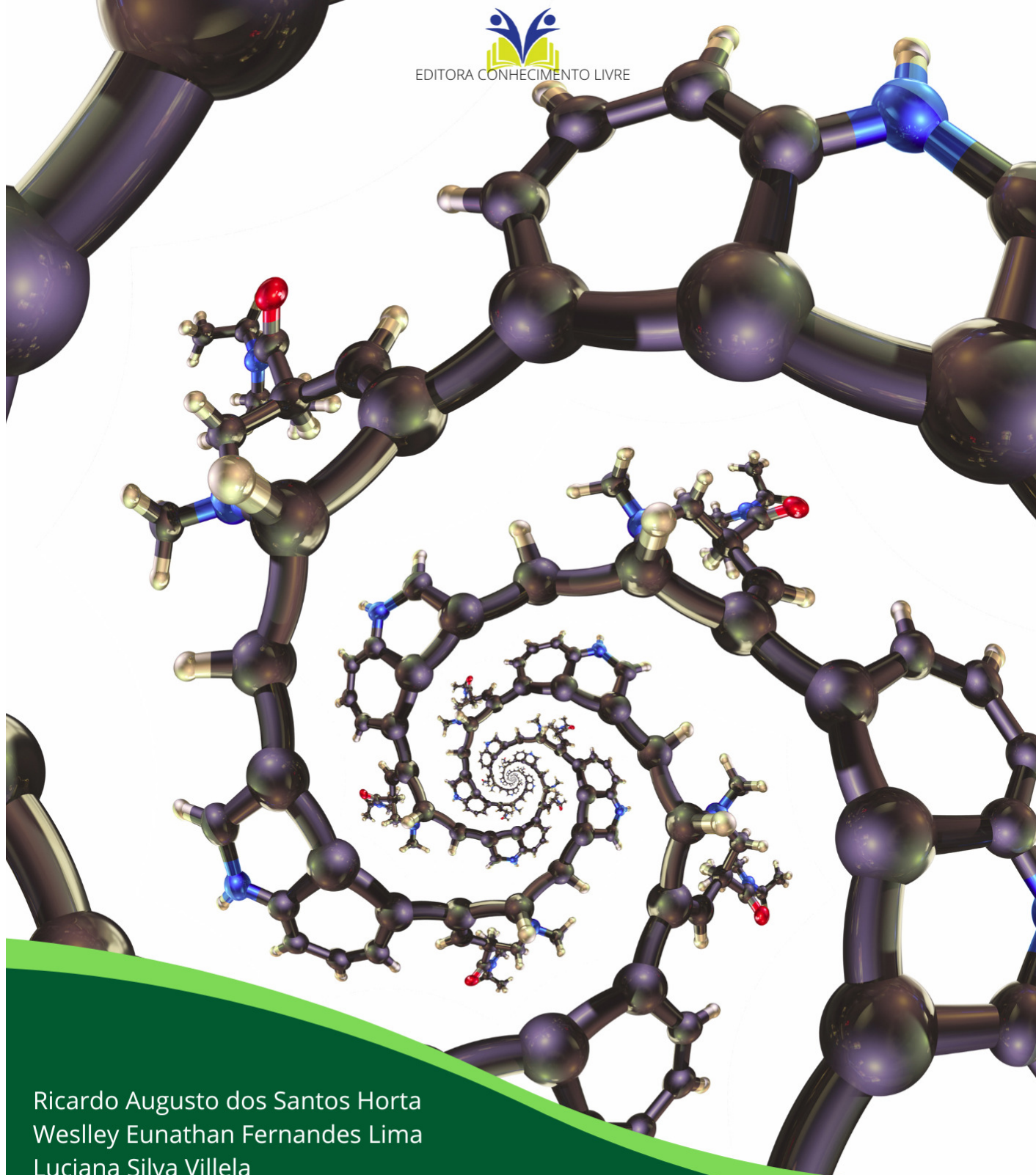




Ricardo Augusto dos Santos Horta  
Wesley Eunathan Fernandes Lima  
Luciana Silva Villela

---

# **DESENVOLVIMENTO DE MATRIZES GEOPOLIMÉRICAS PARA A SOLIDIFICAÇÃO E ESTABILIZAÇÃO DE REJEITOS RADIOATIVOS ORGÂNICOS E OLEOSOS**

---

Ricardo Augusto dos Santos Horta  
Wesley Eunathan Fernandes Lima  
Luciana Silva Villela

Desenvolvimento de Matrizes Geopoliméricas para a Solidificação e Estabilização de Rejeitos  
Radioativos Orgânicos e Oleosos

1ª ed.

Piracanjuba-GO  
Editora Conhecimento Livre  
Piracanjuba-GO

1ª ed.

**Dados Internacionais de Catalogação na Publicação (CIP)**

Horta, Ricardo Augusto dos Santos

H821D Desenvolvimento de Matrizes Geopolímeras para a Solidificação e

Estabilização de Rejeitos Radioativos Orgânicos e Oleosos

/ Ricardo Augusto dos Santos Horta. Wesley Eunathan Fernandes Lima. Luciana Silva Villela. –  
Piracanjuba-GO

Editora Conhecimento Livre, 2024

25 f.: il

**DOI:** 10.37423/2024.edcl987

**ISBN:** 978-65-5367-519-3

Modo de acesso: World Wide Web

Incluir Bibliografia

1. materiais-álcali-ativados 2. geopolímeros 3. rejeitos-radioativos I. Horta, Ricardo Augusto dos Santos II. Lima, Wesley Eunathan Fernandes III. Villela, Luciana Silva IV. Título

CDU: 624

<https://doi.org/10.37423/2024.edcl987>

**O conteúdo dos artigos e sua correção ortográfica são de responsabilidade exclusiva dos seus respectivos autores.**

# EDITORIA CONHECIMENTO LIVRE

## Corpo Editorial

MSc Edson Ribeiro de Britto de Almeida Junior

MSc Humberto Costa

MSc Thays Merçon

MSc Adalberto Zorzo

MSc Taiane Aparecida Ribeiro Nepomoceno

PHD Willian Douglas Guilherme

MSc Andrea Carla Agnes e Silva Pinto

MSc Walmir Fernandes Pereira

MSc Edisio Alves de Aguiar Junior

MSc Rodrigo Sanchotene Silva

MSc Wesley Pacheco Calixto

MSc Adriano Pereira da Silva

MSc Frederico Celestino Barbosa

MSc Guilherme Fernando Ribeiro

MSc. Plínio Ferreira Pires

MSc Fabricio Vieira Cavalcante

PHD Marcus Fernando da Silva Praxedes

MSc Simone Buchignani Maigret

Dr. Adilson Tadeu Basquerote

Dra. Thays Zigante Furlan

MSc Camila Concato

PHD Miguel Adriano Inácio

MSc Anelisa Mota Gregoleti

PHD Jesus Rodrigues Lemos

MSc Gabriela Cristina Borborema Bozzo

MSc Karine Moreira Gomes Sales

Dr. Saulo Cerqueira de Aguiar Soares

MSc Pedro Panhoca da Silva

MSc Helton Rangel Coutinho Junior

MSc Carlos Augusto Zilli  
MSc Euvaldo de Sousa Costa Junior  
Dra. Suely Lopes de Azevedo  
MSc Francisco Odecio Sales  
MSc Ezequiel Martins Ferreira  
MSc Eliane Avelina de Azevedo Sampaio  
MSc Carlos Eduardo De Oliveira Gontijo  
MSc Rainei Rodrigues Jadejiski  
Dr. Rodrigo Couto Santos  
Dra. Milena Gaion Malosso  
PHD Marcos Pereira Dos Santos



10.37423/2024.edcl987



**Resumo:** Por muitos anos, os materiais cimentícios foram considerados uma solução efetiva para a solidificação e o encapsulamento de rejeitos radioativos devido ao seu baixo custo e elevada resistência mecânica, sendo capazes de imobilizar satisfatoriamente alguns radionuclídeos. No entanto, existem rejeitos radioativos que são considerados problemáticos durante a fase de projeto das contenções cimentícias, especialmente rejeitos orgânicos ou oleosos. Se imobilizados diretamente, alguns componentes desses fluxos interferem nas reações de hidratação do cimento Portland, levando à indesejadas mudanças na micro e macro estruturas das formas de rejeitos produzidas que afetam suas performances de solidificação e estabilização. Para neutralizar essas mudanças, o traço das matrizes de imobilização cimentícia é modificado para incluir aditivos ou o uso de cimentos inovadores. Dentre esses cimentos inovadores, destacam-se os geopolímeros, solução que será investigada neste trabalho. Os geopolímeros são polímeros inorgânicos resultantes da interação de materiais ricos em sílica ( $\text{SiO}_4$ ) e alumina ( $\text{AlO}_4$ ) com um ativador alcalino, cujas propriedades aglutinantes e resistência mecânica são similares ou maiores que o concreto de cimento Portland. Nesse contexto, este trabalho objetiva desenvolver matrizes geopoliméricas para a solidificação e estabilização de rejeitos radioativos orgânicos e oleosos, semelhantes àqueles gerados em instalações nucleares e radioativas. Para isso, foi utilizado o metacaulim como precursor de aluminossilicatos e realizada a sua ativação alcalina com solução de hidróxido de sódio ( $\text{NaOH}$ ) e silicato de sódio ( $\text{Na}_2\text{SiO}_3$ ). Foram investigados o comportamento reológico e a resistência à compressão dos geopolímeros produzidos. A formulação dos geopolímeros que proporcionou o melhor comportamento reológico foi a CS-04 (40% de caulim, 30% de  $\text{NaOH}$  e 30% de  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$ ). As condições de calcinação do caulim que conduziram aos melhores resultados de resistência à compressão foram: taxa de aquecimento de  $10^\circ\text{C}/\text{min}$ , temperatura de calcinação de  $900^\circ\text{C}$  e tempo de duração de 4 horas, com uma resistência à compressão média aos 28 dias de  $34,96 \text{ MPa}$ .

**Palavras-Chave:** Geopolímeros. Materiais álcali-ativados. Rejeitos radioativos.

## 1. INTRODUÇÃO

### 1.1. CONSIDERAÇÕES INICIAIS

A CNEN define rejeitos radioativos como todo e qualquer material resultante das atividades humanas que contenha radionuclídeos em quantidades superiores aos limites de isenção especificados pela Norma CNEN-NN-8.01, e para o qual sua reutilização é imprópria ou ainda não prevista (CNEN, 2020).

Segundo a AIEA2, estes rejeitos podem ser originários de uma ampla gama de atividades, desde instalações nucleares (de energia, pesquisa e do ciclo de combustível) até instalações radioativas (serviços de radioterapia, serviços de medicina nuclear, centros de produção de radiofármacos, instalações de radiografia industrial, indústrias que operam medidores nucleares, perfilagem de poços de petróleo, instalações de processamento mineral, dentre outros).

A investigação de materiais de revestimento mais resistentes e duráveis, capazes de garantir a segurança radiológica no armazenamento dos rejeitos radioativos, torna-se essencial. Para a seleção do material hospedeiro mais adequado, é necessária uma alta capacidade de solidificação e encapsulamento destes rejeitos. Além disso, os materiais de vedação devem ter baixa solubilidade aquosa e devem fornecer fases estáveis para a imobilização de radionuclídeos (IAEA, 2003; OJOVAN e LEE, 2011; VANCE E PERERA, 2009).

Por muitos anos, os materiais cimentícios foram considerados uma solução efetiva para a solidificação e o encapsulamento de rejeitos radioativos devido ao seu baixo custo e elevada resistência mecânica, sendo capazes de imobilizar satisfatoriamente alguns radionuclídeos (BAR-NES *et al.*, 2008; KOT'ÁTKOVÁ *et al.*, 2017; GARCÍA-GUTIÉRREZ *et al.*, 2018). No entanto, a sua incompatibilidade com rejeitos orgânicos e oleosos, sua baixa estabilidade térmica, baixa resistência ao ataque por ácidos e o alto teor de água livre (que pode causar a geração problemática de gás hidrogênio, altamente inflamável), são fatores limitantes para a solidificação de rejeitos radioativos (CORNELL, 1993; VOLCHEK *et al.*, 2011; BART *et al.*, 2012; LI *et al.*, 2013; ARBEL HADDAD *et al.*, 2017).

Recentemente, os geopolímeros (uma classe de materiais ativados por álcalis) têm recebido considerável atenção na indústria da construção civil, devido à sua estabilidade química, capacidade ligante, rápido ganho de resistência mecânica, excelente durabilidade e boas propriedades térmicas (PAN; SANJAYAN; RANGAN, 2011; KASHANI *et al.*, 2017), sendo muitas vezes retratados como cimentos de terceira geração, depois da cal e do cimento Portland (MEHTA e SIDDIQUE, 2016).



Os geopolímeros são uma classe de polímeros inorgânicos semelhantes às cerâmicas resultantes da ativação alcalina de precursores sólidos de aluminossilicatos ( $\text{SiO}_2$  e  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) em condições de temperatura ambiente ou ligeiramente elevada, na presença de pouco ou nenhum cálcio disponível (sistemas de baixo cálcio) (DAVIDOVITS, 1994). Os precursores de aluminossilicato mais amplamente utilizados são, notadamente, subprodutos industriais, como escória de alto forno (derivada da indústria siderúrgica), cinzas volantes (derivadas da combustão do carvão), metacaulim (processado a partir de rejeitos da indústria de papel ou calcinação de argilas naturais), ou suas misturas, o que garante aos geopolímeros o potencial de baixo impacto ambiental. O ativador pode ser um hidróxido alcalino concentrado ou solução de silicato alcalino ( $\text{NaOH}$  ou  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$ , por exemplo), que fornece as condições de pH elevado necessárias para dissolver as moléculas de sílica e alumina e induzir a formação de uma estrutura polimérica amorfa de aluminossilicato com capacidade ligante, durabilidade química e resistência mecânica similar ou maior que o concreto de cimento Portland comum (ZHANG *et al.*, 2018).

Como os geopolímeros apresentam uma estrutura tridimensional de silício e alumínio ligados ao oxigênio, a carga negativa associada aos sítios tetraédricos de Al é tipicamente balanceada por cátions alcalinos, incluindo  $\text{Na}^+$  ou  $\text{K}^+$  do ativador, de maneira semelhante ao que ocorre na estrutura das zeólitas (PALOMO, FERNÁNDEZ-JIMÉNEZ, CRIADO, 2004; HUANG e HAN, 2011). Existem sítios ativos na superfície dos geopolímeros devido à presença de grupos de óxidos metálicos e, portanto, têm maior potencial na adsorção de íons de metais pesados (SIYAL *et al.*, 2018; JI e PEI 2019).

Desta forma, cátions radionuclídeos, incluindo Cs, Sr, Co, Pb, Cu, Cd, Th, U e Ca, existentes em fluidos residuais radioativos (água de refrigeração, óleo de motores, solventes) podem ser incorporados em geopolímeros devido à sua alta capacidade de troca iônica, o que reforça a importância do uso desses materiais nas atividades de descomissionamento de usinas ou em situações de acidentes nucleares (ZHU *et al.*, 2014; KUENZEL *et al.*, 2015; EL-ESWED *et al.*, 2017; SIYAL *et al.*, 2018; VANDEVENNE *et al.*, 2018; TIAN e SASAKI, 2019; WALKLEY *et al.*, 2020).

Nesse contexto, este trabalho objetiva investigar o potencial de utilização de matrizes geopoliméricas na solidificação e estabilização de rejeitos radioativos orgânicos e oleosos, semelhantes àqueles gerados em instalações nucleares e radioativas. Para isso, será utilizado o metacaulim como precursor de aluminossilicatos e realizada a sua ativação com solução de hidróxido de potássio ( $\text{KOH}$ ) e silicato de potássio ( $\text{K}_2\text{SiO}_3$ ).

Inicialmente, será necessário verificar se os geopolímeros produzidos apresentam resistência mecânica que atende aos requisitos mínimos estabelecidos pela CNEN, hipótese que será investigada neste trabalho. Os resultados obtidos serão analisados e, ao final, discutidos, com base na revisão da literatura.

## 1.2. JUSTIFICATIVA

A imobilização de rejeitos radioativos em matrizes cimentícias é feita por meio de dois processos simultâneos: solidificação e estabilização. O primeiro visa aumentar o desempenho mecânico do rejeito produzido, e o segundo visa reduzir a mobilidade de radiocontaminantes (BATCHELOR, 2006).

A AIEA classifica os rejeitos problemáticos como aqueles que requerem considerações especiais durante a seleção de opções de gestão, devido às suas características específicas (IAEA, 2006). Trocadores iônicos exauridos, rejeitos contendo borato e sulfato, rejeitos líquidos orgânicos e soluções de descontaminação contendo detergentes, substâncias orgânicas e/ou ácidas são exemplos de rejeitos operacionais considerados problemáticos durante a fase de projeto das contenções cimentícias (IAEA, 1993; ABDEL RAHMAN *et al.*, 2014; VARLAKOV e ZHEREBTSOV, 2021).

Se imobilizados diretamente, alguns componentes desses fluxos interferem nas reações de hidratação dos cimentos Portland convencionais (OPC), levando à indesejadas mudanças na micro e macro estruturas das formas de rejeitos produzidas que afetam suas performances de solidificação e estabilização (ABDEL RAHMAN, OJOVAN, 2021);

Para neutralizar essas mudanças, o traço das matrizes de imobilização cimentícia é modificado para incluir aditivos ou o uso de cimentos inovadores (ABDEL RAHMAN e OJOVAN, 2021). Dentre esses cimentos inovadores, destacam-se os geopolímeros, solução que será investigada neste trabalho.

## 2. OBJETIVOS

### 2.1. OBJETIVO GERAL

O presente trabalho tem como objetivo principal desenvolver matrizes geopoliméricas com propriedades reológicas e resistência mecânica satisfatórios, necessários para a solidificação e estabilização de rejeitos radioativos orgânicos e oleosos gerados em instalações nucleares e radioativas.

## 2.2. OBJETIVOS ESPECÍFICOS

A pesquisa tem como objetivos específicos:

- Testar diferentes formulações para a produção dos geopolímeros, avaliando a sua influência sobre o comportamento reológico da pasta;
- Avaliar a influência da variação dos parâmetros de calcinação da caulinita para a resistência à compressão de corpos de prova geopoliméricos;
- Selecionar a formulação e os parâmetros de calcinação que conduzem aos melhores resultados em termos de reologia e resistência à compressão, respectivamente, para os geopolímeros produzidos.

## 3. MATERIAIS E MÉTODO

### 3.1. MATERIAIS

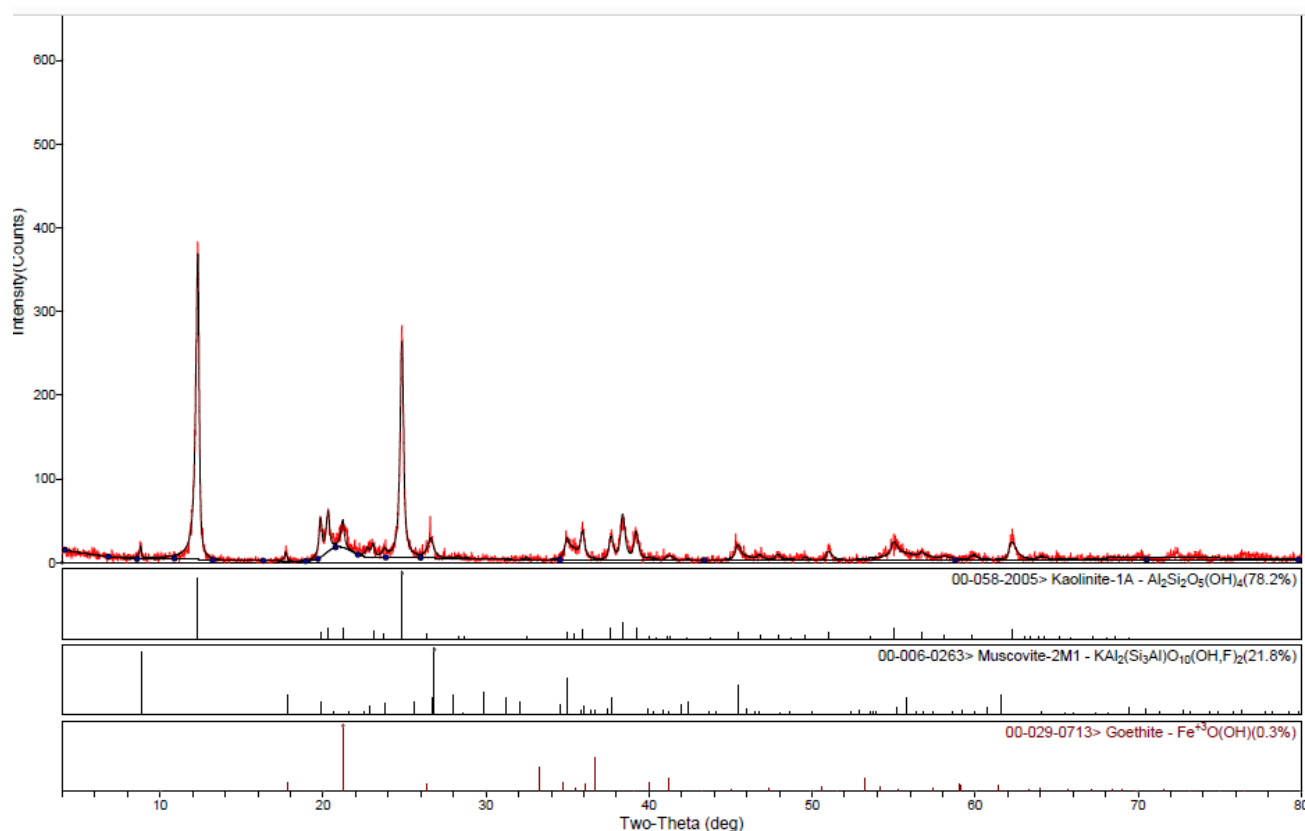
#### 3.1.1. CAULIM

Para a execução deste trabalho foi utilizada caulim fornecido pela empresa Sulfal Química Ltda, material este que constituirá o precursor de aluminossilicatos. A Tabelas 1 apresenta a composição química do caulim, obtida no ensaio de difração de raios X (DRX), enquanto a Figura 1 apresenta as suas fases cristalinas, obtidas no ensaio de fluorescência de raios x (FRX).

**Tabela 1:** Composição química do caulim obtido no ensaio de DRX.

| Fonte mineral | % em massa       |                                |                                |                  |       |                           |
|---------------|------------------|--------------------------------|--------------------------------|------------------|-------|---------------------------|
|               | SiO <sub>2</sub> | Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | K <sub>2</sub> O | MgO   | Perda por ignição (950°C) |
| Caulim        | 47,2             | 37,8                           |                                | 0,564            | 0,312 | 0,047    14               |

**Figura 1:** Fases cristalinas do caulim obtidas no ensaio de FRX



**Fonte:** Elaborado pelo autor.

Como se pode ver, o caulim utilizado apresenta a predominância da fase cristalina caulinita (78,2%), mas também apresenta a fase cristalina muscovita (21,8%) e goetita (0,3%).

### 3.1.2. SOLUÇÃO DE HIDRÓXIDO DE SÓDIO (NaOH)

Foi realizado o preparo de uma solução de hidróxido de sódio (NaOH) na concentração de 10 mol/L, a partir do hidróxido de sódio fornecido em escamas pela empresa Sulfal Química Ltda. A solução de NaOH foi formulada com uma concentração alcalina de 23,3% de  $\text{Na}_2\text{O}$ .

### 3.1.3. SOLUÇÃO DE SILICATO DE SÓDIO ( $\text{Na}_2\text{SiO}_3$ )

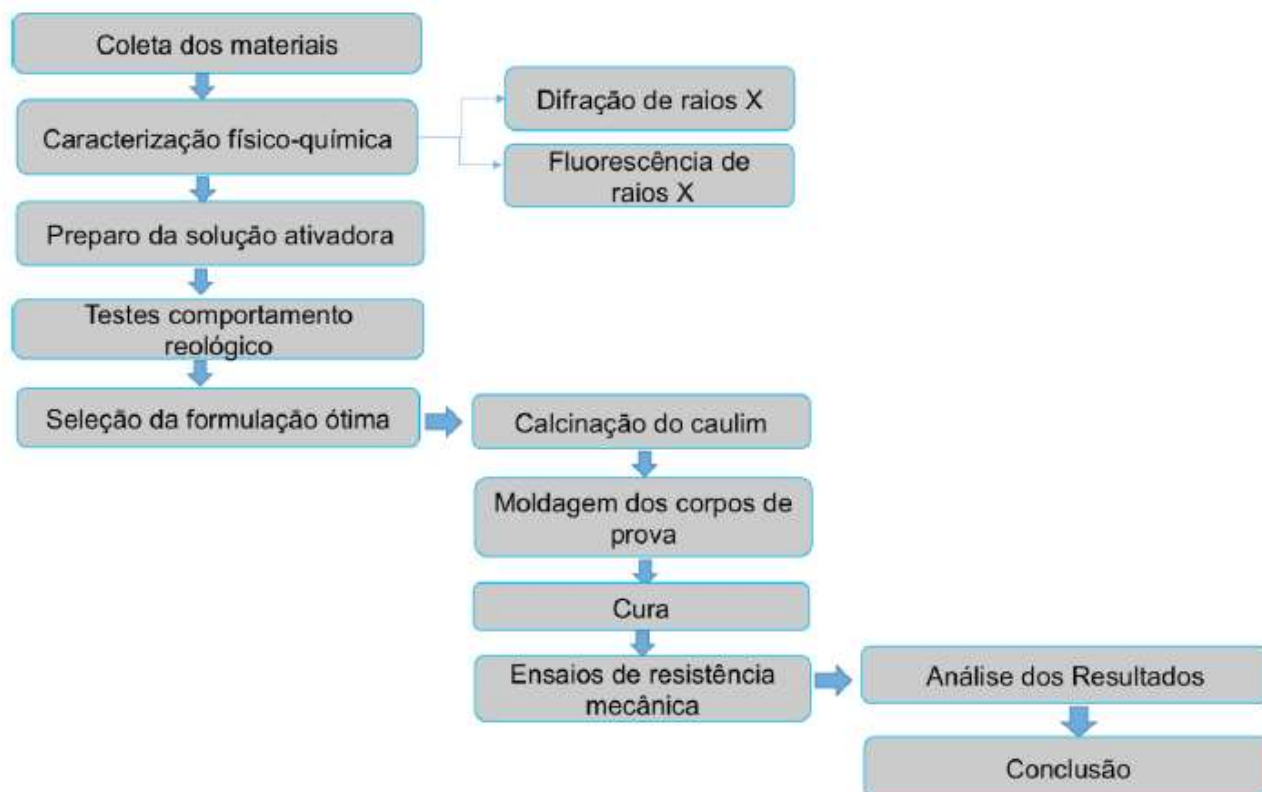
O silicato de sódio ( $\text{Na}_2\text{SiO}_3$ ) foi fornecido em solução pela empresa Sulfal Química Ltda. A solução de  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  foi formulada com uma concentração alcalina de 15,21% de  $\text{Na}_2\text{O}$  e 32,49% de  $\text{SiO}_2$ .

## 3.2. MÉTODO

### 3.2.1. FLUXOGRAMA EXPERIMENTAL

A Figura 2 apresenta o fluxograma contendo as etapas de execução do programa experimental deste trabalho. As pastas geopoliméricas foram preparadas no laboratório de síntese e o rompimento dos

corpos de prova no laboratório de cimentação do CDTN. Devido à inexistência de normas específicas, os procedimentos de ativação alcalina, moldagem e cura dos geopolímeros ocorreram com base em informações da literatura e nas normas de referência aplicáveis ao cimento Portland.



**Fonte:** Elaborado pelo autor.

### 3.2.2. PREPARO DA SOLUÇÃO ATIVADORA

A solução ativadora foi obtida realizando-se a transferência da solução de silicato de sódio para um balão de destilação contendo a solução de hidróxido de sódio. Em seguida, completou-se o volume do balão com água.

### 3.2.3. TESTES COMPORTAMENTO REOLÓGICO

A Tabela 2 apresenta as formulações testadas para a composição dos geopolímeros. Para a composição dos geopolímeros, buscou-se atender às razões molares fixadas nas últimas colunas da tabela. Essas razões molares foram obtidas com base na revisão da literatura (AIELLO, *et al.*, 1991; DUXSON *et al.*, 2007; KOMNITSAS e ZAHARAKI, 2007). As pastas geopoliméricas obtidas foram classificadas em termos da reologia em 5 classes: (i) muito fluida, (ii) fluida, (iii) consistência regular, (iv) consistente e (v) muito consistente.

Em sistemas com pouco ou nenhum cálcio disponível, como é o caso deste trabalho, verifica-se que é melhor trabalhar com módulo de sílica (razão molar  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ ) mais próximo de 5, visando a maior resistência mecânica. Também é necessário trabalhar com baixa alcalinidade (razão molar  $\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$  abaixo de 15), visando evitar problemas futuros relacionados à eflorescência.

**Tabela 2:** Formulações testadas para os geopolímeros.

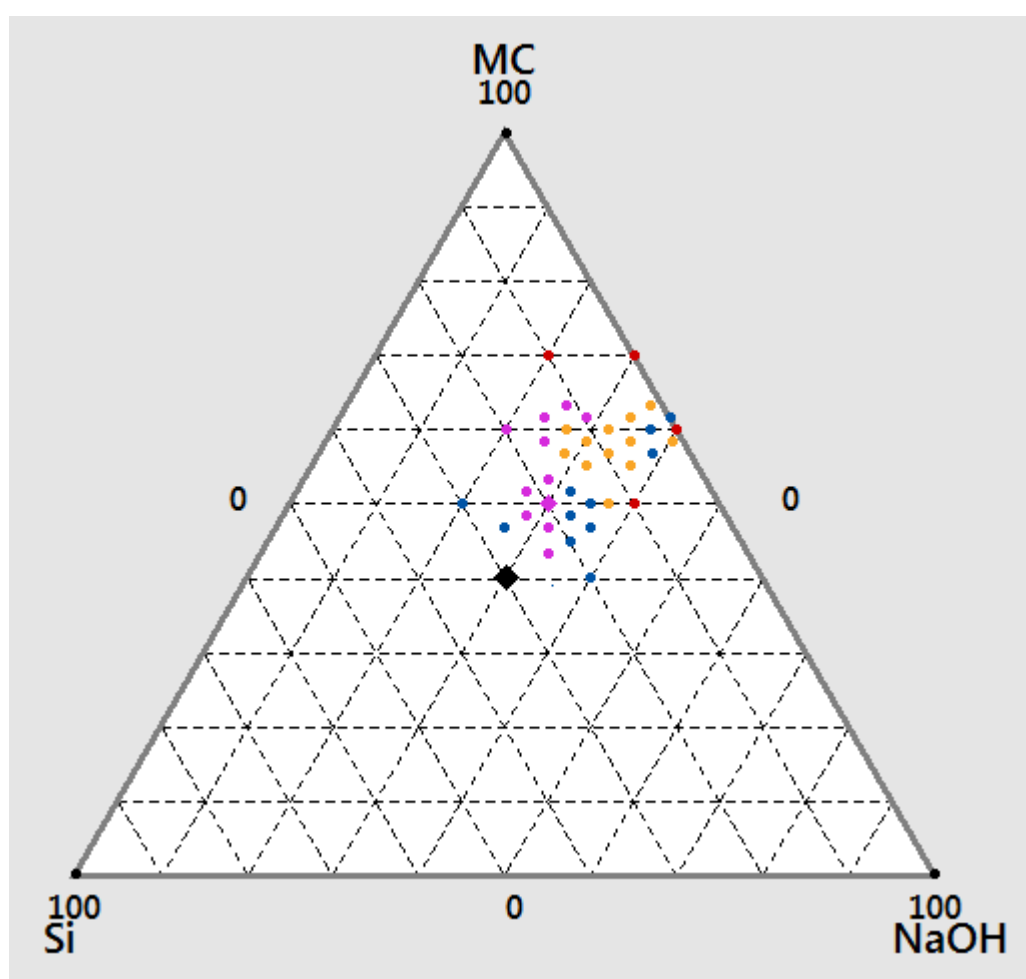
| NOME         | Proporções (%) |          |                  | Massas g) |          |                  |       | RAZÃO MOLAR                                                    |                                                               |                                                    |                                             | Reologia             |
|--------------|----------------|----------|------------------|-----------|----------|------------------|-------|----------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------|---------------------------------------------|----------------------|
|              | Caulim         | Silicato | NaOH<br>10 mol/L | Caulim    | Silicato | NaOH<br>10 mol/L | TOTAL | Na <sub>2</sub> O/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub><br>(aprox. 1) | SiO <sub>2</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub><br>(2,5 a 5) | Na <sub>2</sub> O/SiO <sub>2</sub><br>(0,25 a 0,4) | H <sub>2</sub> O/Na <sub>2</sub> O<br>(<15) |                      |
| <b>CS-01</b> | 50             | 20       | 30               | 200,0     | 80,0     | 120,0            | 400   | 0,87                                                           | 2,71                                                          | 0,32                                               | 8,93                                        | Muito consistente    |
| <b>CS-02</b> | 39             | 25       | 36               | 136,5     | 87,5     | 126,0            | 350   | 1,36                                                           | 3,06                                                          | 0,44                                               | 8,97                                        | Muito fluida         |
| <b>CS-03</b> | 45             | 20       | 35               | 135,0     | 60,0     | 105,0            | 300   | 1,08                                                           | 2,77                                                          | 0,39                                               | 8,80                                        | Consistente          |
| <b>CS-04</b> | 40             | 30       | 30               | 140,0     | 105,0    | 105,0            | 350   | 1,26                                                           | 3,22                                                          | 0,39                                               | 9,32                                        | Consistência regular |
| <b>CS-05</b> | 40             | 20       | 40               | 120,0     | 60,0     | 120,0            | 300   | 1,35                                                           | 2,85                                                          | 0,47                                               | 8,70                                        | Consistente          |
| <b>CS-06</b> | 47             | 24       | 29               | 141,0     | 72,0     | 87,0             | 300   | 0,96                                                           | 2,87                                                          | 0,34                                               | 9,13                                        | Muito consistente    |
| <b>CS-07</b> | 46             | 22       | 32               | 138,0     | 66,0     | 96,0             | 300   | 1,02                                                           | 2,82                                                          | 0,36                                               | 8,96                                        | Muito fluida         |

Como se pode observar, a composição CS-04 apresentou o maior módulo de sílica, bem como resultados dentro das faixas esperadas para as demais razões molares. Além disso, foi verificado o melhor estado de consistência para esta composição (consistência regular).

Por estas razões, selecionou-se a composição CS-04 como o teor ótimo para a moldagem dos corpos de prova e para a realização dos ensaios de resistência à compressão.

A Figura 3 apresenta o diagrama ternário das composições testadas, com a composição CS04 em formato de losango no centro da figura.

**Figura 3:** Diagrama ternário das composições testadas, em função dos teores de metacaulim (MC), silicato de sódio (Si) e do hidróxido de sódio (NaOH).



**Fonte:** Adaptado de CUCCIA, 2019.

#### 3.2.4. CALCINAÇÃO DO CAULIM

Nesta etapa avaliou-se a influência de três variáveis preditoras do processo de calcinação da caulinita sobre a resistência à compressão de corpos de prova de geopolímeros.



Para isso, foi realizado um planejamento fatorial  $2^3$ , ou seja, contendo três fatores a dois níveis. As variáveis preditoras selecionadas foram: (i) temperatura de calcinação (800°C ou 900°C), (ii) taxa de aquecimento (10°C/min ou 20°C/min) e (iii) duração (4h ou 8h). Foi realizada uma única repetição. Utilizou-se o *software* MiniTab 19 para a análise fatorial. A Tabela 3 apresenta o planejamento fatorial realizado.

**Tabela 3:** Planejamento fatorial do processo de calcinação.

| CÓDIGO DA AMOSTRA | TAXA DE AQUECIMENTO (°C/MIN) | TEMPERATURA (°C) | DURAÇÃO (H) |
|-------------------|------------------------------|------------------|-------------|
| MK-10.800.4       | 10                           | 800              | 4           |
| MK-10.800.8       | 10                           | 800              | 8           |
| MK-10.900.4       | 10                           | 900              | 4           |
| MK-10.900.8       | 10                           | 900              | 8           |
| MK-20.800.4       | 20                           | 800              | 4           |
| MK-20.800.8       | 20                           | 800              | 8           |
| MK-20.900.4       | 20                           | 900              | 4           |
| MK-20.900.8       | 20                           | 900              | 8           |

**Fonte:** Elaborado pelo autor.

A partir deste planejamento, realizou-se a calcinação das amostras de caulinita em uma mufla modelo AN1220-DM, conforme mostra a Figura 4.

**Figura 4:** Mufla utilizada na calcinação.



**Fonte:** Elaborado pelo autor.

### 3.2.5. PREPARAÇÃO DOS CORPOS DE PROVA DE GEOPOLÍMEROS

Primeiramente foram pesadas as quantidades em massa da caulinita, da solução de hidróxido de sódio e da solução de silicato de sódio, previstas na Tabela 2.

Em seguida, foi realizado o preparo das pastas geopoliméricas manualmente a partir da mistura das soluções de  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  e  $\text{NaOH}$  com o caulim.

As pastas obtidas foram então colocadas em moldes cilíndricos de 5cm de diâmetro por 10cm de altura, sendo identificadas e depois adensadas por meio de vibração mecânica.

Aos 2 dias de idade foi realizado o procedimento de desmolde, seguido pela cura dos corpos de prova em condições de temperatura e umidade ambientes, por um período de 28 dias.

As etapas de moldagem e cura dos corpos de prova aplicadas neste trabalho seguiram os procedimentos normativos estabelecidos pela NBR 5738:2003 – Concreto – Procedimento para moldagem e cura de corpos-de-prova.

### 3.2.6. ENSAIO DE COMPRESSÃO

Ao término dos 28 dias de cura, os corpos de prova cilíndricos foram submetidos a um procedimento de capeamento com enxofre líquido, para regularização das superfícies inferior e superior, conforme se pode ver na Figura 5:

**Figura 5:** Corpos de prova cilíndricos capeados com enxofre.



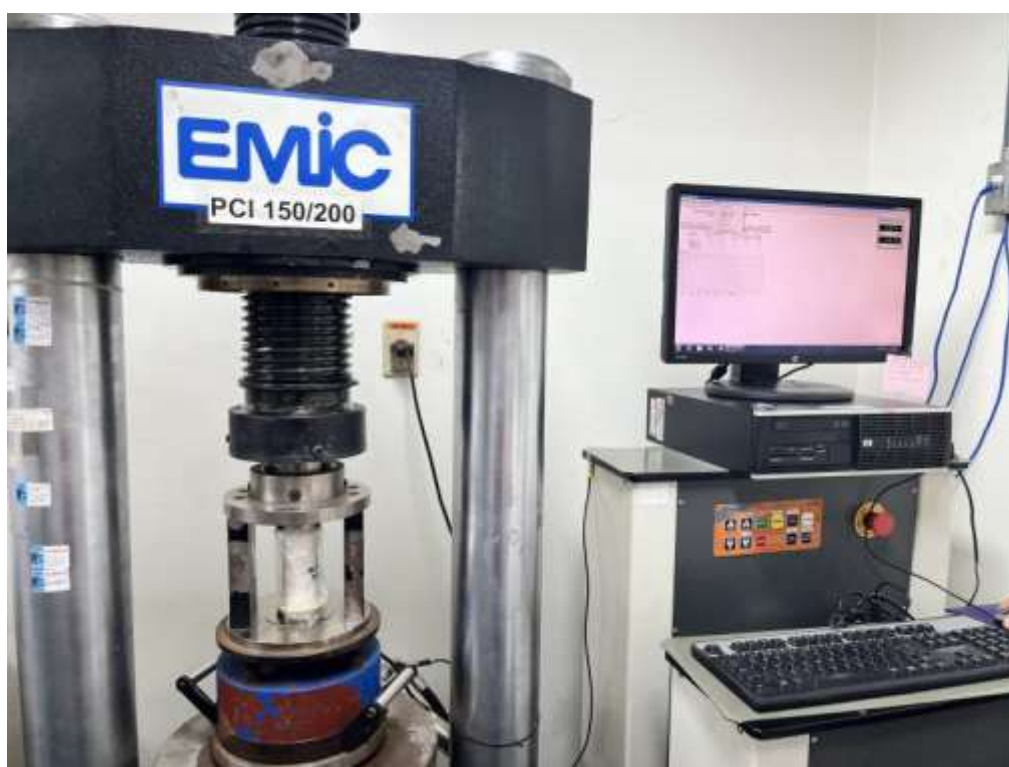
**Fonte:** Elaborado pelo autor.

Em seguida, os corpos de prova foram ensaiados à compressão seguindo os procedimentos estabelecidos pela NBR 5739:2007 – Concreto – Ensaio de compressão de corpos de prova cilíndricos. Foram rompidos 5 corpos de prova para cada código de amostra previsto na Tabela 3.

Este ensaio foi conduzido em um equipamento da marca EMIC linha DL 200 KN de carga, em uma célula de carga de 500 N a uma velocidade de 0,025 mm/min.

A Figura 6 apresenta a aparelhagem utilizada para a realização do ensaio de compressão:

**Figura 6:** Arranjo dos equipamentos utilizados no ensaio de compressão.



**Fonte:** Elaborado pelo autor.

#### 4. RESULTADOS

A Tabela 4 apresenta a resistência à compressão média obtida para as cinco amostras analisadas, bem como parâmetros estatísticos relacionados. Os resultados obtidos para a resistência à compressão de cada corpo de prova são apresentados no Apêndice A. Realizou-se um tratamento estatístico buscando-se eliminar os pontos com maior desvio padrão em relação à média amostral (*outliers*), sendo que estes pontos também são identificados no Apêndice A.

**Tabela 4:** Resultados do ensaio de resistência à compressão.

| Parâmetro                   | MK-10-800-4 | MK-10-800-8 | MK-10-900-4 | MK-10-900-8 | MK-20-800-4 | MK-20-800-8 | MK-20-900-4 | MK-20-900-8 |
|-----------------------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|
| $\sigma$ (MPa)              | 22,42       | 22,55       | 34,96       | 26,76       | 28,01       | 26,73       | 24,61       | 24,32       |
| Desvio padrão (MPa)         | 2,26        | 6,09        | 7,71        | 2,81        | 1,31        | 6,04        | 3,07        | 2,89        |
| Coeficiente de variação (%) | 10,09       | 27,00       | 22,06       | 10,50       | 4,68        | 22,60       | 12,47       | 11,87       |

**Fonte:** Elaborado pelo autor.

A Norma CNEN-NN-6.09 estabelece um mínimo de 10 MPa para a resistência à compressão de rejeitos cimentados, valor este que foi adotado como referência neste trabalho (CNEN, 2002).

Com base nos resultados obtidos, identificou-se que, para a formulação CS-04 (40% de caulim, 30% de NaOH e 30% de Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>), os corpos de prova atenderam aos requisitos mínimos de resistência à compressão estabelecidos pela norma CNEN-NN-6.09, para todas as condições de calcinação testadas.

Além disso, observa-se que os corpos de prova com código MK-10-900-4 apresentaram a maior resistância à compressão média (34,96 MPa). Logo, as condições de calcinação do caulim que conduziram aos melhores resultados de resistência mecânica foram: taxa de aquecimento de 10°C/min, temperatura de calcinação de 900°C e tempo de duração de 4 horas.

## 5. CONCLUSÃO

Por meio de uma revisão bibliográfica abrangente, um planejamento de experimentos preciso e um programa experimental bem executado, foi possível cumprir os objetivos gerais e específicos propostos para a realização deste trabalho.

A formulação dos geopolímeros que proporcionou o melhor comportamento reológico, em termos de fluidez e trabalhabilidade da pasta, foi a CS-04 (40% de caulim, 30% de NaOH e 30% de Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>), sendo está indicada para o preparo de pastas geopoliméricas em estudos futuros.

As condições de calcinação do caulim que conduziram aos melhores resultados de resistência à compressão dos corpos de prova foram: taxa de aquecimento de 10°C/min, temperatura de calcinação de 900°C e tempo de duração de 4 horas, com uma resistência à compressão média aos 28 dias de 34,96 MPa.

Sabe-se que a incorporação de rejeitos radioativos orgânicos e oleosos na matriz geopolimérica tende a reduzir drasticamente a resistência à compressão nestes compósitos, devido ao aumento na zona de transição interfacial e a introdução de impurezas. Por isso, é de vital importância trabalharmos com as condições de calcinação ótimas para o caulim, visando amortecer esta queda de resistência. Logo, recomenda-se o emprego das condições de calcinação ótimas encontradas neste trabalho na realização de estudos futuros, visando a solidificação e a estabilização de rejeitos radioativos orgânicos e oleosos.

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- ABDEL RAHMAN, Rehab O. et al. Recent evaluation of early radioactive disposal practice. In: Natural Resources and Control Processes. Springer, Cham, 2016. p. 371-400.
- ABDEL RAHMAN, R. O.; METWALLY, S. S.; EL-KAMASH, A. M. Improving the Performance of Engineering Barriers in Radioactive Waste Disposal Facilities: Role of Nano-Materials. Handbook of Nanomaterials and Nanocomposites for Energy and Environmental Applications, p. 1-19, 2020.
- ABDEL RAHMAN, Rehab O.; OJOVAN, Michael I. Toward Sustainable Cementitious Radioactive Waste Forms: Immobilization of Problematic Operational Wastes. Sustainability, v. 13, n. 21, p. 11992, 2021.
- ABDEL RAHMAN, R.O; RAKHIMOV, R.Z.; RAKHIMOVA, N.R.; OJOVAN, M.I. Cementitious materials for nuclear waste immobilization. John Wiley & Sons, 2014.
- ABNT. NBR 5738:2003 – Concreto – Procedimento para moldagem e cura de corpos-de-prova. Rio de Janeiro, 2003.
- . NBR 5739:2007 – Concreto – Ensaio de compressão de corpos de prova cilíndricos. Rio de Janeiro, 2007.
- AIELLO, R., CREA, F., NASTRO, A., SUBOTIC, B., TESTA, F. Influence of cations on the physicochemical and structural properties of aluminosilicate gel precursors. Part 1. Chemical and thermal properties. Zeolites, v. 11, n. 8, p. 767-775, 1991.
- ARBEL HADDAD, M., OFER-ROZOVSKY, E., BAR-NES, G., BOROKOVICH, E.J.C., NIKOLSKI, A., MOGILIANSKY, D., KATZ, A. Formation of zeolites in metakaolin-based geopolymers and their potential application for Cs immobilization. Journal of Nuclear Materials, v. 493, p. 168-179, 2017.
- ANDRADE, F.R.D., PECCHIO, M., BENDORAITIS, D.P., MONTANHEIRO, T.J., KIHA-RA, Y. Basalt mine-tailings as raw-materials for Portland clinker. Cerâmica, v. 56, p. 39-43, 2010.
- BART, F., CAU-DI-COUMES, C., FRIZON, F., LORENTE, S. Cement-based materials for nuclear waste storage. Springer Science & Business Media, 2012.
- BATCHELOR, B. Overview of waste stabilization with cement. Waste management, v. 26, n. 7, p. 689-698, 2006.
- CNEN – Comissão Nacional de Energia Nuclear. Norma CNEN-NN-6.09. Critérios de aceitação para deposição de rejeitos radioativos de baixo e médio níveis de radiação, 23/09/2002.
- CORNELL, R. Adsorption of cesium on minerals: a review. Journal of radioanalytical and nuclear chemistry, v. 171, n. 2, p. 483-500, 1993.
- CUCCIA, Valeria. Estudos para tratamento de óleo lubrificante contaminado com cobalto visando deposição em repositório de superfície de rejeitos radioativos. Tese de doutorado apresentada ao curso de Pós-Graduação em Ciência e Tecnologia das Radiações, Minerais e Materiais do Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear - CDTN. Belo Horizonte, 2019.



DAVIDOVITS, Joseph. Properties of geopolymer cements. In: First international conference on alkaline cements and concretes. Kiev, Ukraine: Kiev State Technical University, 1994. p. 131-149.

DUXSON, P., FERNANDEZ-JIMENEZ, A., PROVIS, J.L., LUKEY, G.C., PALOMO, A., DEVENTER, J.S.J. Geopolymer technology: the current state of the art. *Journal of materials science*, v. 42, n. 9, p. 2917-2933, 2007.

EL-ESWED, Bassam I.; ALDAGAG, Omar M.; KHALILI, Fawwaz I. Efficiency and mechanism of stabilization/solidification of Pb (II), Cd (II), Cu (II), Th (IV) and U (VI) in metakaolin based geopolymers. *Applied Clay Science*, v. 140, p. 148-156, 2017.

FERNÁNDEZ-JIMÉNEZ, A. MONZO, M. VICENT, M. BARBA, A., PALOMO, A. Alkaline activation of metakaolin-fly ash mixtures: Obtain of Zeoceramics and Zeocements. Microporous and mesoporous materials, v. 108, n. 1-3, p. 41-49, 2008.

GARCÍA-GUTIÉRREZ, M., MISSANA, T., MINGARRO, M., MOREJÓN, J., CORMENZANA, J.L. Cesium diffusion in mortars from different cements used in radioactive waste repositories. *Applied Geochemistry*, v. 98, p. 10-16, 2018.

HUANG, Yi; HAN, Minfang. The influence of  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> addition on microstructure, mechanical and formaldehyde adsorption properties of fly ash-based geopolymer products. *Journal of hazardous materials*, v. 193, p. 90-94, 2011.

Ji, Zehua; PEI, Yuansheng. Bibliographic and visualized analysis of geopolymer research and its application in heavy metal immobilization: A review. *Journal of environmental management*, v. 231, p. 256-267, 2019.

KOMNITSAS, Kostas; ZAHARAKI, Dimitra. Geopolymerisation: A review and prospects for the minerals industry. *Minerals engineering*, v. 20, n. 14, p. 1261-1277, 2007.

KOT'ÁTKOVÁ, J., ZATLOUKAL, J., REITERMAN, P., KOL'AR, K. Concrete and cement composites used for radioactive waste deposition. *Journal of environmental radioactivity*, v. 178, p. 147-155, 2017.

KUENZEL, C., CISNEROS, J.F., NEVILLE, T.P., VANDEPERRE, L. J., SIMONS, S.J.R., BENSTED, J. CHEESEMAN, C.R. Encapsulation of Cs/Sr contaminated clinoptilolite in geopolymers produced from metakaolin. *Journal of Nuclear Materials*, v. 466, p. 94-99, 2015.

LI, Qin et al. Immobilization of simulated radionuclide <sup>133</sup>Cs<sup>+</sup> by fly ash-based geopolymer. *Journal of hazardous materials*, v. 262, p. 325-331, 2013.

OJOVAN, Michael I.; LEE, William E. Glassy wasteforms for nuclear waste immobilization. *Metallurgical and Materials Transactions A*, v. 42, n. 4, p. 837-851, 2011.

PALOMO, A.; FERNÁNDEZ-JIMÉNEZ, A.; CRIADO, M. "Geopolymers": same basic chemistry, different microstructures. *Materiales de Construcción*, v. 54, n. 275, p. 77-91, 2004.

SIYAL, A.A., SHAMSUDDIN, M.R., KHAN, M.I., RABAT, N.E., ZULFIQAR, M., MAN, Z., SIAME, J., AZIZLI, K.A. A review on geopolymers as emerging materials for the adsorption of heavy metals and dyes. *Journal of Environmental Management*, v. 224, p. 327-339, 2018.

TIAN, Quanzhi; SASAKI, Keiko. Application of fly ash-based geopolymer for removal of cesium, strontium and arsenate from aqueous solutions: kinetic, equilibrium and mechanism analysis. *Water Science and Technology*, v. 79, n. 11, p. 2116-2125, 2019.

VANCE, E. R.; PERERA, D. S. Geopolymers for nuclear waste immobilisation. In: *Geopolymers*. Woodhead Publishing, 2009. p. 401-420.

VARLAKOV, Andrey; ZHEREBTSOV, Alexander. Innovative and conventional materials and designs of nuclear cementitious systems in radioactive waste management. In: *Sustainability of Life Cycle Management for Nuclear Cementation-Based Technologies*. Woodhead Publishing, 2021. p. 297-338.

VOLCHEK, K., MIAH, M.Y., KUANG, W. DEMALEKI, Z., TEZEL, F.H. Adsorption of cesium on cement mortar from aqueous solutions. *Journal of Hazardous materials*, v. 194, p. 331-337, 2011.

WALKLEY, Brant et al. Incorporation of strontium and calcium in geopolymer gels. *Journal of hazardous materials*, v. 382, p. 121015, 2020.

ZHANG, Z. PROVIS, J.L. MA, X., REID, A., WANG, H. Efflorescence and subflorescence induced microstructural and mechanical evolution in fly ash-based geopolymers. *Cement and concrete composites*, v. 92, p. 165-177, 2018.

ZHU, Yehua; HU, Jun; WANG, Jianlong. Removal of  $\text{Co}^{2+}$  from radioactive wastewater by polyvinyl alcohol (PVA)/chitosan magnetic composite. *Progress in nuclear energy*, v. 71, p. 172-178, 2014.



## APÊNDICE A – RESULTADOS DO ENSAIO DE COMPRESSÃO

Resistência à compressão dos corpos de prova - (MPa)

| Amostras | MK-10-800-4 | MK-10-800-8 | MK-10-900-4 | MK-10-900-8 | MK-20-800-4 | MK-20-800-8 | MK-20-900-4 | MK-20-900-8 |
|----------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|
| CP01     | 24,5        | 26,85       | 30,14       | 23,53       | 27,03       | 15,44       | 35,95       | 33,26       |
| CP02     | 22,75       | 43,32       | 43,85       | 28,14       | 27,50       | 20,91       | 26,31       | 21,46       |
| CP03     | 20,01       | 18,24       | 30,88       | 28,62       | 29,50       | 26,31       | 26,46       | 24,26       |
| CP04     | *           | *           | 14,91       | 15,39       | 35,70       | 9,74        | 21,07       | 27,23       |
| CP05     | *           | *           | *           | *           | *           | 32,97       | *           | *           |

\* Corpos de prova romperam durante a desmoldagem

Ricardo Augusto dos Santos Horta  
Wesley Eunathan Fernandes Lima  
Luciana Silva Villela

---

# DESENVOLVIMENTO DE MATRIZES GEOPOLIMÉRICAS PARA A SOLIDIFICAÇÃO E ESTABILIZAÇÃO DE REJEITOS RADIOATIVOS ORGÂNICOS E OLEOSOS

---