

# UM ESTUDO COMPARATIVO DE MODELOS DE LIBERAÇÃO DE HEXAFLUORETO DE URÂNIO (UF<sub>6</sub>)

Cláudia Cristina Braga\* e José Messias de Oliveira Neto\*\* \*\*

\*Centro Tecnológico da Marinha em São Paulo, CTMSP  
Av. Prof. Lineu Prestes, 2242  
05508-900, Caixa Postal 66158, São Paulo, SP, Brasil

\*\*Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN-CNEN/SP  
Av. Prof. Lineu Prestes 2.242  
05508-900 Butantã, São Paulo, SP, Brasil

## RESUMO

Neste trabalho é feita uma análise entre três modelos de dispersão para uma pluma de hexafluoreto de urânio. São utilizados os programas HGSYSTEM/UF<sub>6</sub>, RASCAL e um modelo gaussiano de dispersão de pluma. São analisados os resultados dos programas em relação à concentração de ácido fluorídrico e de incorporação de urânio para um indivíduo a uma certa distância do ponto de liberação. Os valores são comparados com níveis estabelecidos na literatura para a classificação e adoção de normas e planos de emergências para instalações nucleares que processam UF<sub>6</sub>.

Keywords: dispersion models, UF<sub>6</sub>, computer programs, uranium intake, hgsystem.

## I. INTRODUÇÃO

O hexafluoreto de urânio (UF<sub>6</sub>) é uma substância presente em várias fases da fabricação do combustível nuclear (conversão, enriquecimento e reconversão). A sua utilização requer medidas de segurança, pois o UF<sub>6</sub> em contato com a umidade do ar reage exotermicamente produzindo ácido fluorídrico e fluoreto de urânio, que são substâncias bastante tóxicas e facilmente transportadas pela atmosfera.

A dispersão do UF<sub>6</sub> se desenvolve de uma forma bastante complexa pois além da reação exotérmica com a umidade do ar, a pluma resultante pode exibir características de pluma leve, densa ou neutra durante o transporte atmosférico.

O presente trabalho analisa as consequências de liberações acidentais de UF<sub>6</sub> resultantes de vazamentos em cilindros operando dentro de edifícios típicos de uma planta de conversão de urânio.

O termo-fonte interno ao edifício é determinado através do programa CYLIND [1], o qual fornece a taxa de liberação; a duração do vazamento e a quantidade total liberada no interior do prédio.

O estudo compreende a utilização de alguns modelos de dispersão sob diferentes condições de estabilidade atmosférica. São utilizados os programas HGSYSTEM/UF<sub>6</sub> [2], RASCAL [3] e o modelo gaussiano de dispersão de pluma [4].

As consequências da liberação de UF<sub>6</sub> para a atmosfera são estimadas em função da incorporação de urânio solúvel e da concentração de HF na atmosfera. São discutidas as principais diferenças observadas nos resultados bem como as suas implicações na classificação de segurança da instalação e nas medidas de emergência a serem adotadas em determinadas situações.

## II. RELEVÂNCIA DO TRABALHO

O hexafluoreto de urânio é largamente utilizado em plantas de ciclo de combustível nuclear. O conhecimento das consequências de vazamentos acidentais de UF<sub>6</sub> para o meio ambiente é de fundamental importância pois esse material e seus produtos de reação (HF e UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub>) são altamente tóxicos [5].

Dependendo dos níveis de concentração de UF<sub>6</sub> e seus produtos, estimados na análise de segurança de uma instalação, esta poderá ter itens com classificação de segurança bem como necessitar de medidas e planos de

emergência para a proteção de trabalhadores e indivíduos do público.

A avaliação das conseqüências acidentais se faz através de modelos matemáticos de dispersão atmosférica e de modelos de exposição de indivíduos à pluma.

Os modelos de dispersão atmosférica podem apresentar resultados diferentes para um mesmo cenário acidental, como é mostrado adiante. Isto pode ter implicações importantes quando se trata de definir a classificação de segurança e abrangência de planos de emergência.

Visando discutir estas questões o presente trabalho considera a aplicação de três modelos de dispersão atmosférica usando cenários acidentais típicos de uma instalação de conversão de urânio. O código HGSYSTEM/UF<sub>6</sub> é, atualmente, o programa mais sofisticado para simulações de dispersão atmosférica de UF<sub>6</sub> [6]. O programa RASCAL foi desenvolvido pela Nuclear Regulatory Commission (NRC) para avaliação de situações de emergência. O modelo gaussiano é um modelo simples, também usado por alguns autores para avaliar a dispersão de UF<sub>6</sub> [7].

### III. MODELOS UTILIZADOS NO PRESENTE TRABALHO

O programa CYLIND [1] contém modelos que utilizam as propriedades físicas e termodinâmicas do UF<sub>6</sub>, HF, UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub> e H<sub>2</sub>O, para calcular a taxa de liberação de UF<sub>6</sub> líquido ou gasoso, pressurizado, contido em cilindros a partir de uma ruptura no corpo do cilindro ou na tubulação ou ainda de uma falha na válvula.

O programa HGSYSTEM/UF<sub>6</sub> [2] contém modelos com algoritmos químicos e termodinâmicos específicos para o desenvolvimento da pluma de UF<sub>6</sub>. O programa modela liberações de UF<sub>6</sub> a partir de um vazamento em um cilindro localizado no interior de um prédio, ou pode considerar uma liberação diretamente para o meio ambiente.

O programa calcula a reação do UF<sub>6</sub> com a umidade do ar no interior do prédio e modela a dispersão dos produtos da reação (ácido fluorídrico e urânio) considerando o efeito de "building wake".

O programa RASCAL (Radiological Assessment System for Consequence Analysis) 3.0 [3] modela liberações acidentais provenientes de uma ruptura na válvula de um cilindro.

O programa possui modelos para liberação de UF<sub>6</sub> a partir de cilindros localizados no interior de alguma instalação ou armazenados no meio ambiente.

No caso de liberação de UF<sub>6</sub> líquido por um rompimento ou falha na válvula, a localização da válvula é utilizada para estabelecer a fração máxima liberada.

Para as liberações de UF<sub>6</sub> a partir de cilindros localizados no interior de prédios, o programa calcula a reação do UF<sub>6</sub> com o vapor d'água no interior da instalação e considera a liberação, para a atmosfera, do fluoreto de urânio (UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub>) e do ácido fluorídrico (HF). O programa considera que 1 kg de UF<sub>6</sub> gera 0,88 kg de UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub> (0,68 kg

de U) e 0,23 kg de HF. Há a possibilidade de se considerar ou não o efeito de "building wake" na dispersão da pluma.

O modelo gaussiano de dispersão de pluma com o efeito de "building wake", do NUREG/CR-3332 [4] calcula o termo de difusão atmosférica ( $\chi/Q$ ) com a seguinte equação:

$$\frac{\chi}{Q} = \frac{1}{(\delta\sigma_y \delta\sigma_z + cA)u} \quad (1)$$

onde:

A = área transversal do prédio normal à direção do vento (m<sup>2</sup>);

c = fração da área do prédio coberta pela pluma, (normalmente se utiliza, conservativamente, o valor de c=0,5);

u = velocidade média do vento (m/s)

$\sigma_y$  = desvio lateral da pluma (m)

$\sigma_z$  = desvio vertical da pluma (m)

Os valores de  $\sigma_y$  e  $\sigma_z$  são calculados de acordo com a referência [8].

O modelo gaussiano de dispersão do NUREG/CR-3332 será chamado apenas de modelo gaussiano de dispersão no restante do trabalho.

A concentração de HF na atmosfera é calculada pela Eq. (2):

$$C_{HF} = \left( \frac{\chi}{Q} \right) \left( \frac{m_{HF}}{t} \right) \quad (2)$$

onde:

$C_{HF}$  = concentração de HF no ar (mg/m<sup>3</sup>)

$m_{HF}$  = massa de HF liberada para a atmosfera (mg)

t = tempo de duração da liberação (s)

A incorporação de U, via inalação das substâncias liberadas para a atmosfera, é dada pela Eq. (3) [9]:

$$I_U = \left( \frac{\chi}{Q} \right) m_u BR \quad (3)$$

onde:

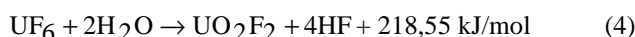
$I_U$  = massa de U incorporada, via inalação (mg)

$m_u$  = massa de U liberada para a atmosfera (mg)

BR = taxa de respiração média de um indivíduo adulto = 2,54 x 10<sup>-4</sup> m<sup>3</sup>/s. [10]

### IV. DESENVOLVIMENTO DO TRABALHO

Supõe-se que o vazamento de UF<sub>6</sub> ocorre em cilindros abrigados em edifícios de processo com volume suficiente para que todo o UF<sub>6</sub> vazado reaja com a umidade do ar produzindo UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub> e HF conforme a reação apresentada na Eq. (4) [9]:



**Vazamento Interno no Edifício.** Os valores de taxa de liberação de  $\text{UF}_6$  a partir de cilindros foram calculados com o programa CYLIND [1]. Foram consideradas liberações acidentais a partir de válvulas em cilindros 48Y e 30B. Considerou-se que os cilindros estão na posição horizontal e que a válvula esteja na parte inferior, representando a pior situação de liberação.

As condições de armazenamento do  $\text{UF}_6$  bem como os valores obtidos para a taxa média de liberação, a massa total liberada e o tempo total de liberação são apresentados na TABELA 1. Nas simulações supõe-se que o  $\text{UF}_6$  em cada um dos recipientes está na pressão de saturação correspondente à temperatura fornecida.

Observa-se que para ambos os cilindros (30B e 48Y) praticamente todo o  $\text{UF}_6$  contido vaza para o interior do prédio. Esses valores são usados como dados de entrada nos modelos de cálculo de dispersão. Não se considera nenhuma medida mitigadora para minimizar o termo-fonte para a atmosfera.

TABELA 1. Parâmetros Característicos dos Vazamentos Postulados.

	30B	48Y
massa de $\text{UF}_6$ (kg)	2.277	12.501
Temperatura do $\text{UF}_6$ ( $^{\circ}\text{C}$ )	93	93
taxa média de liberação (kg/s)	2,79	2,79
massa total liberada (kg)	2.121	11.867
tempo total da liberação (s)	720	4.250

## V. CRITÉRIOS DE AVALIAÇÃO DAS CONSEQÜÊNCIAS

A análise das conseqüências foi feita considerando-se um indivíduo exposto por 15 minutos à pluma.

A incorporação de 2 mg de urânio solúvel, para um indivíduo fora da instalação, exige a adoção de planos de emergência [5].

O valor de 10 mg foi adotado como o limite de incorporação para o qual não foi observado nenhum efeito detectável em humanos, nem imediato e nem a longo prazo [5].

Para o ácido fluorídrico a NIOSH estabelece um valor de IDLH ("Immediately Dangerous to Life or Health") de 30 ppm ( $25 \text{ mg/m}^3$ ) como a concentração máxima na qual um indivíduo poderia ficar exposto por 30 minutos sem sofrer qualquer sintoma ou efeito irreversível na sua saúde [5]. Para exposições menores do que 30 minutos, a concentração de HF correspondente ao IDLH de  $25 \text{ mg/m}^3$  é dada pela Eq. (5):

$$C = 25 \text{ mg/m}^3 (30\text{min} / t)^{1/2} \quad (5)$$

Utilizando a Eq. (5) para o tempo de 15 minutos, a concentração de HF correspondente ao IDLH é igual a  $35 \text{ mg/m}^3$  (29 ppm).

Esses critérios podem ser usados para o estabelecimento das dimensões de uma zona de exclusão ao redor da instalação nuclear e também para a identificação de itens importantes à segurança [5].

## VI. RESULTADOS E CONCLUSÕES

No cenário considerado neste trabalho todo o  $\text{UF}_6$  liberado reage dentro do prédio onde está localizado o cilindro e a pluma que se dispersa na atmosfera é passiva, contendo fluoreto de urânio e ácido fluorídrico.

Os resultados obtidos com os programas HGSYSTEM/ $\text{UF}_6$  [2], RASCAL 3.0 [3] e com o modelo de dispersão gaussiano [4], em termos da concentração de ácido fluorídrico (HF), em ppm, e da incorporação de urânio (U), em mg, em função da distância de um indivíduo ao ponto de liberação, são apresentados nas Figuras 1 até 8. Os valores de incorporação de urânio foram calculados considerando-se um tempo de exposição de 900 s (15 minutos).

Foram utilizadas duas condições de estabilidade atmosférica: classe F, com velocidade do vento de 1m/s e classe D, com velocidade de vento de 2,6 m/s. Para as condições do meio ambiente foram adotados o valor de 70% para a umidade relativa e uma temperatura de  $23^{\circ}\text{C}$ . Em todos os modelos utilizados foi considerado o efeito do prédio ("building wake") na dispersão da pluma passiva.

Embora o número de cenários acidentais analisados seja limitado a apenas duas condições de estabilidade atmosférica e a um tipo de liberação (vazamento interno através de válvula), os resultados apresentados nas Figuras 1 à 8 ilustram alguns aspectos importantes relacionados às conseqüências das liberações acidentais.

O modelo gaussiano utilizado tende a ser menos conservativo enquanto que o HGSYSTEM/ $\text{UF}_6$  produziu, na maioria dos casos, resultados mais conservativos.

Observa-se uma diferença, às vezes acentuada, entre os três modelos de dispersão. No caso mostrado na Fig. 1, por exemplo, a diferença de resultados entre os modelos gaussiano e os dois outros atinge um fator de 100. Uma vez que as hipóteses adotadas para o cenário de liberação são as mesmas, as discrepâncias nos resultados podem ser associadas ao nível de detalhes considerado em cada um dos modelos de dispersão utilizados. Em particular, pode-se notar que o programa HGSYSTEM/ $\text{UF}_6$  permite uma modelagem mais sofisticada do que o RASCAL que, por sua vez, considera mais fenômenos do que o modelo de dispersão gaussiano.

Outro ponto importante pode ser observado nas figuras que descrevem a incorporação de urânio (Figuras 1, 2, 5 e 6) na região entre 0 e 2 km, onde as curvas cruzam os valores de 2 mg e 10 mg (critérios de

aceitação). As TABELAS 2 e 3 resumem esses pontos de interseção, ilustrando as diferenças dos resultados obtidos com os três modelos de dispersão.

TABELA 2. Pontos de Interseção das Curvas de Incorporação de Urânio para o Critério de 2 mg.

cilindro	Classe de Estabilidade	Distância (m)		
		Hgsystem	Rascal	Gaussiano
30 B	F; 1m/s	1950	275	637
	D;2,6 m/s	1480	271	< 100
48Y	F; 1m/s	3600	11.000	1940
	D;2,6 m/s	1510	950	251

TABELA 3. Pontos de Interseção das Curvas de Incorporação de Urânio para o Critério de 10 mg.

cilindro	Classe de Estabilidade	Distância (m)		
		Hgsystem	Rascal	Gaussiano
30 B	F; 1m/s	729	< 100	256
	D;2,6 m/s	514	< 100	< 100
48Y	F; 1m/s	1328	233	692
	D;2,6 m/s	498	252	251

No desenvolvimento de um projeto de uma instalação de processo de urânio o modelo de dispersão tem impacto direto na classificação de segurança da instalação e no dimensionamento das ações de emergência. Cabe observar que a classificação de segurança também influi no custo da instalação e no processo de licenciamento junto ao órgão regulador.

Os comentários feitos se referem à incorporação de urânio por indivíduos expostos à pluma que se dispersa pela atmosfera. Para a dispersão do HF comentários semelhantes podem ser feitos bastando observar as Figuras 3, 4, 7 e 8.

Em função desses resultados conclui-se que para o desenvolvimento de um projeto de instalação nuclear que processa UF<sub>6</sub>, é necessário que se tenha, a priori, uma base normativa bem definida, não só em relação aos critérios de aceitação (incorporação de urânio, concentração de HF...) mas também em relação aos modelos de dispersão atmosférica. A falta de uma base normativa dificulta decisões do projeto relacionadas à identificação de itens de segurança e planejamento de emergências.

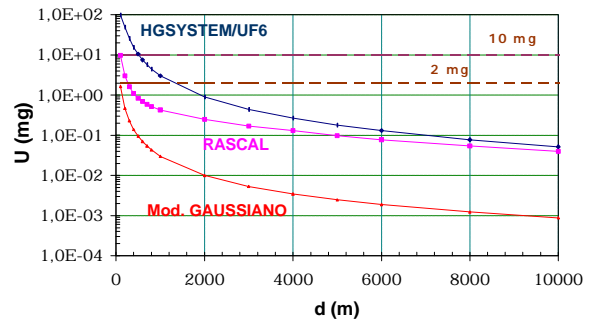


Figura 1. Incorporação de Urânio em Função da Distância. Cilindro 30B. Classe D.

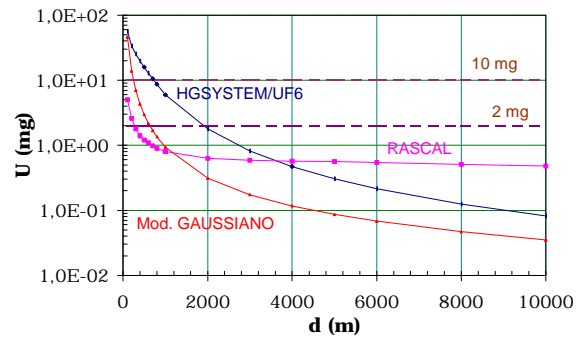


Figura 2. Incorporação de Urânio em Função da Distância. Cilindro 30B. Classe F.

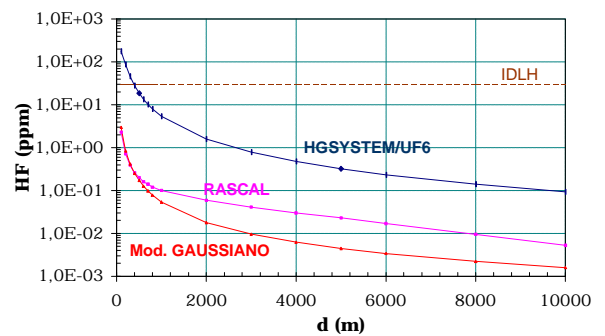


Figura 3. Concentração de HF em Função da Distância. Cilindro 30B. Classe D.

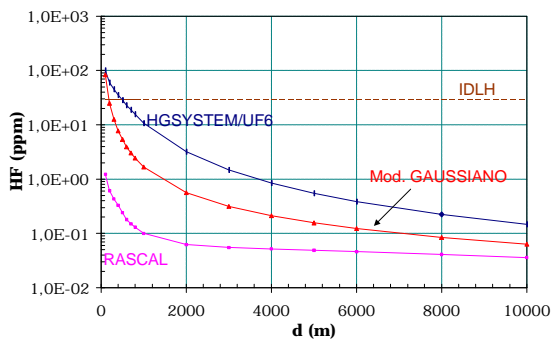


Figura 4. Concentração de HF em Função da Distância. Cilindro 30B. Classe F.

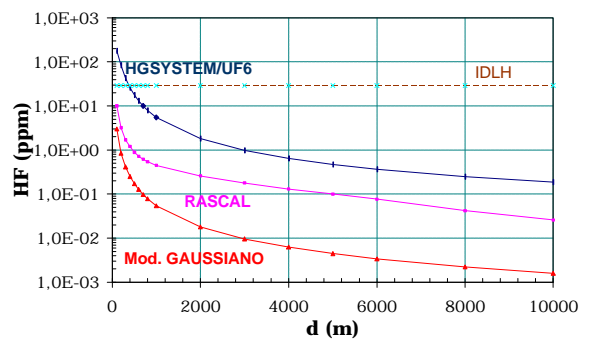


Figura 7. Concentração de HF em função da Distância. Cilindro 48Y. Classe D.

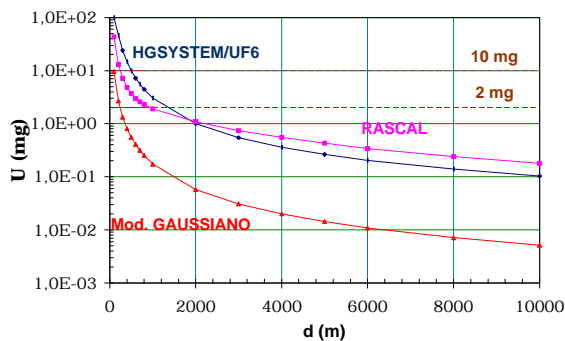


Figura 5. Incorporação de Urânio em Função da Distância. Cilindro 48Y. Classe D.

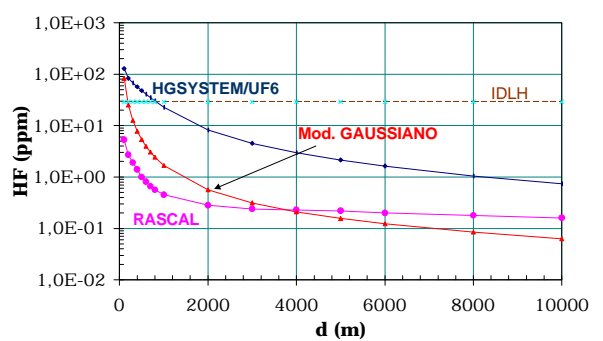


Figura 8. Concentração de HF em Função da Distância. Cilindro 48Y. Classe F.

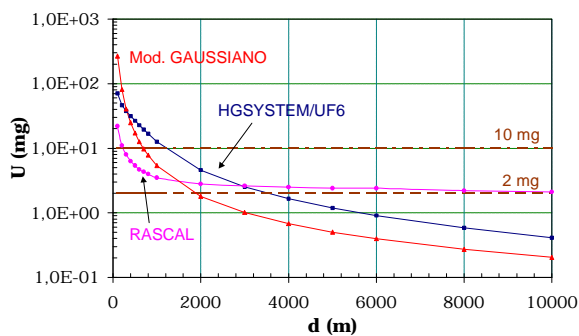


Figura 6. Incorporação de Urânio em Função da Distância. Cilindro 48Y. Classe F.

## REFERÊNCIAS

- [1] Williams, W.R. **Calculational Methods for Analysis of Postulated UF6 Releases.** NUREG/CR-4360 vol. 1. ORNL/ENG/TM-31/V1. Oak Ridge National Laboratory, September, 1985.
- [2] Hanna, S. R. ; Chang, J. C. ; Zhang, J. X. **Technical Documentation of HGSYSTEM/UF6 MODEL.** Martin Marietta Energy Systems, INC. Oak Ridge National Laboratory, October 1994.
- [3] **Technical Documentation of RASCAL 3.0.**
- [4] Till, J. E.; Meyer, H. R. **Radiological Assessment - A Textbook on Environmental Dose Analysis.** NUREG/CR-3332. U.S. Nuclear Regulatory Commission, September 1983.
- [5] McGuire, S. A. **Chemical Toxicity of Uranium Hexafluoride Compared to Acute Effects of Radiation.** NUREG/1391. February 1991.
- [6] Nair, S. K. et alii. **Review of Models Used for Determining Consequences of UF<sub>6</sub> Release.**

**NUREG/CR-6481 vol.2.** U.S.Nuclear Regulatory Commission, November 1997.

[7] **Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook.** NUREG/CR-6410. U.S. Nuclear Regulatory Commission, March 1998.

[8] Eimuts, E. C. and Konicek, M.G. **Derivations of Continuous Functions for the Lateral and Vertical Atmospheric Dispersion Coefficients.** Atmospheric Environment, vol. 6, p 859-863, 1972.

[9] **A Regulatory Analysis on Emergency Preparedness for Fuel Cycle and Other Radioactive Materials Licensees.** NUREG/1140. U. S. Nuclear Regulatory Commission, June 1989.

[10]. International Commission on Radiological Protection - **Report of the Task Group on Reference Man.** ICRP Publication 23, 1975.

#### **ABSTRACT**

The present work compares three different dispersion models that can be used to simulate accidental releases of UF<sub>6</sub> into the atmosphere. The computer programs HGSYSTEM/UF<sub>6</sub>, RASCAL and a gaussian plume model are used. The results are presented in terms of HF concentration in the air and uranium intake to individuals exposed. These results are compared with acceptance criteria used to define the safety classification of systems, structures and components. A criterion for emergency planning is also used. A discussion is made to show the differences between the results obtained with the three models, and the possible impact on the design and licensing of a uranium production facility.