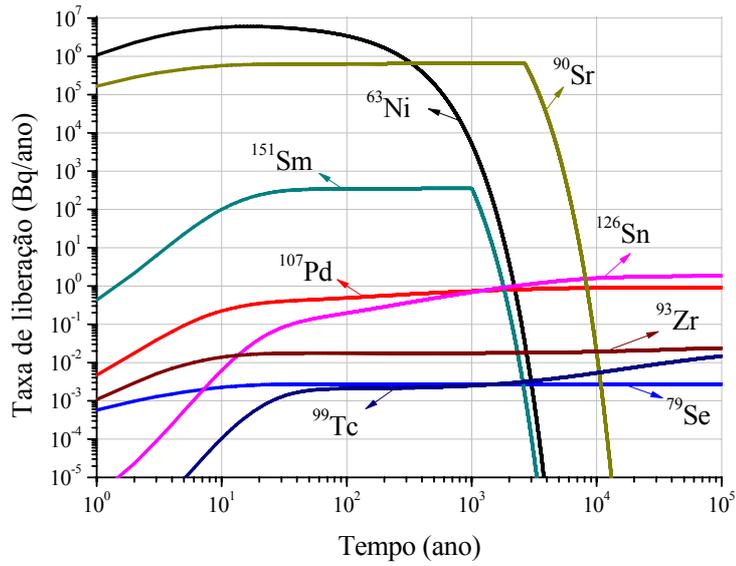


(b)

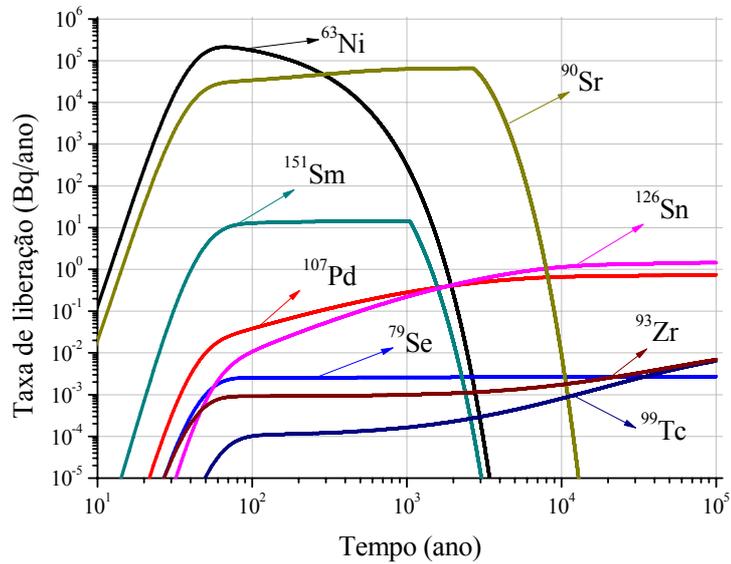


(c)

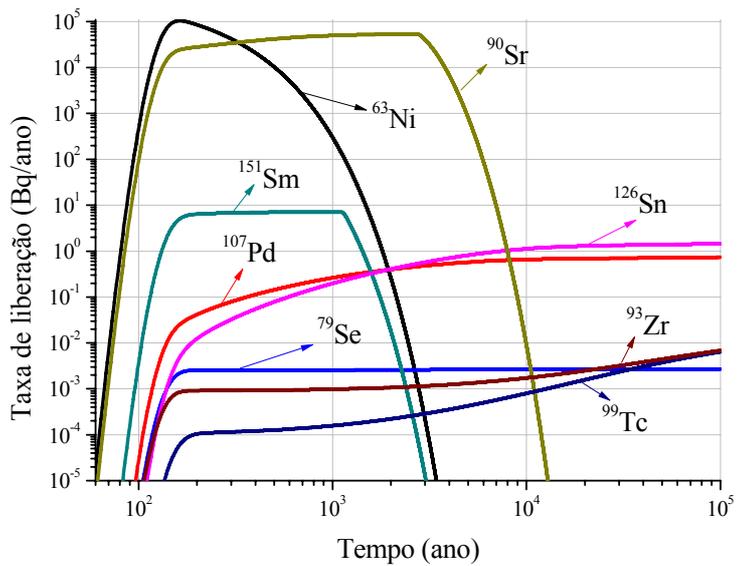
Figura 4.21 – Perfil da taxa de liberação em função do tempo, em Bq/ano, dos nuclídeos do grupo 1, a 1m (a), a 50m (b) e para o meio ambiente (c)



(a)



(b)



(c)

Figura 4.22 – Perfil da taxa de liberação em função do tempo, em Bq/ano, dos nuclídeos do grupo 2, a 1m (a), a 50m (b) e para o meio ambiente (c)

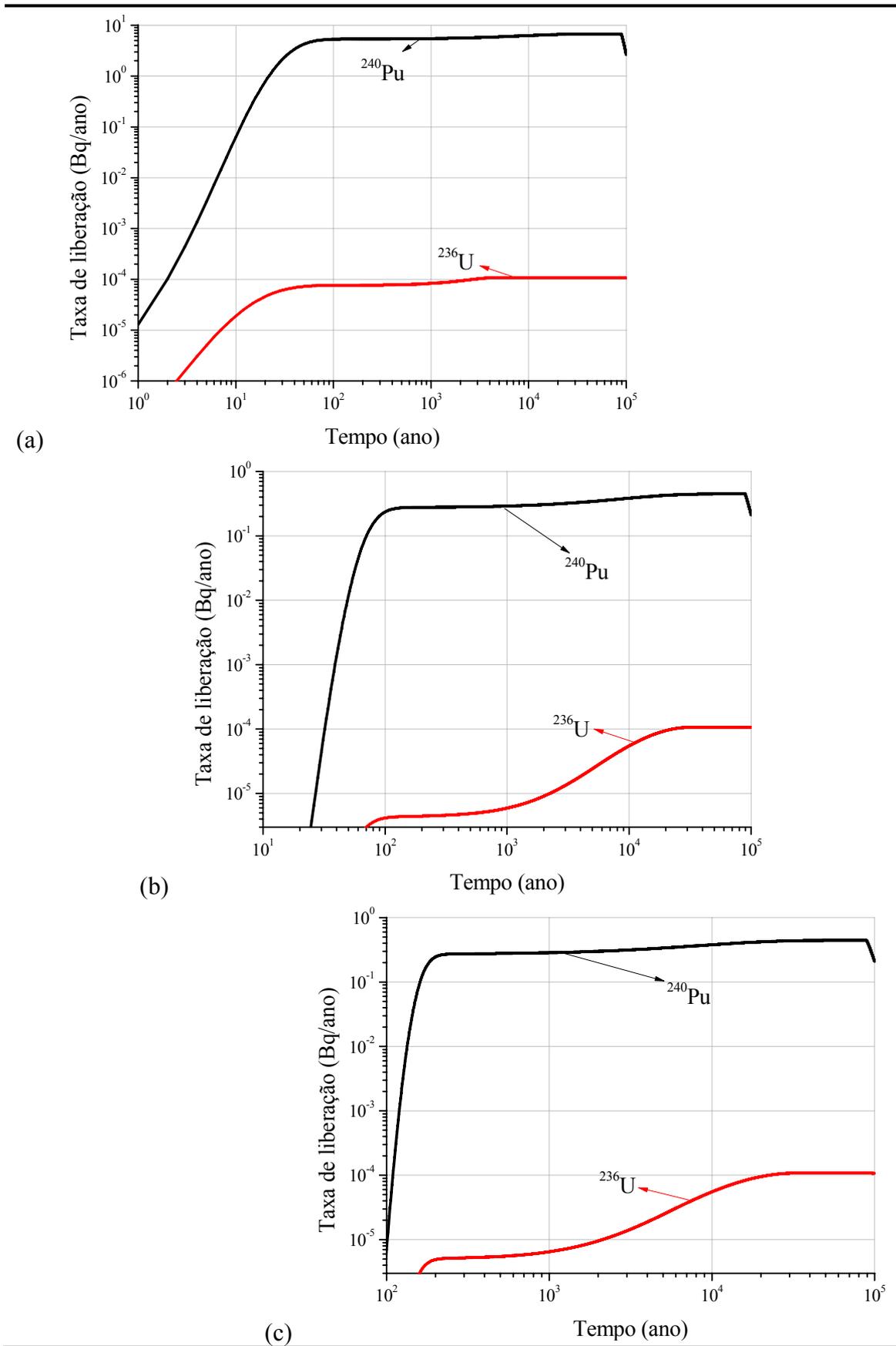
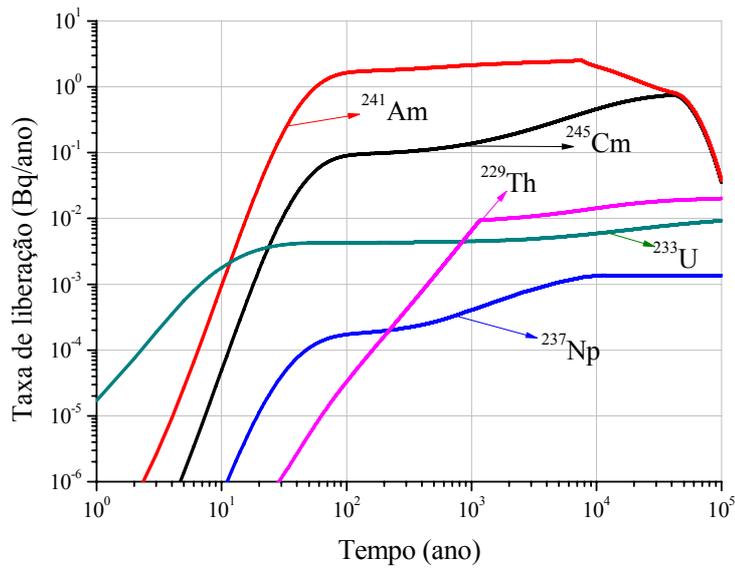
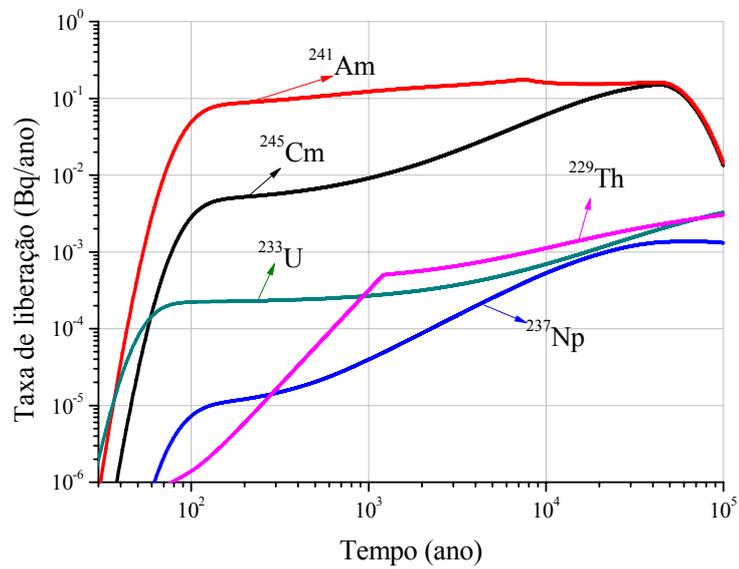


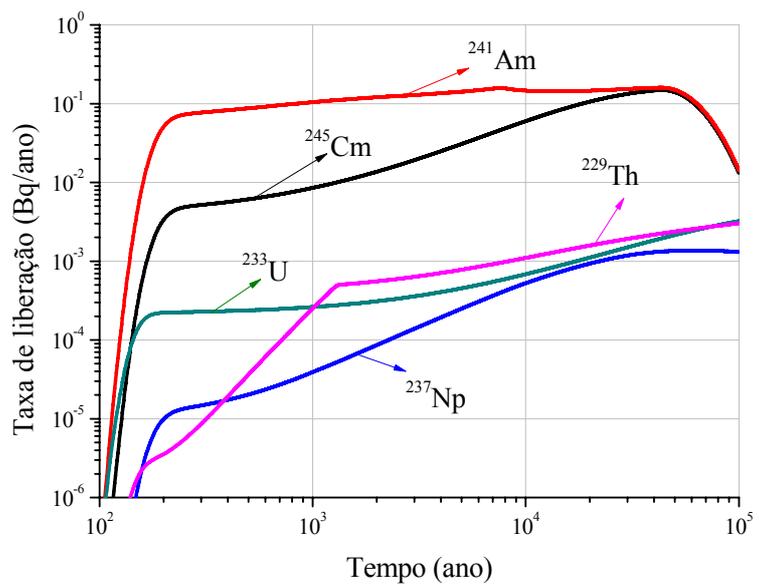
Figura 4.23 – Perfil da taxa de liberação em função do tempo, em Bq/ano, dos núclídeos da cadeia 4n, a 1m (a), a 50m (b) e para o meio ambiente (c)



(a)

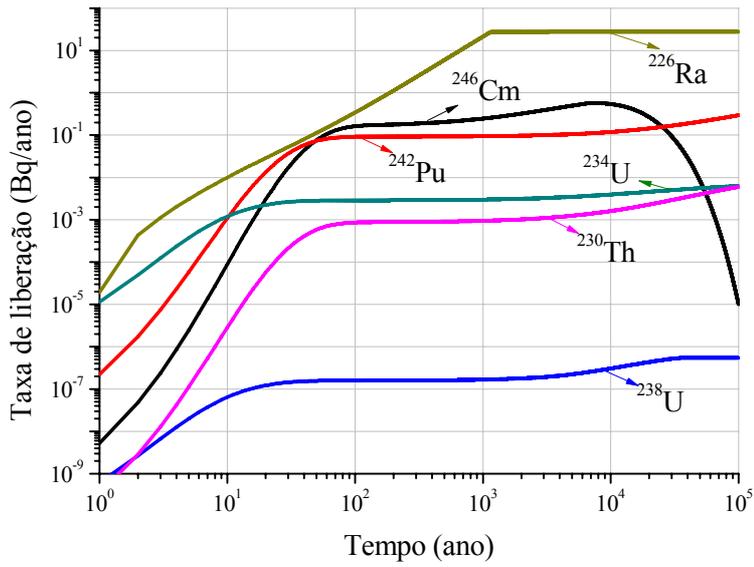


(b)

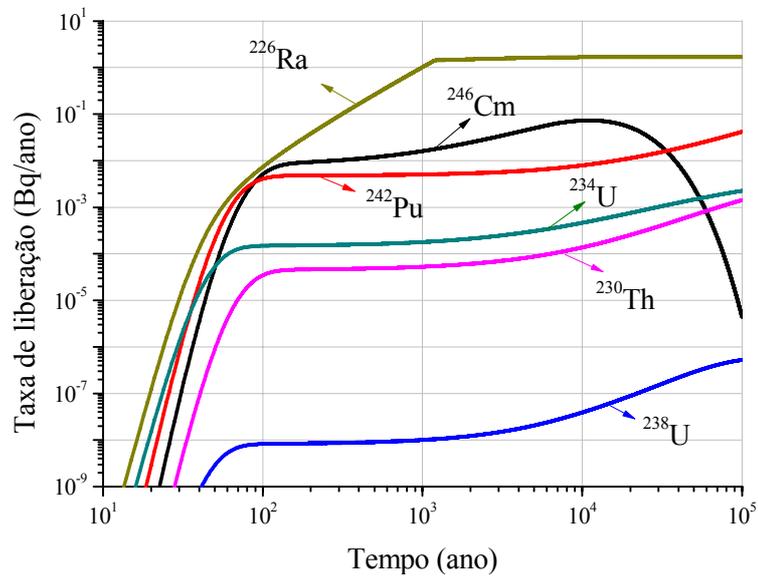


(c)

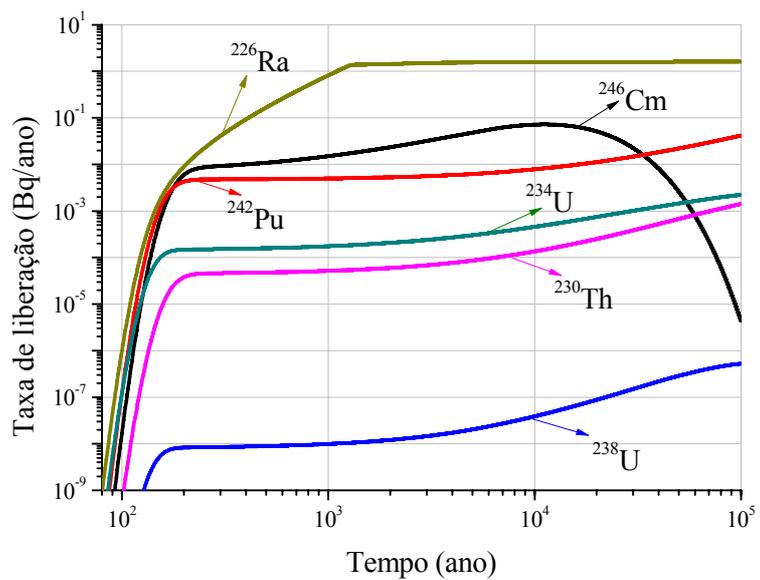
Figura 4.24 – Perfil da taxa de liberação em função do tempo, em Bq/ano, dos nuclídeos da cadeia $4n+1$, a 1m (a), a 50m (b) e para o meio ambiente (c)



(a)



(b)



(c)

Figura 4.25 – Perfil da taxa de liberação em função do tempo, em Bq/ano, dos nuclídeos da cadeia $4n+2$, a 1m (a), a 50m (b) e para o meio ambiente (c)

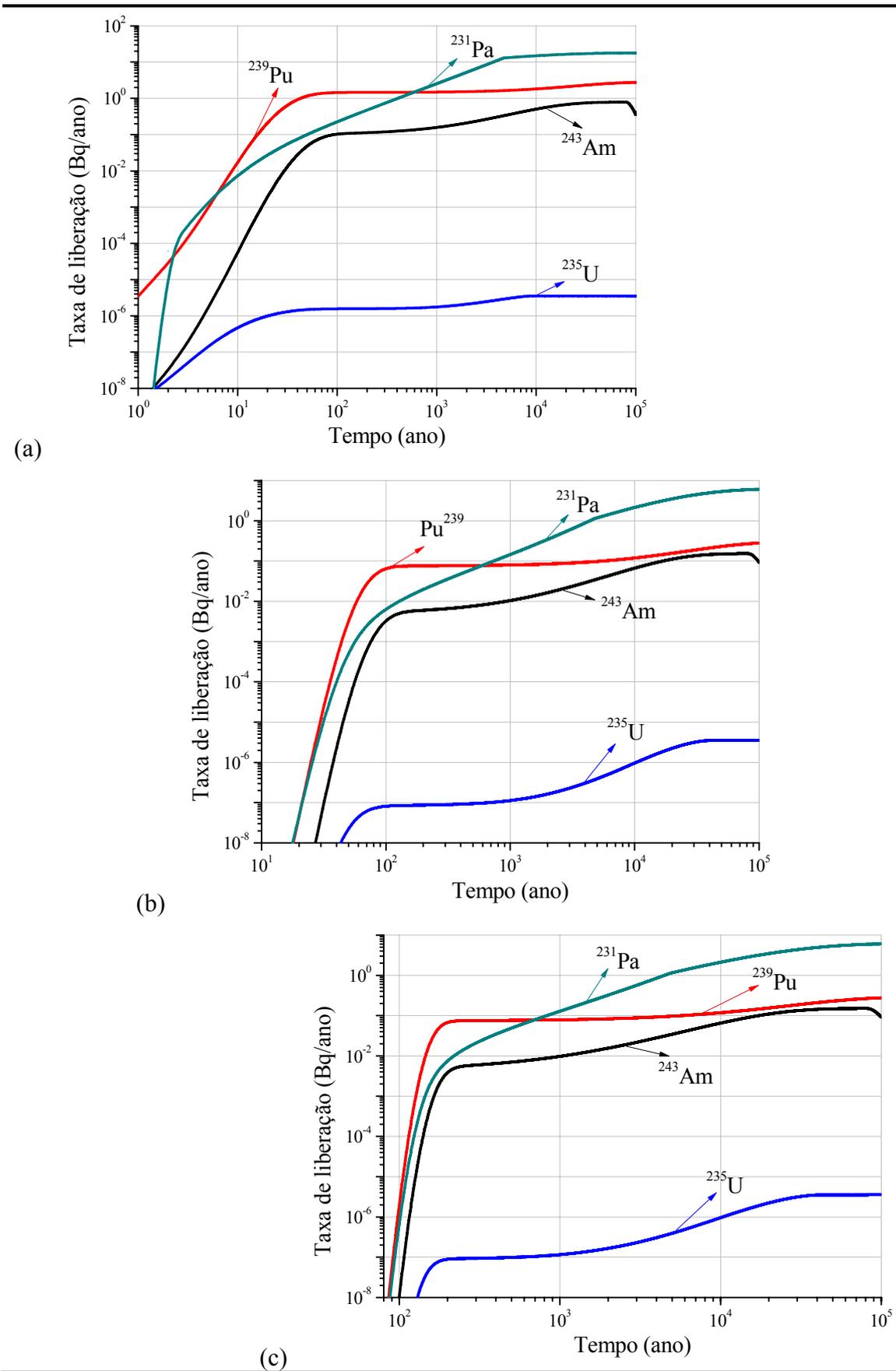


Figura 4.26 – Perfil da taxa de liberação em função do tempo, em Bq/ano, dos nuclídeos da cadeia $4n+3$, a 1m (a), a 50m (b) e para o meio ambiente (c)

4.7 Estimativa de Dose

A Figura 4.27 mostra os valores máximos de taxa de dose recebida por um indivíduo do público, pela ingestão de água contendo os radionuclídeo considerados no estudo em questão, que migraram do seu confinamento até o meio ambiente independente do tempo.

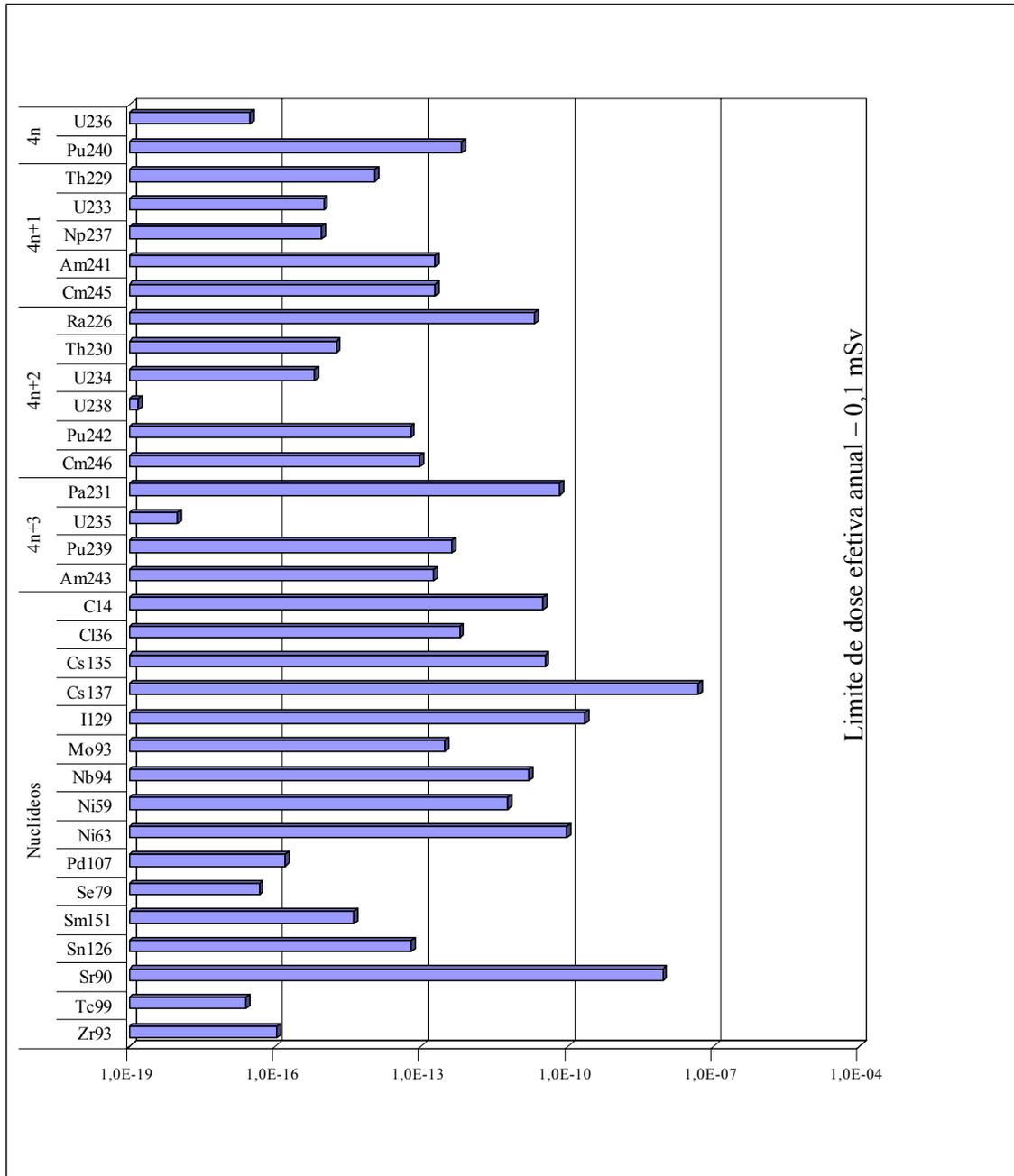


Fig. 4.27 - Taxa de dose máxima recebida por um indivíduo do público pela ingestão de água contendo os radionuclídeos considerados no estudo, em Sv/ano.

As Figuras 4.28, 4.29, 4.30, 4.31, 4.32, e 4.33 exibem os perfis de dose recebida por um indivíduo do público, em Sv/ano, pela ingestão de água contendo os radionuclídeos relevantes do combustível irradiado que foram liberados e transportados até o meio ambiente.

O limite de restrição de dose, de acordo com STUK (2001), é de 10^{-4} Sv/ano. A dose é obtida pelo fluxo do radionuclídeo (taxa de liberação em Bq/ano) que entra no meio ambiente, ou melhor, é liberada pela região de lineamento, multiplicado pelo fator de conversão de dose (Sv/Bq), apresentado nas Tabelas 4.4 (actinídeos) e 4.5 (produtos de fissão/ativação). Ou seja, será o gráfico da taxa de liberação para o meio ambiente ponderado por um peso, denotando assim os elementos mais importantes do ponto de vista radiotóxico.

Para o cálculo da dose, o fator de conversão de dose considera que as liberações anuais, do repositório para a biosfera, estão diluídas em 100.000 m^3 de água e que um indivíduo bebe 600 litros de água contaminada anualmente, NYKYRI et alii (2008).

A aplicação da restrição de dose para num período de avaliação que é adequadamente previsível com relação à avaliação das exposições humanas, que deve ser estendido por milhares de anos, tem-se em STUK (2001):

1. A dose efetiva anual para maioria dos membros expostos do público deve permanecer abaixo de 0,1 mSv; e
2. A dose média efetiva anual para os outros membros do público deve permanecer insignificamente baixa.

Na Figura 4.28 têm-se os produtos de fissão/ativação presentes no grupo 1 de nuclídeos relevantes: ^{14}C , ^{36}Cl , ^{135}Cs , ^{137}Cs , ^{129}I , ^{93}Mo , ^{94}Nb e ^{59}Ni . Dentro do cenário considerado, aparece um pico de dose advindo da liberação do ^{137}Cs . Em segundo aparece o ^{129}I , nuclídeo de meia-vida longa, por isso, persistente no rejeito.

Na Figura 4.29 o grupo 2: ^{63}Ni , ^{107}Pd , ^{151}Sm , ^{79}Se , ^{126}Sn , ^{90}Sr , ^{99}Tc e ^{93}Zr . Observa-se o pico de liberação do ^{90}Sr e ^{63}Ni nuclídeos de menor meia-vida, e ^{126}Sn nuclídeo de meia-vida longa. Comparando este gráfico com o da taxa de liberação para

o meio ambiente, Fig. 4.22c, observa-se que o ^{63}Ni apresenta uma taxa maior que a do ^{90}Sr . Ao se fazer a ponderação, a situação se inverte.

A Figura 4.30 apresenta os nuclídeos relevantes da cadeia $4n$ ($^{240}\text{Pu} \rightarrow ^{236}\text{U}$). Neste gráfico a maior dose recebida é referente ao ^{240}Pu , importante radionuclídeo devido à radiotoxicidade, e que se encontra em declínio ao final da simulação. Para os isótopos do urânio, a dose recebida é menor que a dos outros elementos devido ao seu baixo limite de solubilidade.

Na Figura 4.31 temos os nuclídeos relevantes da cadeia $4n+1$ ($^{245}\text{Cm} \rightarrow ^{241}\text{Am} \rightarrow ^{237}\text{Np} \rightarrow ^{233}\text{U} \rightarrow ^{229}\text{Th}$). Apresenta as doses referentes a estes nuclídeos, sendo esta cadeia muito importante devido ao impacto radiológico $^{245}\text{Cm} \rightarrow ^{241}\text{Am} \rightarrow ^{237}\text{Np}$. O ^{241}Am é o nuclídeo que proporciona a maior dose recebida nesta cadeia, sendo que em aproximadamente 80.000 anos apresenta declínio, entrando em equilíbrio com seu precursor ^{245}Cm . Podemos notar o a ascensão da dose referente ao ^{229}Th , nuclídeo que não havia no rejeito ao início da simulação.

A Figura 4.32 apresenta os nuclídeos relevantes da cadeia $4n+2$ ($^{246}\text{Cm} \rightarrow ^{242}\text{Pu} \rightarrow ^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{U} \rightarrow ^{230}\text{Th} \rightarrow ^{226}\text{Ra}$). Nesta cadeia notamos também a atenção que deve ser dada a nuclídeos que não haviam no rejeito, pois o ^{226}Ra aparece como principal contribuinte para dose nesta cadeia. Podemos observar a taxa em ascensão do ^{242}Pu , importante nuclídeo devido à radiotoxicidade. Observamos também que o ^{226}Ra se encontra em equilíbrio com seu precursor, já que é o nuclídeo de menor meia-vida nesta cadeia e não apresenta declínio. Já o elemento ^{246}Cm , segundo nuclídeo de menor meia-vida nesta cadeia e o primeiro elemento da cadeia, apresenta declínio da taxa de dose a partir de 10^4 anos.

Na Figura 4.33 temos os nuclídeos relevantes da cadeia $4n+3$ ($^{243}\text{Am} \rightarrow ^{239}\text{Pu} \rightarrow ^{235}\text{U} \rightarrow ^{231}\text{Pa}$). Esta figura mostra a atenção a ser dada ao ^{231}Pa , nuclídeo que não havia no rejeito e que surgiu por decaimento, proporciona a maior dose recebida nesta cadeia. Podemos notar que o ^{239}Pu , importante nuclídeo devido à radiotoxicidade apresenta-se em ascensão. Observamos que o ^{243}Am , primeiro elemento e radionuclídeo de menor meia-vida nesta cadeia, apresenta declínio ao final da simulação. Já o ^{235}U é o elemento que proporciona menor dose recebida a um indivíduo do público dentre os radionuclídeos estudados.

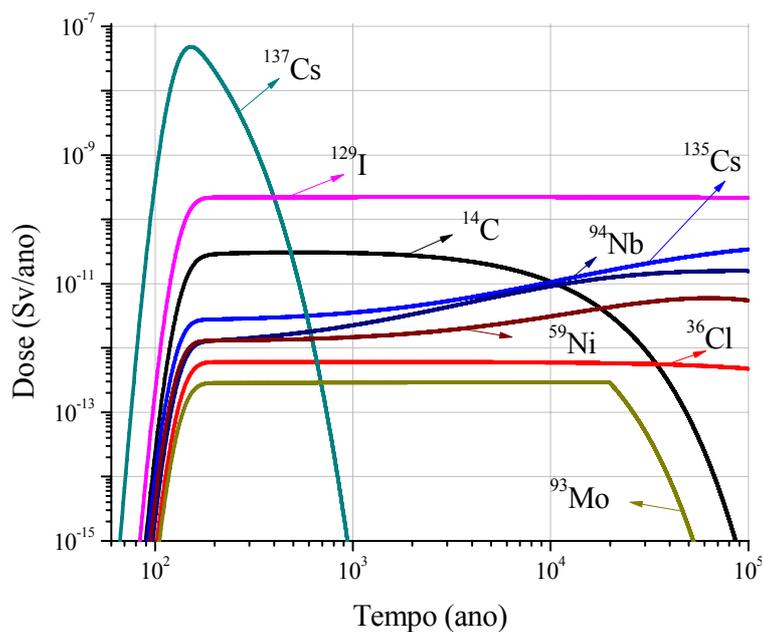


Fig. 4.28 - Dose recebida por um indivíduo do público, em Sv/ano, pela ingestão de água contendo os radionuclídeos relevantes do combustível irradiado do grupo 1 que foram liberados pelo repositório

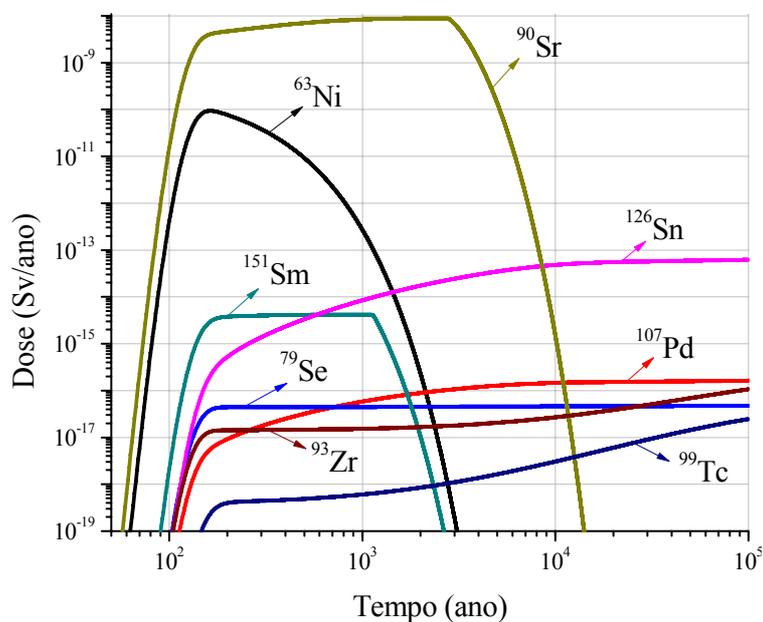


Fig. 4.29 - Dose recebida por um indivíduo do público, em Sv/ano, pela ingestão de água contendo os radionuclídeos relevantes do combustível irradiado do grupo 2 que foram liberados pelo repositório

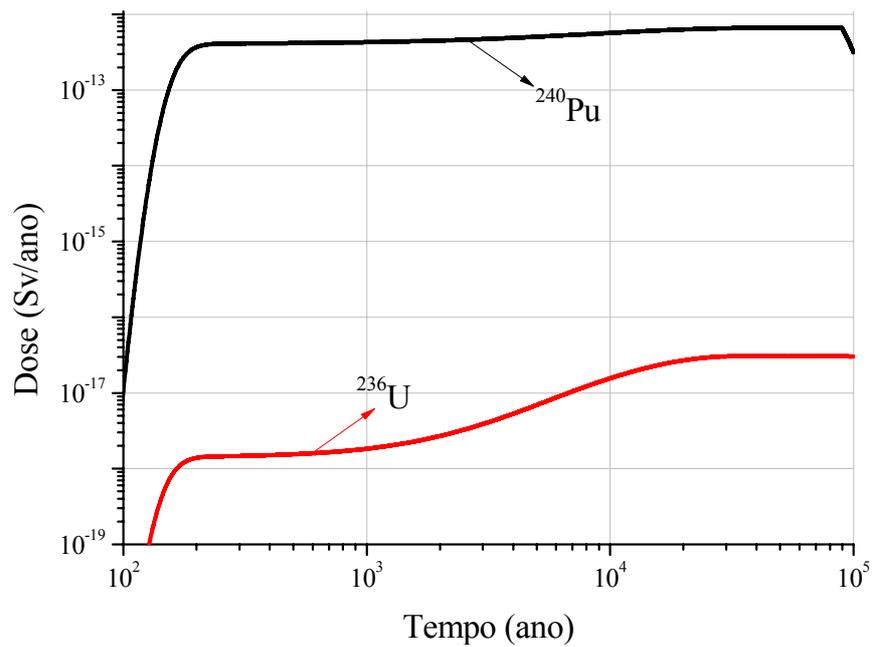


Fig. 4.30 - Dose recebida por um indivíduo do público, em Sv/ano, pela ingestão de água contendo os radionuclídeos relevantes da cadeia $4n$, que foram liberados pelo repositório

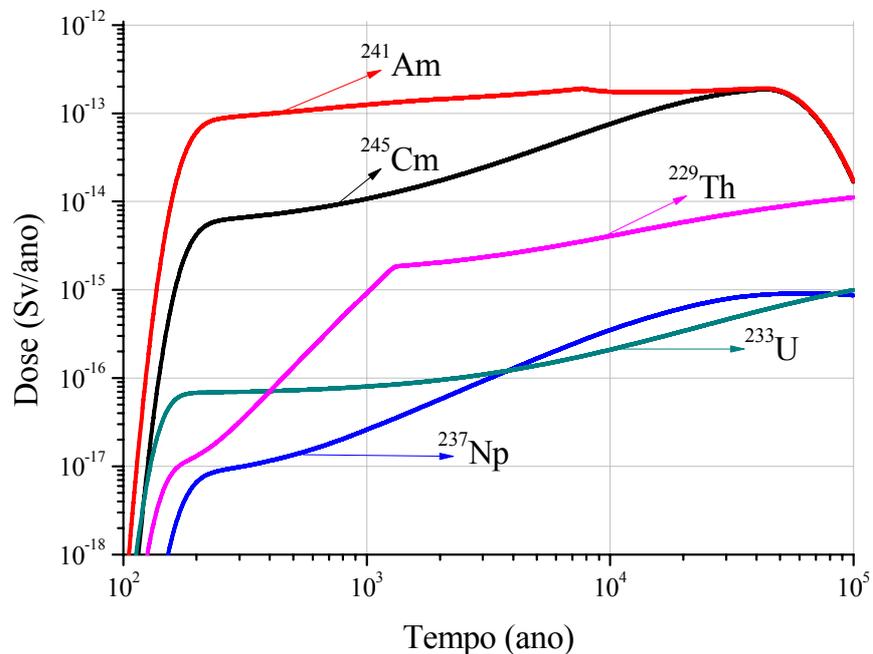


Fig. 4.31 - Dose recebida por um indivíduo do público, em Sv/ano, pela ingestão de água contendo os radionuclídeos relevantes da cadeia $4n+1$, que foram liberados pelo repositório

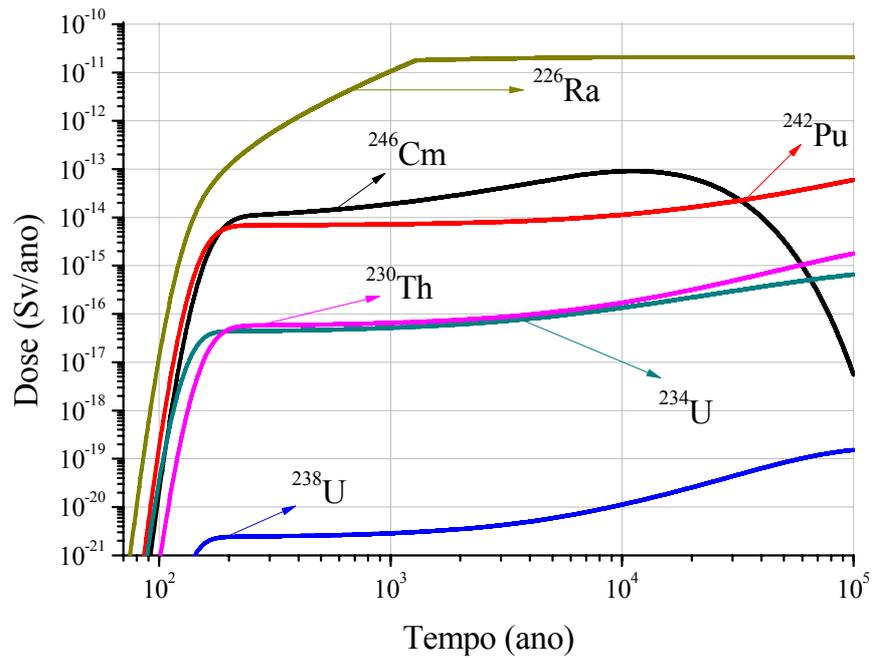


Fig. 4.32 - Dose recebida por um indivíduo do público, em Sv/ano, pela ingestão de água contendo os radionuclídeos relevantes da cadeia 4n+2, que foram liberados pelo repositório

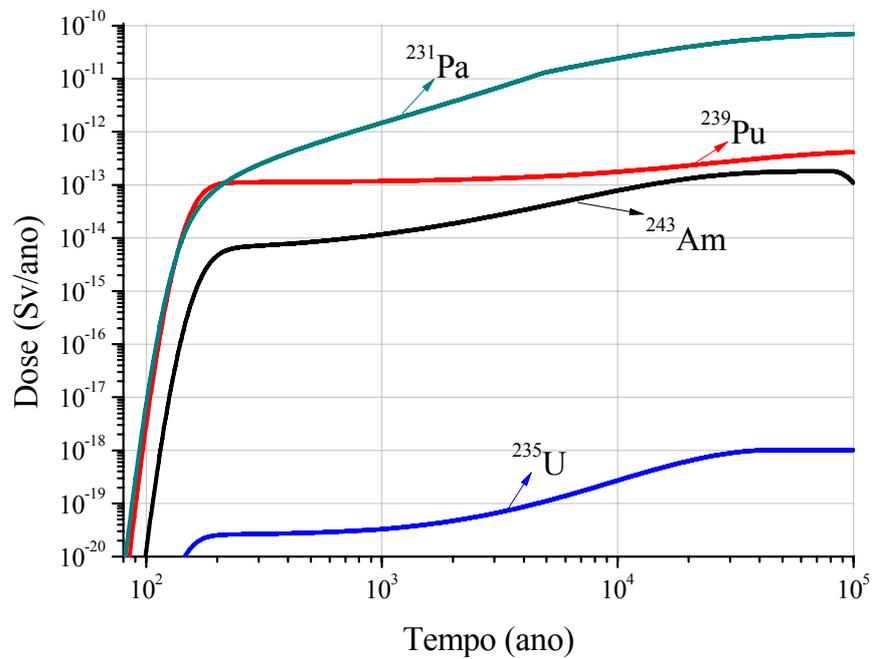


Fig. 4.33 - Dose recebida por um indivíduo do público, em Sv/ano, pela ingestão de água contendo os radionuclídeos relevantes da cadeia 4n+3, que foram liberados pelo repositório

CAPÍTULO 5

5. CONCLUSÃO

Avaliação de desempenho é o uso de modelos matemáticos para simular o comportamento a longo prazo das barreiras de engenharia e geológica de um repositório de rejeito nuclear. Desta forma, a análise da migração de radionuclídeos em meio poroso fraturado é uma parte importante da avaliação de segurança de um repositório geológico profundo para rejeito radioativo de alta atividade.

Em alguns países, a segurança de um repositório subterrâneo tem sido minuciosamente avaliada. Adequados projetos de engenharia têm sido propostos e, por vezes, aceitos pelas autoridades reguladoras. No entanto, tem sido difícil obter a aceitação pública de um repositório. Qualquer que seja a estratégia a ser seguida, um repositório de rejeito radioativo de alta atividade deverá ser estabelecido, seja para disposição direta, para rejeito de reprocessamento ou utilizando a partição/transmutação.

Neste trabalho, a solução numérica para uma geometria simples, incluindo cadeia de decaimento, foi desenvolvida para estudar a migração de radionuclídeos na região *far field* de um repositório hipotético para disposição direta. Para verificação da modelagem numérica da cadeia de decaimento proposta por diferenças finitas, utilizou-se uma solução analítica da literatura, pois soluções analíticas são úteis para verificar os resultados dos códigos numéricos.

Este estudo é uma análise determinística, com pressupostos conservadores, o que significa que eles devem assegurar que os resultados superestimam as liberações radioativas encontradas. A análise abrange as liberações dos radionuclídeos relevantes do combustível nuclear irradiado e sua chegada à biosfera. Os principais resultados quantitativos foram expressos como taxas de dose indicativa do consumo de água potável, taxas de liberações de atividade da cavidade de deposição para a geosfera e da geosfera para a biosfera e quantificação da massa transportada.

A perda por decaimento tende a reduzir as concentrações dos nuclídeos de menor meia-vida mais eficientemente que os de meia-vida longa. Assim, nota-se claramente a queda da concentração dos nuclídeos de menor meia-vida, como o ^{14}C (com meia-vida igual a $5,7 \cdot 10^3$ anos), ^{93}Mo (com meia-vida igual a $4,0 \cdot 10^3$ anos), ^{137}Cs (com meia-vida igual a 30 anos), ^{63}Ni (com meia-vida igual a $9,6 \cdot 10^1$ anos), ^{151}Sm (com meia-vida igual a $9,0 \cdot 10^1$ anos) e ^{90}Sr (com meia-vida igual a $2,9 \cdot 10^1$ anos), sendo que estes quatro últimos tiveram suas concentrações exauridas no tempo de 10^5 anos.

Com relação à retenção na região da bentonita, nota-se que o ^{126}Sn e o ^{99}Tc são os nuclídeos mais afetados pela sorção na bentonita, sendo seus atrasos na migração observados em todos os tempos simulados.

Para as cadeias pode-se inferir o crescimento do ^{229}Th , nuclídeo que não havia no rejeito quando disposto no repositório, mas que foi gerado por decaimento do ^{233}U , bem como o crescimento do ^{226}Ra que foi gerado por decaimento do ^{230}Th , e embora seja o nuclídeo de menor meia-vida na cadeia $4n+1$ (1600 anos), nota-se que ele não tem um decréscimo significativo no tempo, pois sua geração compensa a perda por decaimento.

Os nuclídeos ^{246}Cm , ^{242}Pu , ^{230}Th , ^{243}Am e ^{239}Pu apresentam uma retenção significativa na bentonita em todos os tempos simulados. Este é o caso também do ^{240}Pu , que apresenta um atraso significativo na migração nos tempos simulados, mostrando assim a importância desta argila para a retenção deste nuclídeo, lembrando que este elemento é um dos que têm maior impacto radiológico, pois a toxicidade do plutônio está entre as maiores conhecidas.

Pode-se notar o ganho em massa do nuclídeo ^{231}Pa por decaimento do seu precursor ^{235}U , e o leve atraso do nuclídeo ^{235}U e sua saturação na região da bentonita extrudada nos tempos finais de simulação. Nesta cadeia o ^{243}Am aparece como o radionuclídeo de maior importância, não somente por causa de sua meia-vida, mas também por ser o precursor do ^{239}Pu .

Na avaliação da taxa de liberação pode-se notar que os maiores picos de taxa de liberação advêm dos nuclídeos de maior inventário de atividade e meia-vida curta, e.g., ^{137}Cs , ^{63}Ni , e ^{90}Sr . Nas cadeias, o ^{231}Pa e o ^{226}Ra são nuclídeos que não apresentam quantidades significativas no rejeito (Tabela 4.8) e que surgem por decaimento e

apresentam altas taxas de liberação e dose. Desta forma, radionuclídeos gerados por decaimento estão entre os que causam maior impacto ao indivíduo do público na ingestão de água contendo radionuclídeos liberados do repositório. Nesta simulação, o ^{90}Sr é o nuclídeo mais importante na contribuição para dose, porém estando seu valor abaixo do limite permissível de 0,1 mSv/ano. Embora tendo meia-vida curta sua quantidade no rejeito mantém a alta liberação de dose para além de 10^3 anos. Destarte, norteia estudos mais elaborados, indicando que atenção especial deve ser dada a este nuclídeo uma vez que se trata de um estudo do transporte de uma cápsula de deposição.

Finalizando, o presente modelo constitui um importante guia para uma completa e detalhada avaliação de segurança para um repositório de rejeito radioativo de alta atividade. Os resultados para o caso hipotético aqui analisado mostram que um repositório para combustível irradiado, baseado no modelo KBS-3, pode alcançar um adequado nível de proteção, com mínima contribuição na dose anual de radiação ao público.

Para desenvolvimento de trabalhos futuros sugere-se:

- A utilização do Método dos Volumes Finitos para modelagem das equações de migração de radionuclídeos. Este método consiste em um método numérico aproximado para análise de fenômenos físicos, considerando-se um determinado volume do meio contínuo, que são descritos através de equações diferenciais parciais. O método é bastante genérico e muito aplicado para transporte de contaminante em meios porosos.
- A aplicação de um modelo numérico-analítico para retirar os erros incorporados na solução advindos da malha temporal se apresenta promissora, e é uma estratégia utilizada no transporte de águas subterrâneas com aplicação do Método de Elementos Finitos, COSTA et alii (2007). Neste trabalho a solução é dada através de expressões matemáticas para cada nó de uma malha de Elementos Finitos, tendo o tempo como variável independente.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

AHN, J., “*Deterministic Assessment for Environmental Impact of Yucca Mountain Repository Measured by Radiotoxicity*”, *Journal of Nuclear Science and Technology*, vol 44, p 431, 2007.

AMANO H.; TAKAHASHI, T.; UCHIDA, S.; MATSUOKA, S.; IKEDA, H.; HAYASHI, H.; KUROSAWA, N.; “*Development of a Code MOGRA for Predicting the Migration of Ground Additions and Its Application to Various Land Utilization Areas*”, *Journal of Nuclear Science and Technology*, vol. 40, n 11, p.975-979, 2003.

ANDERSON, D.A., TANNEHILL, J.C., *Computational Fluid Mechanics and Heat Transfer*, Hemisphere, New York, 1984.

ANDERSSON, J.; ROBINSON, P.; IMPEY, M., “*Implications of rock structure on the performance in the near field of a nuclear waste repository*”, *Engineering Geology*, volume 49, issues 3-4, pages 195-200, 1998.

ANTTILA, M., “*Radioactive Characteristics of the Spent Nuclear Fuel of the Finnish Nuclear Power Plants*”, Posiva Oy, Olkiluoto, Finland, Posiva Report 2005-71.

AREVA NP, “*Energy Facts and Figures*”, Supplement 2008.

BAEK, I.; PITT JR, W.W.; “*Colloid-facilitated radionuclide transport in fractured porous rock*”, *Waste Management*, vol 16, issue 4, pp 313-325, 1996.

BAIK, M.H.; LEE, S.Y.; LEE, J.K.; KIM, S.S.; PARK, C.K.; CHOI, J.W., “*Review and compilation of data on radionuclide migration and retardation for the performance assessment of a HLW repository in Korea*”, *Nuclear Engineering and Technology*, vol. 40, no. 7, pp 593-606, 2008.

BAUER, P.; ATTINGER, S.; KINZELBACH, W., “*Transport of a decay chain in homogeneous porous media: analytical solutions*”, *Journal of Contaminant Hydrology*, 49, 217-239, 2001.

BIRKHOLZER, J., RUTQVIST, J., SONNENTHAL, E., BARR, D., “*Long-Term Permeability/Porosity Changes in the EDZ and Near Field due to THM and THC Processes in Volcanic and Crystalline-Bentonite Systems*”, Berkeley, 2005.

BRASIL, Ministério de Minas e Energia. *Plano Nacional de Energia 2030*, Ministério de Minas e Energia, colaboração: Empresa de Pesquisa Energética, Brasília, 2007.

BUCKLEY, R. L.; LOYALKA, S. K.; “*Numerical studies of solute transport in a fractured medium subject to near- and non-equilibrium mass transfer*”, *Annals of Nuclear Energy*, vol 22, issue 7, pp 453-469, 1995.

CACUCI, D.G., *Handbook of Nuclear Engineering*, Springer, New York, 2010.

CEA, Clefs, “*Radioactive waste: constant advances with solutions*”, no.53, Winter 2005/2006. Disponível em: <http://www.cea.fr/english-portal/library/clefs-cea>, acessado em: 15/11/2013.

CHEN, C.-T.; LI, S.-H., “*Radionuclide transport in fractured porous media – analytical solutions for a system of parallel fractures with a constant inlet flux*”, *Waste Management*, vol.17, no.1, pp.53-64, 1997.

COSTA, C. T, CASTRO, M. A. HOLANDA, “*Uma Metodologia Numérico-Analítica Aplicada a Problemas Transparente de transporte de Contaminantes*”, *Revista Brasileira de Recursos Hídricos*, vol.12, nº4, pp 183-197, 2007.

CHAMBRE, P.L., PIGFORD, T.H., FUJITA, A., KANKI, T., “*Analytical Performance Models for Geologic Repositories*”, LBL-14842 UCB-NE-4017 UC-70 Volume II, Lawrence Berkeley Laboratory and Department of Nuclear Engineering, Berkeley, California, 1982.

CHEN, C.-T.; LI, S.-H., “*Radionuclide transport in fractured porous media - Analytical solutions for a system of parallel fractures with a constant inlet flux*”, *Waste Management*, vol 17, issue 1, pp 53-64, 1997.

CHIJIMATSU, M.; NGUYEN, T.S.; JING, L.; DE JONGE, J.; KOHLMEIER, M.; MILLARD A.; REJEB A.; RUTQVIST J.; SOULEY, M.; SUGITA, Y.; “*Numerical study of the THM effects on the near-field safety of a hypothetical nuclear waste repository—BMT1 of the DECOVALEX III project. Part 1: Conceptualization and characterization of the problems and summary of results*”, International Journal of Rock Mechanics & Mining Sciences 42, 720–730, 2005.

CNEN, Comissão Nacional de Energia Nuclear. Disponível em: <http://www.cnem.gov.br/acnen/inf-perguntasfrequentes>. Acessado em: 07.nov.2013.

DoE. Department of Energy. “*The path to sustainable nuclear energy: basic and applied research opportunities for advanced fuel cycles*”, September 2005.

EIA/DoE. Energy Information Administration / U. S. Department of Energy. International Energy Outlook 2011. Disponível em: <http://www.eia.gov/forecasts/ieo/index.cfm>. Acessado em: 9.dez.2011.

EURATOM, “*Partitioning and Transmutation: Towards an easing of the nuclear waste management problem*”, European Commission, Luxembourg, 2001.

FAIRHURST, C.; “*Nuclear waste disposal and rock mechanics: contributions of the Underground Research Laboratory (URL), Pinawa, Manitoba, Canada*”, International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences, vol 41, issue 8, pp 1221-1227, 2004.

FALCK W. E.; NILSSON K. F. “*Geological Disposal of Radioactive Waste*”, Scientific and Technical Research series (2009).

FORTUNA, A. O. “*Técnicas Computacionais para Dinâmica dos Fluidos*”, Edusp, São Paulo, (2000).

GIACOBBO, F.; PATELLI, E.; “*Monte Carlo simulation of nonlinear reactive contaminant transport in unsaturated porous media*”, Annals of Nuclear Energy, vol 34, issue 1-2, pp 51-63, 2006.

HELTON, J.C.; SALLABERRY, C.J.; “*Conceptual basis for the definition and calculation of expected dose in performance assessments for the proposed high-level radioactive waste repository at Yucca Mountain, Nevada*”, Reliability Engineering & System Safety, vol 94, issue 3, pp 677-698, 2009.

IAEA - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, “*Monitoring of Geological Repositories for High Level Radioactive Waste*”, TECDOC-1208, Vienna (2001).

IAEA - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, “*Scientific and Technical Basis for the Geological Disposal for Radioactive Wastes*”, Technical Reports Series no.413, IAEA, Vienna (2003).

IAEA - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, “*Implications of Partitioning and Transmutation in Radioactive Waste Management*”, Technical Reports Series no.435, IAEA, Vienna (2004).

IAEA – INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. “*Country Nuclear Fuel Cycle Profiles*”. IAEA: Vienna, Áustria, 2005.

IAEA – INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. “*Storage and Disposal of Spent Fuel and High Level Radioactive Waste*”, disponível em: http://www.iaea.org/About/Policy/GC/GC50/GC50InfDocuments/English/gc50inf-3-att5_en.pdf, acessado em: 15/11/2013.

IMARDJOKO, Y., U.; “*Radioactive releases from nuclear waste repository in the tropical climate environment*”, Progress in Nuclear Energy, vol 37, issue 1-4, pp 383-386, 2000.

INB, INDÚSTRIAS NUCLEARES DO BRASIL, disponível em: http://www.inb.gov.br/pt-br/webforms/Imprimir.aspx?campo=64&secao_id=56 Acesso em: 08/08/2013.

JUNGHANS, A. R., “*Transmutation of high-level radioactive waste*”, disponível em: <http://indico.cern.ch/getFile.py/access?contribId=46&sessionId=3&resId=1&materialId=slides&confId=251800>, Acesso em 13/11/2013.

KRAUSKOPF, K.B., “*Geology of High Level Nuclear Waste Disposal*”, Annual Review of Earth Planetary Sciences, 16, 173-200, 1988.

LI, S. H.; CHIOU, S. L., “*Radionuclide Migration in Fractured Porous Rock: Analytical Solution for a Kinetic Solubility-Limited Dissolution Model*”, Nuclear Technology, 104, pp. 258-271 (1993).

MALEKIFARSANI, A.; SKACHEK, M. A., “*Effect of precipitation, sorption and stable of isotope on maximum release rates of radionuclides from engineered barrier system (EBS) in deep repository*”, Journal of Environment Radioactivity, 100, 807-814, 2009.

MILLARD, A.; REJEB, A.; CHIJIMATSU, M.; JING, L.; DE JONGE, J.; KOHLMEIER, M.; NGUYEN, T.S.; RUTQVIST, J.; SOULEY, M.; SUGITA, Y.; “*Numerical study of the THM effects on the near-field safety of a hypothetical nuclear waste repository—BMT1 of the DECOVALEX III project. Part 2: effects of THM coupling in continuous and homogeneous rocks*”. International Journal of Rock Mechanics & Mining Sciences, 42, 731–744, 2005.

MILLER, W.; ALEXANDER, R.; CHAPMAN, N.; MCKINLEY, I.; SMELLIE, J.; “*Geological Disposal of Radioactive Wastes and Natural Analogues*”, Elsevier Science Ltda, 2000.

MIN, K.-B.; RUTQVIST, J.; TSANG, C.-F.; JING, L.; “*Thermally induced mechanical and permeability changes around a nuclear waste repository—a far-field study based on equivalent properties determined by a discrete approach*”, International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences, vol 42, issue 5-6, pp 765-780, 2005.

MORENO, L.; GYLLING, B.; NERETNIEKS, I.; “*Solute transport in fractured media - the important mechanisms for performance assessment*”, Journal of Contaminant Hydrology, vol 25, issue 3-4, pp 283-298, 1997.

MORENO, L.; CRAWFORD, J.; NERETNIEKS, I.; “*Modelling radionuclide transport for time varying flow in a channel network*”, Journal of Contaminant Hydrology, vol 86, issue 3-4, pp 215-238, 2006.

NAIR N. R., KRISHNAMOORTHY T. M., “*A Simply Model for the Preliminary Safety Analysis of a High Level Radioactive Waste Repository*”, Annual of Nuclear Energy, vol 24, n 12, pp 995-1003, 1997.

NEA, Nuclear Energy Agency, “*Geological Disposal of Radioactive Waste, Review of Developments in the Last Decade*”, OECD, Paris, France, 1999.

NEA, Nuclear Energy Agency, “*Radioactive Waste in Perspective*”, OECD, Paris, France, 2006.

NEA, Nuclear Energy Agency, “*Advanced Nuclear Fuel Cycles and Radioactive Waste Management*”, OECD, Paris, France, 2010.

NERETNIEKS, I., “*Diffusion in the rock matrix: An important factor in radionuclide retardation?*”, Journal of Geophysical Research, 85, 1980.

NERETNIEKS, I., RASMULSON, A., “*An approach to modelling radionuclide migration in a medium with strongly varying velocity and block sizes along the flow path*”, Royal Institute of Technology Stockholm, Sweden TR- 83-69, 1983.

NISHIHARA, K., NAKAYAMA, S., MORITA, Y., OIGAWA, H., IWASAKI, T., “*Impact of Partitioning and Transmutation on LWR High-Level Waste Disposal*”, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 45, No. 1, p. 84-97 (2008).

NYKYRI, M.; NORDMAN, H.; MARCOS, N.; LÖFMAN J.; POTERI A.; HAUTOJÄRVI, A. “*Radionuclide Release and Transport – RNT-2008*”, Posiva Oy, Olkiluoto, Finland. Report POSIVA 2008-06.

ODLING, N. E.; RODEN, J. E.; “*Contaminant transport in fractured rocks with significant matrix permeability, using natural fracture geometries*”, Journal of Contaminant Hydrology, vol 27, issue 3-4, pp 263-283, 1997.

OECD NUCLEAR ENERGY AGENCY, “*The Environmental and Ethical Basis of Geological Disposal*”, OECD, Paris (1995).

PARK, J. B.; HWANG Y.; LEE, K. J.; “*Analytic solutions of radionuclide transport with the limited diffusion from the fracture into a porous rock matrix*”, Annals of Nuclear Energy, vol 28, issue 10, pp 993-1011, 2001.

- PLANALTO. Disponível em: http://www.planalto.gov.br/ccivil_03/leis/LEIS_2001/L10308.htm. Acessado em: 07.nov.2013.
- POSIVA (2006): “*Nuclear Waste Management of the Olkiluoto and Loviisa Power Plants: Programme for Research, Development and Technical Design for 2007-2009*”, TKS- 2006, Posiva Oy.
- PRESS, W. H.; TEUKOLSKY S. A.; VETTERLING, W.T.; FLANNERY, B. P. *Numerical Recipes*, Cambridge University Press, Cambridge (1994).
- PUSCH, R. *Geological Storage of Highly Radioactive Waste*, Springer-Verlang Berlin Heidelberg (2008).
- REIS, P. O. “*Aplicação efetiva do Principio da Precaução*”. In: *Âmbito Jurídico*, Rio Grande, XIV, n. 89, jun 2011. Disponível em: <http://www.ambito-juridico.com.br/site/index.php?n_link=revista_artigos_leitura&artigo_id=9664>. Acesso em julho de 2013.
- ROBINSON, B. A.; LI, C.; HO, C. K., “*Performance assessment model development and analysis of radionuclide transport in the unsaturated zone, Yucca Mountain, Nevada*”, *Journal of Contaminant Hydrology*, vol 62-63, pp 249-268, 2003.
- RUTQVIST, J.; CHIJIMATSU, M.; JING, L.; MILLARD, A.; NGUYEN, T.S.; REJEB A.; SUGITA, Y.; TSANG, C.F.; “*Numerical study of THM effects on the near-field safety of a hypothetical nuclear waste repository— BMT1 of the DECOVALEX III Project. Part 3: effects of THM coupling in sparsely fractured rocks*”. *International Journal of Rock Mechanics & Mining Sciences* 42, 745–755, 2005.
- SILVEIRA, C. S. *Migração de Radionuclídeos em Meio Fraturado: Estudo Numérico da Convecção-Difusão na Fratura e Difusão na Rocha Matriz e Solução Numérica para o Modelo de Dissolução de Solubilidade Limitada*, dissertação de mestrado. COPPE/UFRJ, 2008.
- SILVEIRA, C., S.; ALVIM, A., C., M.; “*Numerical modeling of radionuclide migration in water-saturated planar fracture: study of performance of bentonite in the far-field region*”, *International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2011 Belo Horizonte, MG, Brazil, October 24-28, 2011*.

SMIDTS, O. F.; “*Applications of an adjoint Monte Carlo method to the underground migration of radionuclides over large scales*”, *Annals of Nuclear Energy*, vol 29, issue 6, pp 717-750, 2001.

STUK, Guide YVL 8.4. *Long-term safety of disposal of spent nuclear fuel*. Radiation and Nuclear Safety Authority (STUK). Helsinki, 2001.

SUN, Y.; BUSCHECK, T. A.; “*Analytical solutions for reactive transport of N-member radionuclide chains in a single fracture*”, *Journal of Contaminant Hydrology*, vol 62-63, pp 695-712, 2003.

TANG, D.H., FRIND, E.O., SUDICKY, E.A., “*Contaminant Transport in Fractured Porous Media: Analytical Solution for a Single Fracture*”, *Water Resource Research*, Vol.17, No.3, pp.555-564, 1981.

TENNENBAUM, J.; *Energia Nuclear: Dínamo da reconstrução econômica mundial*, Capax Dei, Rio de Janeiro, 2009.

TSUJIMOTO, K.; AHN, J.; “*Preliminary and Scoping Analysis for Uncertainty of HLW Geologic Repository Performance with Multiple Canister Repository Model by Earth Simulator*”, *Journal of Nuclear Science and Technology*, vol.44, p.456, 2007.

WHIPPLE, C., “*Disposal of Spent Nuclear Fuel and High-level Radioactive Waste*”, ENVIRON International Corporation, Blue Ribbon Commission on America’s Nuclear Future, 2010.

WILLIAMS M.M.R., “*Radionuclide transport in fractured rock*”, *Progress in Nuclear Energy*, volume 30, issue 3, pages 243-253, 1996.

WU, Y.-S.; LIU, H.H.; BODVARSSON, G.S.; “*A triple-continuum approach for modeling flow and transport processes in fractured rock*”, *Journal of Contaminant Hydrology*, vol 73, issue 1-4, pp 145-179, 2004.