

## TRATAMENTO DE CINZAS DE INCÊNDIO CONTAMINADAS COM TÓRIO-232

Laura S. ENDO, José C. DELLAMANO, Júlio T. MARUMO, Roberto VICENTE.

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares IPEN/CNEN-SP  
Travessa R, 400  
05508-970 - São Paulo - SP

### RESUMO

No presente trabalho descreve-se o tratamento dado a rejeitos caracterizados como cinzas de incêndio contaminadas com tório-232. Trata-se de rejeitos recolhidos durante a descontaminação de uma área de uma fábrica de camisas de lampião. Na fabricação as camisas de lampião são impregnadas com solução de nitrato de  $^{232}\text{Th}$ , daí a razão da contaminação durante o incêndio. Foram tratados cerca de 2 m<sup>3</sup> de materiais diversos (cinzas, plásticos, telhas, borrachas, tecidos, pisos cerâmicos), recolhidos sem qualquer segregação primária para armazenamento temporário, nas instalações da Supervisão de Rejeitos e Descontaminação do IPEN.

### INTRODUÇÃO

Usuários de radioisótopos geram rejeitos em quantidades variáveis. Em sua maioria como as atividades manuseadas são baixas e os radioisótopos de meias-vidas curtas, os rejeitos gerados em situações normais estão dentro dos limites de isenção estabelecidos em norma, de modo que o próprio usuário tem condições de administrá-los.

Rejeitos gerados em situações de emergência ou em intervenções radiológicas ocorridas nos limites do Estado, geralmente são encaminhados ao IPEN e gerenciados na Supervisão de Rejeitos e Descontaminação (MQR). O tratamento de rejeitos a que se refere o presente trabalho é um exemplo de rejeitos gerados em um destes eventos. Rejeitos radioativos foram gerados na descontaminação de uma das instalações incendiadas de uma fábrica de camisas de lampião. O incêndio provocou a destruição de parte da instalação onde se encontravam as matérias-primas de produção incluindo soluções de nitrato de  $^{232}\text{Th}$ . As soluções de tório-232 são utilizados para impregnar os tecidos destas camisas. Durante a descontaminação os rejeitos foram coletados em tambores de polietileno sem quaisquer tipo de segregação primária, sendo encontrados nas embalagens sólidos úmidos compactáveis e não compactáveis, juntamente com líquidos, sólidos secos, entulhos em geral, resultando em cerca de 2 - 3 toneladas de material.

### TRATAMENTO E ACONDICIONAMENTO DAS CINZAS DE INCÊNDIO

**Segregação.** A primeira providência para a caracterização e o início do tratamento destas cinzas contaminadas com  $^{232}\text{Th}$  foi a segregação destes rejeitos levando em consideração as instalações e técnicas disponíveis na Supervisão para atender as etapas posteriores do tratamento, ou seja: compactação, imobilização com cimento e acondicionamento dos rejeitos não compactáveis.

A segregação foi efetuada manualmente sobre uma peneira de aço de malha (2x2)cm, apoiada sobre uma bandeja também de aço inóx provida de um dreno com filtro na parte inferior para a coleta do rejeito líquido. Desta operação resultaram:

- 1 m<sup>3</sup> de rejeitos compactáveis, devidamente acondicionados em 02 tambores de 200L, contendo estopa, luvas, plásticos, pisos emborrachados, telas, tecidos, camisas de lampião, sapatilhas, etc... A atividade do  $^{232}\text{Th}$  não foi determinada devido a extrema

heterogeneidade do material compactado:

- 04 tambores de 200L contendo os rejeitos não compactáveis, que foram acondicionados com pasta de cimento, contendo pedaços de madeira, pisos cerâmicos, telhas, plásticos rígidos, metais, e outros entulhos;

- 04 tambores de 200L contendo as partes que passaram pela malha da peneira (menor que 2cm), para posterior imobilização com cimento;

- 70L de rejeitos líquidos contendo nitrato de tório e outros sais, apresentando acidez elevada.

### IMOBILIZAÇÃO DOS SÓLIDOS

**Caracterização dos Rejeitos Sólidos.** A caracterização foi efetuada apenas na fração sólida segregada, destinada à imobilização, e constou de: determinação do inventário radioisotópico, determinação da umidade, determinação da acidez residual e determinação de uma composição otimizada para a imobilização.

**Inventário Radioisotópico.** As concentrações de  $^{228}\text{Th}$  e  $^{228}\text{Ra}$  foram determinadas por espectrometria gama e as concentrações de  $^{232}\text{Th}$  foram inferidas a partir da concentração de  $^{228}\text{Ra}$  e do gráfico de equilíbrio. As análises foram efetuadas para amostras retiradas dos 4 tambores segregados. Os resultados estão apresentados na Tabela 1.

Tabela 1. Inventário radioisotópico do rejeito sólido.

Amost.	$^{228}\text{Th}$ (Bq/kg)	$^{228}\text{Ra}$ (Bq/kg)	$^{232}\text{Th}$ (Bq/kg)
1	(1.06±0.12)E+05	(3.93±0.42)E+04	(1.84±0.34)E+05
2	(6.59±0.73)E+04	(2.70±0.32)E+04	(1.26±0.24)E+05
3	(7.15±1.43)E+04	(2.96±0.50)E+04	(1.38±0.31)E+05
4	(2.44±0.32)E+05	(9.55±1.26)E+04	(4.46±0.89)E+05

**Determinação da Umidade.** A umidade foi determinada por secagem e pesagem de amostras de cada um dos tambores, até a um valor constante. Os valores encontrados estão apresentados na Tabela 2.

**Determinação da Acidez Residual.** Cada amostra de 10 g foi agitada vigorosamente com água destilada ( 100 ml), e o pH medido no líquido sobrenadante. A acidez assim determinada está na Tabela 2.

Tabela 2. Umidade e acidez dos rejeitos sólidos

Amostra	% H <sub>2</sub> O	pH
1	56.68	4.5
2	57.72	5.0
3	53.69	6.0
4	43.89	3.0

**Caracterização dos Produtos.** Para a definição de uma composição otimizada do produto, foram efetuados testes preliminares de imobilização deste rejeito partindo-se de três composições, C1, C2 e C3, não levando em conta o teor de umidade determinado anteriormente:

A = Água R = Rejeito C = Cimento

- C1) A/C = 0.4 e R/C = 1  
 C2) A/C = 0.4 e R/C = 2  
 C3) A/C = 0.4 e R/C = 3

Estas composições foram repetidas para amostras dos 4 tambores segregados. Foram analisados apenas trabalhabilidade (visual), tempo de pega ( fim da solidificação) e resistência mecânica ( compressão axial), devido a singularidade do rejeito. Na Tabela 3 estão apresentados os resultados observados de trabalhabilidade e o tempo de pega e na Tabela 4 a resistência mecânica.

Apesar dos valores de desvios obtidos nas medidas efetuadas, observa-se que os produtos que apresentaram valores maiores de compressão axial e melhores com relação a trabalhabilidade foram aqueles obtidos a partir da composição C1 para todas amostras (1,2,3 e 4).

Tabela 3. Trabalhabilidade e tempo de pega

Composição	Trabalhabilidade	Tempo de Pega
C1	boa	5 - 6 h
C2	difícil	5 - 6 h
C3	difícil	5 - 6 h

Tabela 4. Resistência mecânica ( MPa)

Amostra	Composição	Resistência (MPa)
1	C1	2.0 ± 1.0
	C2	1.13 ± 0.61
	C3	0.73 ± 0.39
2	C1	3.06 ± 1.28
	C2	0.87 ± 0.40
	C3	0.50 ± 0.42
3	C1	4.07 ± 0.31
	C2	1.27 ± 0.75
	C3	1.30 ± 0.75
4	C1	2.90 ± 2.1
	C2	0.57 ± 0.31
	C3	0.30 ± 0.14

**Caracterização dos Líquidos.** Os rejeitos líquidos separados das cinzas, resultaram num volume total aproximado de 70L. A caracterização constou da determinação do pH, percentagem de sólidos, densidade, composição química e radioisotópica. O pH foi medido diretamente com papel indicador universal, pois na titulação direta ocorre hidrólise do tório gerando um resultado falso. O valor obtido foi de pH = 2.

A percentagem de sólidos foi determinada via evaporação da amostra até secagem total e posterior estabilidade na pesagem, obtendo-se o valor médio (35.96 ± 1.94)%. A densidade aparente foi de (1.34 ± 0.008). A composição química ( Tabela 5) foi determinada por meio de fluorescência de raios-X e cromatografia de íons para as substâncias presentes em quantidades maiores.

O inventário radioativo foi determinado utilizando-se a mesma metodologia usada para os sólidos. O resultado está apresentado na Tabela 6.

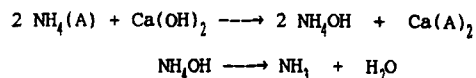
Tabela 5. Composição química do rejeito líquido

Composição química	Concentração ( g/L )
Th <sup>4+</sup>	162 ± 4.3
Fe <sup>3+</sup>	0.51 ± 0.02
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	245
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	8.1

Tabela 6. Inventário radioisotópico do rejeito líquido

Radionuclídeo	Atividade total (Bq)
Tório-228	2.01 E+07
Rádio-228	8.97 E+06
Tório-232	4.01 E+07

**Caracterização do Produto Rejeito-líquido-cimento.** Durante a determinação da acidez da solução rejeito e posterior teste de neutralização constatou-se a liberação de uma grande quantidade de amonea, devida a presença de sais de amônio na solução, constatada depois pelas análises químicas. A presença destes sais é deletéria ao cimento, pois provoca o consumo excessivo do CaO presente no cimento. Os sais de amônio formam o correspondente hidróxido na presença de hidróxidos/óxidos alcalinos, como mostra a reação:



(A) é um ânion típico ( NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, Cl<sup>-</sup> ... )

Foram feitos diversos ensaios para se determinar a quantidade de hidróxido/óxido necessária para neutralizar e eliminar completamente a amonea. Tomando-se como base o hidróxido de sódio chegou-se ao valor (3.6 ± 0.3) meq(OH)/ml de rejeito.

O teste final para a imobilização do rejeito líquido foi a determinação da razão A/C (água/cimento), após a neutralização e eliminação da amonea. Assim para o valor de A/C = 0.60 encontrado, a composição final resultante, em percentagem-peso, foi:

- 26.5% Rejeito
- 3.3% CaO (ou outro equivalente)
- 54.8% Cimento
- 15.4% Água

## RESULTADOS

A operação final de imobilização da parte sólida das cinzas resultaram em 5 tambores de 200L e da parte líquida apenas 1. Após a inspeção visual com relação a ausência de água livre e solidificação foram fechados, identificados (codificados) e armazenados no depósito de rejeitos tratados. De cada tambor foram retiradas alíquotas para a confecção de corpos de prova para a determinação final de resistência mecânica (Tabela 7). O registro do inventário está de acordo com a composição final de cada tambor a partir das análises feitas no rejeito primário e está também apresentado na Tabela 7 conforme a identificação dada aos tambores. A resistência mecânica maior observada para o produto identificado como CZ-010L deve-se ao fato do rejeito líquido ser neutralizado com CaO.

Tabela 7. Inventário radioativo e resistência mecânica dos embalados resultantes das cinzas de incêndio.

Código	R.Mec. (MPa)	<sup>228</sup> Th (Bq)	<sup>228</sup> Ra (Bq)	<sup>232</sup> Th (Bq)
CZ-005	3.6±1.0	6.6 E+06	2.7 E+06	1.3 E+07
CZ-006	6.0±1.3	2.1 E+07	8.4 E+06	3.9 E+07
CZ-007	4.1±0.4	1.5 E+07	5.8 E+06	2.7 E+07
CZ-008	3.9±0.2	7.3 E+06	3.0 E+06	1.4 E+07
CZ-009	3.2±0.7	1.1 E+07	4.0 E+06	1.9 E+07
CZ-010L	26.0±0.8	2.0 E+07	9.0 E+06	4.0 E+07

## ABSTRACT

The present paper describes the work developed for the treatment of wastes characterized as burning ashes, contaminated with Thorium-232. These wastes were collected during the decontamination of a factory installation where gas lamp jackets were manufactured. Solutions of <sup>232</sup>Th nitrate are used to impregnate the jackets for gas lamps. During the burning these solutions contaminated the area where they were stored. About 2m<sup>3</sup> of wet materials such as ashes plastics, ceramics, rubbers, textiles, wood were duly treated resulting 10 packages of 200L drums for the interim storage.